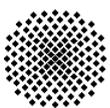


**Verbrennung von Aktiniden
aus Leichtwasserreaktoren in
modularen Hochtemperatur-
reaktoren zur Reduzierung
langlebiger Nuklide**

Astrid Meier



Verbrennung von Aktiniden aus Leichtwasserreaktoren in modularen Hochtemperatur- reaktoren zur Reduzierung langlebiger Nuklide

von der Fakultät Energie-, Verfahrens-
und Biotechnik der Universität Stuttgart
zur Erlangung der Würde eines
Doktor-Ingenieurs (Dr.-Ing.)
genehmigte Abhandlung

vorgelegt von

Dipl.-Phys. Astrid Meier
geboren in Landau a. d. Isar.

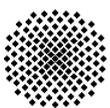
Hauptberichter:
Prof. G. Lohnert, Ph.D.

Mitberichter:
Prof. Dr. V. Heinzl

Tag der Einreichung: 07. 03. 2011

Tag der mündlichen Prüfung: 08. 07. 2011

ISSN – 0173 – 6892



Kurzfassung

In Leichtwasserreaktoren (LWR) entstehen langlebige und radiologisch toxische Nuklide, wie z. B. Plutonium und Minore Aktinide (Neptunium, Americium, Curium, ...), die nach der Brennelemententnahme für lange Zeit sicher verwahrt werden müssen. Zur Reduzierung des hochradioaktiven, langlebigen Materials wird unter anderem an der Umwandlung mittels Transmutation und Kernspaltung in kurzlebige Nuklide geforscht. Als Transmutationssysteme werden Generation-IV-Reaktoren und beschleunigergetriebene Systeme untersucht. Einer der Generation-IV-Reaktoren ist der grafitmoderierte, Helium gekühlte Hochtemperatur-Kugelhaufen-Reaktor (HTR). Die Vorteile des HTR ist zum einen die Brennelementstruktur, durch die hohe Abbrände möglich sind. Außerdem die inhärente Sicherheit, d. h. es ist möglich, den Reaktor ohne aktive Systeme in einen sicheren Zustand zu bringen, ohne dabei die Strukturen zu zerstören oder radioaktive Substanzen freizusetzen.

In dieser Arbeit werden die aus den abgebrannten LWR-Brennelementen extrahierten Nuklide Plutonium, Neptunium und Americium zu neuem Brennstoff verarbeitet und in einen HTR eingesetzt. Das Ziel ist es, den Großteil der langlebigen Nuklide umzuwandeln, um damit die Menge langlebiger Nuklide und Toxizitäten im abgebrannten Brennelement zu reduzieren. Dafür wird der höchstmögliche Abbrand bestimmt. Die Grundidee stammt aus dem Projekt „Plutonium and Minor Actinides Waste Management“ (PuMA) der Europäischen Union. Die Definition der Brennelement- und Reaktorgeometrie werden aus diesem Projekt entnommen.

Der Referenzreaktor ist nahezu identisch zum südafrikanischen Hochtemperaturreaktor mit 400 MW_{th} Leistung und fester Grafitinnensäule (Pebble Bed Modular Reactor PBMR-400). Es zeigt sich, dass der maximale mittlere Entladeabbrand unterhalb von 700 MWd/kg SM liegt und nicht wesentlich von der geometrischen Form der Kugelschüttung beeinflusst wird. Untersucht wird außerdem das Verhalten des mit Plutonium- und Minoren Aktiniden-Brennstoff gefüllten stationären HTR im Vergleich zu dem mit Uran-Brennstoff betriebenen. Durch den veränderten Spaltstoff ist das Verhalten des Reaktors unterschiedlich, z. B. bei Temperaturänderung oder im Störfall. Die Temperaturen in den Plutonium- und Minoren Aktiniden-Brennelementen sind weit über den erlaubten Grenztemperaturen. Dies resultiert aus der veränderten Abbrand- und Leistungsverteilung im Vergleich zum Uran beladenen Reaktor. Eine Änderung des Reaktorkonzepts zu dem vorgegebenen Referenzsystem ist daher notwendig. Mittels

verschiedener Variationen wird nach Verbesserungen gesucht.

Die veränderte Nuklidzusammensetzung, deren Radiotoxizitäten und die Wärmefreisetzung der abgebrannten Brennelemente werden ebenfalls analysiert. Direkt nach Brennelemententnahme sind die Radiotoxizitäten und die Nachzerfallsleistung größer als die des frischen HTR-Brennelements, während das Abklingen dieser Werte schneller erfolgt. Durch die Forderung eines Zwischenlagers wäre es möglich, die Größe des Endlagers zu reduzieren und dadurch die Gesamtkosten zu verringern.

Abstract

Only one of many different ways to produce electric power is the Light Water Reactor (LWR). This reactor produces high level long-lived and radiotoxic nuclides like Plutonium and Minor Actinides (Neptunium, Americium, Curium, ...), which have to be safely isolated and controlled in a final storage over a long time. Thus, many projects worldwide concentrate on the transformation of these long-lived nuclides into short-lived nuclides by transmutation and fission processes. Here, mainly accelerator driven systems and Generation-IV-reactors, like the graphite moderated, Helium cooled High Temperature Reactor (HTR), are in focus of research. The main advantages of the HTR are the fuel structure, which allows high burnups and the inherent safety. In case of a Loss Of Cooling Accident (LOCA), the decay heat will be dissipated without any active cooling system. This passive heat transfer is high enough to stay below the upper temperature limit in the fuel. Therefore, the fuel structure stays intact and the fission products remain inside the fuel.

In this thesis, the long-lived nuclides like Plutonium, Neptunium and Americium, extracted from the spent LWR fuel, will be reused in a fresh fuel element for the HTR. To achieve the aim of reducing these nuclides and their radiotoxicity, the HTR has to operate at the highest possible burnup. Therefore parameters, like e.g. the fuel temperature or the power density distribution and also the behaviour in case of an accident have to be comparable to the HTR loaded with uranium fuel.

The European Union project „Plutonium and Minor Actinide Waste Management“ (PuMA) is the origin for the used reference reactor geometry, the fuel structure as well as the nuclide densities in the Plutonium and Minor Actinides fuel. The reactor design of this project is almost identical to the South African reactor concept with 400 MW_{th} thermal power and an inner graphite column (Pebble Bed Modular Reactor PBMR-400). For comparison also the uranium filled PBMR-400 will be calculated.

It will be shown that the maximal average discharge burnup for a critical, stationary system will be less than 700 MWd/kg HM in the case of the plutonium filled reactor. The behaviour of this reactor varies, e.g. in the case of an accident or in load changes, compared to the reactor loaded with uranium fuel. Due to the different fission nuclides and the higher burnups of the plutonium fuel, the power distribution is strongly different and the temperature in the kernel is far above the upper-limit temperature. Therefore, the reference reactor design has to be adapted or the nominal power has to be reduced. Many

calculations are shown with a varying reactor geometry, fuel design, nominal power and load strategy. As one result, no significant influence of the core geometry on the maximal burnup is observed.

Furthermore, the reduction of the long-lived nuclides, the distribution of the radiotoxicity and the decay heat in dependence of the storage time are analyzed for the spent fuel in the reference design. The radiotoxicity and the decay heat from the spent fuel direct after removal from the reactor is higher compared with nuclide vector from a not burned plutonium fuel. In the repository the decrease of these parameters is greater than from the fresh fuel. With the request for an interim storage a smaller repository with lower total costs is possible.

Inhaltsverzeichnis

Kurzfassung	i
Abstract	iii
Inhaltsverzeichnis	v
Abbildungsverzeichnis	ix
Tabellenverzeichnis	xiii
Nomenklatur	xv
Symbolverzeichnis	xv
Abkürzungsverzeichnis	xvi
1 Einleitung	1
1.1 Beitrag der Kernenergie zur Energieversorgung	1
1.2 Internationale Projekte zur Transmutation von Aktiniden	2
1.3 Arbeitsthema und Begriffsdefinitionen	4
1.4 Ziel und Gliederung der Arbeit	10
2 Eingesetzte Methoden & Programme	13
2.1 Programmsystem ZIRKUS	13
2.2 Spektralprogramm MICROX 2	17
2.3 Abbrandprogramm ORIGEN 2.2	20
2.4 Diffusionsprogramm CITATION	20
2.5 Zeitabhängiges Thermohydraulikprogramm ATTICA3D	21
2.6 Monte Carlo Methode MCNP 5	21
3 Beschreibung des Referenzsystems	23
3.1 Brennelement	23
3.1.1 Geometrie und Anreicherung	23
3.1.2 Modellierung in MICROX 2	25
3.1.3 Modellierung in MCNP 5	26

3.2	Reaktorgeometrie	27
3.2.1	Geometrie und Parameter	27
3.2.2	Modellierung in ZIRKUS	29
3.2.3	Modellierung in CITATION	31
3.2.4	Modellierung in MCNP5	32
4	Ergebnisse	35
4.1	Maximaler mittlerer Entladeabbrand	35
4.2	Analyse des Gleichgewichtsystems	38
4.2.1	Neutronenfluss-, Leistungs- und Temperaturverteilung	38
4.2.2	Temperaturkoeffizienten	44
4.2.3	Einfluss durch ^{135}Xe	48
4.2.4	Wirksamkeit der Steuerstäbe	49
4.3	Verhalten des Hochtemperaturreaktors bei Leistungsänderung	52
4.3.1	Lastwechsel 100 % - 50 % - 100 % Leistung	52
4.3.2	Kaltfahren des Systems	55
4.4	Störfallanalyse	57
4.4.1	Störfälle im Kühlkreislauf	57
4.4.2	Reaktivitätsstörfälle	59
4.5	Analyse der Aktiniden- und Toxizitätsreduktion	66
4.5.1	Reduktion der Nuklidmassen	66
4.5.2	Toxizitätsverlauf im Endlager	68
4.5.3	Wärmeentwicklung durch Kernzerfälle	74
4.6	Zusammenfassung	76
5	Analyse von Sondereffekten	79
5.1	Überprüfung der Partikeltemperatur	79
5.2	Cluster Berechnungen	82
5.3	Ermittlung der Steuerstabwirksamkeit im Zweidimensionalen	85
5.4	Betrachtung des maximalen Entladeabbrands	88
6	Analyse von Varianten	97
6.1	Reduzierung der Leistung	97
6.2	Reduzierung des Schwermetallgehalts	98
6.3	Variation des Partikelradius	99
6.4	Einbringen von Neutronengiften in die Brennelemente	99
6.5	Einbringen von Neutronengiften in den Reflektor	101
6.6	HTR-PM Geometrie	101
6.7	Zwei-Zonen-Geometrie	104
6.8	Zusammenfassung	107

Inhaltsverzeichnis	vii
Zusammenfassung	109
Literaturverzeichnis	113

Abbildungsverzeichnis

1.1	Ausschnitt einer Nuklidkarte	5
1.2	Spalt- und Absorptionswirkungsquerschnitte von U- und Pu-Isotopen . . .	9
1.3	Schematische Darstellung des PuMA-Projekts	10
2.1	Zeitliche Abfolge der einzelnen Module in ZIRKUS	13
2.2	Neutronenspektrum eines frischen U-Brennelements	19
3.1	Darstellung eines kugelförmigen Brennelements	23
3.2	Modellierung eines kugelförmigen Brennelements mittels MCNP5	26
3.3	Reaktorgeometrie des PBMRs	28
3.4	Modell des Referenzreaktors in ZIRKUS	30
3.5	Dreidimensionales Modell für den Referenzreaktor für CITATION	31
3.6	Dreidimensionales Modell des Referenzreaktors für MCNP5	32
4.1	Verlauf der Multiplikationskonstante k_{eff} von einem mit Pu-Brennelementen beladenen Reaktor	36
4.2	Verlauf der Multiplikationskonstante k_{eff} von einem mit MA-Brennelementen beladenen Reaktor	37
4.3	Spalt- und Absorptionswirkungsquerschnitte von U- und Pu-Isotopen . . .	38
4.4	Thermischer Neutronenfluss für einen mit Pu-, MA- und U-Brennstoff beladenen Reaktor	39
4.5	Axiales und radiales Leistungsdichteprofil eines mit Pu-, MA- und U-Brennstoff beladenen Reaktors	40
4.6	Maximale Partikeltemperaturen für einen mit Pu-, MA- und U-Brennstoff beladenen Reaktor	42
4.7	Multiplikationskonstante eines einzelnen Pu-Brennelements als Funktion des Abbrands	43
4.8	Brennstoff-, Moderator- und Reflektortemperaturkoeffizient für den stationären Reaktor mit U-Brennstoff	45
4.9	Brennstoff-, Moderator- und Reflektortemperaturkoeffizient für den stationären Reaktor mit Pu-Brennstoff	45
4.10	Moderatortemperaturabhängige Spektren in einem Pu-Brennelement . . .	46

4.11	Brennstoff-, Moderator- und Reflektortemperaturkoeffizient für den stationären Reaktor mit MA-Brennstoff	47
4.12	Spektren eines Pu-, MA- und U-Brennelements und der mikroskopischer Absorptionswirkungsquerschnitt des Isotops ^{135}Xe	49
4.13	Reaktivitätsänderung bei Veränderung der Steuerstabposition für den mit Pu-, MA- und U-Brennstoff beladenen Reaktor	50
4.14	Axiales thermisches Neutronenflussprofil bei verschiedenen Steuerstabstellungen	51
4.15	Reaktivitätsänderung bei Lastwechsel 100 % - 50 % - 100 % Leistung ohne Verfahren der Steuerstäbe	53
4.16	Separierte Reaktivitätseffekte beim Kaltfahren des Reaktors	55
4.17	Integraler Temperaturkoeffizient mit konstanter Temperatur	56
4.18	Maximale Brennstoff-Temperatur im LOFC	58
4.19	Maximale Brennstoff-Temperatur im DLOCA	58
4.20	Reaktivitätsänderung bei Wassereinbruch	60
4.21	Leistung und Temperaturen bei einem Reaktivitätsstörfall mit langsamen Steuerstabziehen	63
4.22	Brennstoff- und Moderatorcoeffizient von Pu, MA und U	64
4.23	Leistung und Temperaturen bei einem Reaktivitätsstörfall mit schnellem Steuerstabziehen	65
4.24	Relative Massenänderung über dem Abbrand in einem Pu-Brennelement	67
4.25	Relative Massenänderung über dem Abbrand in einem MA-Brennelement	68
4.26	Ingestionstoxizität eines frischen und eines abgebrannten Pu-Brennelements	70
4.27	Ingestionstoxizität der abbrandbedingten Elementzusammensetzung eines Pu-Brennelements mit 691 MWd/kg SM	71
4.28	Ingestionstoxizität eines frischen und eines abgebrannten MA-Brennelements	72
4.29	Inhalationstoxizität eines frischen und eines abgebrannten Pu-Brennelements	73
4.30	Inhalationstoxizität der abbrandbedingten Elementzusammensetzung eines Pu-Brennelements mit 691 MWd/kg SM	73
4.31	Wärmeentwicklung durch Nachzerfallswärme eines frischen und eines abgebrannten Pu-Brennelements	75
5.1	Temperatur eines Uranpartikels mit 100 mW Leistung	80
5.2	Temperatur eines Plutoniumpartikels mit 100 mW Leistung	81
5.3	Neutronenspektrum im unendlichen Gitter aus Pu-Brennelementen mit identischem Abbrand	83
5.4	Neutronenspektrum im unendlichen Gitter aus Pu-Brennelementen mit unterschiedlichem Abbrand	83
5.5	Vergleich der Neutronenspektren im Pu- und U-Brennelement bei unterschiedlichen Abbränden	84

5.6	Steuerstabwirksamkeiten eines mit U-Brennelementen beladenen Reaktors .	85
5.7	Steuerstabwirksamkeiten von Pu	86
5.8	Thermischer Neutronenfluss bei verschiedenen Stabstellungen	87
5.9	Abbrand eines Pu-Brennelements mit konstantem Neutronenfluss über der Zeit	89
5.10	Adjungierter axialer Neutronenfluss in der äußersten Kernzone	93
5.11	Verlauf der Multiplikationskonstante und des Abbrands bei konstantem Neutronenfluss und konstanten Wirkungsquerschnitten	95
6.1	Maximale Partikeltemperaturen in einem Reaktor mit Pu-Brennelementen mit 1,0 g Schwermetall	98
6.2	Totaler Wirkungsquerschnitt für Gadolinium und Hafnium-Isotope	100
6.3	Zoneneinteilung des HTR-PMs	102
6.4	Leistungsverteilung eines mit Pu-Brennelementen beladenen HTR-PMs . .	103
6.5	Maximale Partikeltemperaturen eines mit Pu-Brennelementen beladenen HTR-PMs	103
6.6	Zoneneinteilung eines Reaktors mit zwei Brennelementbeladezonen	104
6.7	Radiales Leistungsprofil eines mit Pu-Brennstoff beladenen Zweizonenkerns	105
6.8	Axiales Leistungsprofil eines mit Pu-Brennstoff beladenen Zweizonenkerns .	106

Tabellenverzeichnis

1.1	EU-Projekte zur Transmutation und Partitionierung von hochradioaktivem Abfall	4
1.2	Zusammenfassung weltweiter Hochtemperaturreaktoren	7
2.1	Multiplikationskonstanten in einem unendlichen Gitter aus Brennelementkugeln	19
3.1	Parameter der Referenzbrennelemente	24
3.2	Isotopenverteilung in den Referenzbrennelementen	25
4.1	Abbrand pro Umlauf, radial gemittelt über alle Zonen	43
4.2	^{135}Xe -Reaktivität	48
4.3	Abschätzung LWR-/HTR-Brennelemente	76
5.1	Parameter zur Berechnung der Partikeltemperatur	80
5.2	Maximale Brennelement- und Partikelleistung	81
5.3	Mittlerer Entladeabbrand für unterschiedliche Anzahl an Rezyklierungen in unterschiedlichen Reaktorgeometrien	89
5.4	Multiplikationskonstanten für ein frisches Brennelement im unendlichen Gitter und im endlichen Reaktor	91
5.5	Energiegruppeneinteilung für die Berechnung der adjungierten Neutronenflüsse	92

Nomenklatur

Symbolverzeichnis

Symbol	Einheit	Erklärung
A	MWd/kg SM	Abbrand
A_e	MWd/kg SM	Endabbrand
A_m	MWd/kg SM	Mittlerer Abbrand
$E \cdot \phi(E)$	-	Neutronenspektrum
ϵ_{Feed}	%	$^{235}\text{U}/\text{U}$ -Verhältnis des natürlichen Urans
ϵ_{Prod}	%	$^{235}\text{U}/\text{U}$ -Verhältnis des angereicherten Urans
ϵ_{Tail}	%	$^{235}\text{U}/\text{U}$ -Verhältnis des abgereicherten Urans
Γ	1/°C	Temperaturkoeffizient
γ_i	-	Akkumulierte Ausbeute bei Spaltung von Nuklid i
k_{eff}	-	Effektive Multiplikationskonstante
k_{inf}	-	Multiplikationskonstante in unendlicher Geometrie
$k_{Reaktorkern}$	-	Multiplikationskonstante des Reaktorkerns
λ	1/s	Zerfallskonstante
$\lambda(x)$	W/(m·K)	Ortsabhängige Wärmeleitfähigkeit
m	kg	Masse
$N(x)$	atoms/cm ³	Nukliddichte von Nuklid x
ϕ	n/(cm ² ·s)	Neutronenflussdichte
ϕ_m	n/(cm ² ·s)	Mittlere Neutronenflussdichte
p	bar	Partialdruck
q_0	W	Leistung
$\Delta\rho$	%	Reaktivitätsänderung
σ	barn	Mikroskopischer Wirkungsquerschnitt
σ_a	barn	Mikroskopischer Absorptionsquerschnitt
σ_m	barn	Mittlerer mikroskopischer Wirkungsquerschnitt
$\Sigma_{f,i}$	1/cm	Makroskopischer Spaltquerschnitt von Nuklid i
$\tau_{1/2}$	s	Halbwertszeit
T	°C	Temperatur
$T(x)$	°C	Orts- und zeitabhängige Temperatur
T_m	°C	Mittlere Temperatur

t_e	s	Enlladezeit
t'	s	Zeit
t_m	s	Mittlere Verweilzeit
U_{Feed}	kg	Masse natürliches Uran
U_{Prod}	kg	Masse angereichertes Uran
U_{Tail}	kg	Masse abgereichertes Uran
V	m ³	Volumen
wt%	-	Gewichtsprozent

1 Einleitung

1.1 Beitrag der Kernenergie zur Energieversorgung

Die Nachfrage an Strom steigt weltweit an. Dabei ist es wichtig, dass der Strom jederzeit verfügbar ist und kein umweltschädliches Kohlendioxid (CO_2) produziert. Die erneuerbaren Energien haben daher einen klaren Vorteil bei der Stromerzeugung - z. B. mit Offshore Windkraftwerken in der Nordsee und geplanten Solarthermie-Feldern in der Sahara. Jedoch sind sie nicht jederzeit verfügbar und mit dem momentanen Stand der Technik ist es nicht möglich, Strom über längere Zeiträume in großen Mengen zu speichern.

Industriestaaten wie Deutschland haben einen hohen Grundlastverbrauch, der jederzeit zugesichert werden muss. Strom zur Sicherung der Grundlast wird hauptsächlich in Gas-, Kohle- und Kernkraftwerken erzeugt. In Sachen Umweltbewusstsein haben die Kernkraftwerke den Vorteil, dass sie kein CO_2 erzeugen. Außerdem ist die Sicherung des Rohstoffs „Uran“ durch Importe aus vielen politisch stabilen Ländern gesichert.

Ende 2009 waren weltweit 437 Kernkraftwerke in 30 Ländern in Betrieb und 52 Anlagen im Bau [1]. Der Anteil der Kernenergie an der weltweiten Stromerzeugung liegt bei 13%. In Deutschland werden derzeit 17 Kernkraftwerke betrieben¹. Diese liefern einen Anteil von 22,6% an der Stromerzeugung und decken 45% der Grundlast ab [2].

Neben der Angst nach dem größten anzunehmenden Unfall (GAU) entsteht der Widerstand gegen die Kernkraft durch die Frage der Endlagerung des radioaktiven Abfalls. 90% des radioaktiven Abfalls ist niedrig- und mittelradioaktiv und hat keine oder nur eine schwache Wärmeentwicklung [3]. Für diese Abfälle gibt es weltweit bereits einige Endlager. In Deutschland können ab 2013 niedrig- und mittelradioaktive Abfälle aus Industrie, Forschung und Medizin in das Endlager „Schacht Konrad“ eingelagert werden. Nach einem überschaubaren Zeitraum von ca. 300 Jahren sind diese Radionuklide soweit abgeklungen, dass keine Gefahr mehr für Mensch und Natur besteht.

Hochradioaktiver Abfälle besteht aus Nukliden mit sehr langen Halbwertszeiten und einer starken Wärmeentwicklung. Diese Abfälle müssen einen Zeitraum von bis zu einer Million Jahre sicher eingeschlossen werden. Weltweit gibt es bis jetzt kein Endlager für hochradioaktiven Abfall. Für den Salzstock „Gorleben“ in Niedersachsen gibt es Untersuchungen als Endlagernutzung, diese sind jedoch noch nicht abgeschlossen.

¹Stand: Oktober 2010

Als Alternative zur Endlagerung wird versucht, die abgebrannten Brennelemente aufzubereiten und direkt im Reaktor durch Spaltung zu vernichten (Abbrand) oder die langlebigen Nuklide einzeln zu extrahieren (Partitionierung) und in kurzlebige Nuklide umzuwandeln (Transmutation).

Bis 2005 wurden in Deutschland abgebrannte Brennelemente nach La Hague (Frankreich) und Sellafield (Großbritannien) in Wiederaufbereitungsanlagen gebracht [4]. Dort wurden Uran (U) und Plutonium (Pu) extrahiert und als Brennstoff in sogenannten Mischoxidbrennelementen (MOX) eingesetzt. Diese Brennelemente werden in Leichtwasserreaktoren (LWR) eingesetzt. Aus technischen und sicherheitsrelevanten Gründen dürfen nur 30 - 50 % der Brennelemente im LWR aus MOX-Brennelementen bestehen [5]. Seit 1. Mai 2005 ist die Wiederaufbereitung für deutsche Brennelemente verboten. Die abgebrannten Brennelemente werden daher bis zur Fertigstellung eines Endlagers in dezentralen Zwischenlagern bei den Kernkraftwerken vor Ort gelagert.

1.2 Internationale Projekte zur Transmutation von Aktiniden

Weltweit wird an der Partitionierung und der Transmutation geforscht (P & T) [6]. Dabei werden prinzipiell zwei Konzepte für die Transmutation und Vernichtung der Aktinide mittels Spaltung verfolgt: zum einen in einem kritischen System (Reaktor), zum anderen in einem unterkritischen, beschleunigerbetriebenen System (Accelerator Driven System (ADS)) [7].

In Japan sollen z. B. nur die Minoren Aktinide (MA) aus den abgebrannten Brennelementen extrahiert werden und in einem ADS transmutiert werden [8]. Für Plutonium wird versucht mit den MOX-Brennelementen einen möglichst hohen Abbrand zu erreichen. Dasselbe Konzept untersuchen französische Forscher [5]. Dabei untersuchen beide Teams jedoch nicht nur den Abbrand in LWRs, sondern auch in Hochtemperaturreaktoren (HTR). Diese zeigen bessere Konversionsraten als der LWR [9, 10, 11].

Der HTR ist einer der drei thermischen Reaktoren, die vom Generation-IV-Forum (Gen-IV) für zukünftige Reaktortypen auserwählt worden ist [12]. Neben dem HTR gehören noch die Salzschnmelzreaktoren und Leichtwasserreaktoren mit überkritischen Dampf zu den thermischen Gen-IV-Reaktoren. Diese Reaktoren zeichnen sich durch die Nachhaltigkeit und Wirtschaftlichkeit bei der Energieerzeugung aus. Im Falle eines Störfalls kann die Wärmeabfuhr über passive Systeme gewährleistet werden. Außerdem erfüllen sie hohe Sicherheitsstandards und sind sicher gegen Diebstahl von spaltbarem Material (Proliferation).

Ein weiterer Vorteil liegt in den Brennelementen. Für eine hohe Transmutationsrate und einen hohen Abbrand müssen die Brennelemente lange im Reaktor bleiben; dies

fordert abbrandresistente Materialien. Bei den LWR-Brennelementen bildet sich im Laufe des Abbrands eine Oxidschicht, sodass die Brennelemente nicht mehr optimal gekühlt werden können. Die Brennelemente des HTRs bestehen aus einer Grafitummantelung und werden mit Helium gekühlt, sodass hier ein besseres Abbrandverhalten vorhanden ist.

Sowohl die schnellen als auch die thermischen Reaktoren zeigen Vorteile bei der Transmutation und dem Abbrand von Aktiniden. Viele Aktinide weisen große Spaltquerschnitte bei hohen Energien auf - ein Vorteil für die schnellen Reaktoren. Jedoch können durch Neutroneneinfang im thermischen und epithermischen Energiebereich Aktinide zu spaltbaren Isotopen transmutiert werden. Daher wird weltweit an verschiedenen Szenarien mit unterschiedlichen Reaktoren geforscht, um das Potenzial, das in den einzelnen Nukliden steckt, möglichst effektiv zu nutzen [13, 14]. Systeme werden neutronenphysikalisch als Gesamtsystem berechnet und optimiert [15]. Ferner werden Untersuchungen zu einzelnen Zellrechnungen durchgeführt [16], um das Verhalten des Brennelements im Detail zu analysieren.

Das Energieministerium der USA (U.S. Department of Energy (DOE)) hat einige Regierungsprogramme herausgegeben, u. a. zur Erforschung der neuen Reaktorgeneration „Generation IV Nuclear Energy Systems“ und einem geschlossenen Brennstoffkreislauf „Fuel Cycle Research and Development Program“ [17]. Dabei werden zwei Reaktortypen detailliert betrachtet, zum einen der natriumgekühlte schnelle Reaktor (Sodium cooled Fast Reactor SFR) und den thermischen Hochtemperaturreaktor (Very High Temperature Reactor VHTR). Im aktuellen Projekt „Deep Burn“ werden Berechnungen zum effektiven Abbrand von Plutonium und Aktiniden aus abgebrannten Brennelementen in einem gasgekühlten Hochtemperaturreaktor durchgeführt [18, 19]. Bereits 2003 wurden erste Bestrahlungsversuche an Brennelementen bis zu 747 MWd/kg Schwermetall (SM) Abbrand erfolgreich untersucht [20].

Von der Europäischen Union (EU) werden in verschiedenen Rahmenprogrammen Projekte initiiert, die sich mit der radioaktiven Abfallminimierung und der Transmutation von langlebigen Nukliden beschäftigen [21]. Einige aktuelle Projekte sind in Tab.1.1 aufgelistet.

Bereits im Jahr 2000 wurden Projekte im Rahmen des European High Temperature Reactor Technology Network (HTR-TN) vorgestellt, die sich unter anderem mit der Reaktorphysik in Hochtemperaturreaktoren, der Abfallminimierung und möglichen Brennelement-Zyklen beschäftigten (HTR-N, HTR-N1) [25, 26]. Dabei wurden nicht nur Berechnungen zu laufenden Hochtemperaturreaktoren (siehe auch Tab.1.2), sondern auch Zell-Abbrand-Rechnungen von Pu-Brennelementen mit Abbränden bis zu 1000 MWd/kg SM durchgeführt [27]. Zusätzlich wurden erste Ganzkernreaktorberechnungen, welche mit Pu, das aus abgebrannten LWR-Brennelementen kommt, durchgeführt [28, 29]. In Südafrika werden analoge

Tabelle 1.1: *EU-Projekte zur Transmutation und Partitionierung von hochradioaktivem Abfall.*

Acronym	Beschreibung
PATEROS	P & T in Europa
RED-IMPACT	Einfluss von P & T auf die Entsorgung [22]
EUROPART	Partitionierungstechniken und Prozesse
EUROTRANS	Transmutation in unterkritischen AD-Systemen
ELSY	Transmutation in Blei-gekühlten kritischen Systemen
PuMA	Pu und MA in thermischen gasgekühlten Systemen [23, 24]
LWR-DEPUTY	Hoher Abbrand von Pu in LWR Brennelementen

Untersuchungen unternommen, um Plutonium aus abgebrannten Brennelementen in dem in Südafrika entwickelten Pebble Bed Modular Reactor (PBMR) abzubrennen [30]. Dabei werden nur die Isotope ^{239}Pu und ^{240}Pu in einem Plutonium-Brennelement betrachtet. Dies ist nicht realistisch, da im abgebrannten LWR-Brennelement auch andere Pu-Isotope erzeugt werden. Eine selektive Auswahl von Pu-Isotopen ist sehr kompliziert, falls überhaupt möglich.

1.3 Arbeitsthema und Begriffsdefinitionen

Die bisherigen weltweiten Untersuchungen zeigen, dass es noch keine konkrete Lösung für die Transmutation und Vernichtung der langlebigen Radionuklide aus abgebrannten Brennelementen gibt.

Die Frage, die sich aus all diesen Untersuchungen stellt, ist, ob es möglich ist, einen Generation-IV-Reaktor komplett mit Plutonium und Minoren Aktiniden aus abgebrannten Brennelementen zu betreiben.

Wie entstehen die Aktinide?

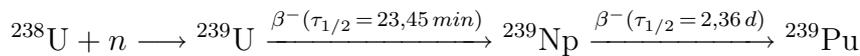
Bereits vor über 10 Jahren (1998) wurde in mehreren Arbeiten die Möglichkeit getestet, Plutonium und Minore Aktinide im Reaktor zu verbrennen [31, 32, 33]. Plutonium kommt in der Natur nicht vor, da es keine stabilen Isotope von Plutonium gibt und die Halbwertszeiten verglichen mit dem Alter der Erde verhältnismäßig klein sind. Ende 2003 waren weltweit 1.830 t Plutonium in 35 Ländern vorhanden, davon 1.675 t aus dem zivilen und 155 t aus dem militärischen Bereich [34]. Die Hauptintention der Vernichtung des Plutoniums war anfangs der Abbau von Atomwaffen [15]. Der Plutoniumvektor in Atomwaffen besteht, im Vergleich zu dem aus den abgebrannten Brennelementen, hauptsächlich aus spaltbaren Plutoniumisotopen. Bei waffenfähigem Plutonium ist der Anteil an absorbierenden Isotopen nicht größer als 7%. Die Menge an Plutonium wächst

96	Cm236 0+ EC,α	Cm237	Cm238 2.4 h 0+ EC,α	Cm239 2.9 h (7/2-) EC,α	Cm240 27 d 0+ EC,α,sf,...	Cm241 32.8 d 1/2+ EC,α	Cm242 162.8 d 0+ α,sf	Cm243 29.1 y 5/2+ EC,α,sf,...	Cm244 18.10 y 0+ α,sf *	Cm245 8500 y 7/2+ α,sf	Cm246 4730 y 0+ α,sf	Cm247 1.56E+7 y 9/2- α	Cm248 3.40E+5 y 0+ α,sf
95	Am235	Am236 EC,α	Am237 73.0 m 5/2(-) EC,α	Am238 98 m 1+ EC,α	Am239 11.9 h (5/2-) EC,α	Am240 50.8 h (3-) EC,β-,α,...	Am241 432.2 y 5/2- α,sf	Am242 16.02 h 1- EC,β- *	Am243 7370 y 5/2- α,sf	Am244 10.1 h (6-) β- *	Am245 2.05 h (5/2)+ β-	Am246 39 m (7-) β- *	Am247 23.0 m (5/2) β-
94	Pu234 8.8 h 0+ EC,α	Pu235 25.3 m (5/2+) EC,α	Pu236 2.858 y 0+ α,sf	Pu237 45.2 d 7/2- EC,α *	Pu238 87.7 y 0+ α,sf	Pu239 24110 y 1/2+ α,sf	Pu240 6563 y 0+ α,sf	Pu241 14.35 y 5/2+ β-,α	Pu242 3.733E+5 y 0+ α,sf *	Pu243 4.956 h 7/2+ β-	Pu244 8.08E+7 y 0+ α,sf	Pu245 10.5 h (9/2-) β-	Pu246 10.84 d 0+ β-
93	Np233 36.2 m (5/2+) EC,α	Np234 4.4 d (0+) EC	Np235 396.1 d 5/2+ EC,α	Np236 154E+3 y (6-) EC,α *	Np237 2.14E+6 y 5/2+ β-	Np238 2.117 d 2+ β-	Np239 2.3565 d 5/2+ β-	Np240 61.9 m (5+) β-,α *	Np241 15.9 m (5/2+) β-,α	Np242 5.5 m (6) β- *	Np243 1.8 m (5/2-) β-		
92	U232 68.9 y 0+ α	U233 1.592E+5 y 5/2+ α,sf	U234 2.455E+5 y 0+ α,n,sf, 0.0055	U235 703.8E+6 y 7/2- α,n,sf, 0.7200*	U236 2.342E7 y 0+ α,sf	U237 6.75 d 1/2+ β-	U238 4.468E+9 y 0+ α,sf 99.2745 *	U239 23.45 m 5/2+ β-	U240 14.1 h 0+ β-				
91	Pa231 32760 y 3/2- α,sf	Pa232 1.31 d (2-) EC,β-	Pa233 26.967 d 3/2- β-	Pa234 6.70 h 4+ β-	Pa235 24.5 m (3/2-) β-	Pa236 9.1 m 1(-) β-	Pa237 8.7 m (1/2+) β-	Pa238 2.3 m (3-) β-					

Abbildung 1.1: Ausschnitt einer Nuklidkarte im Bereich der Kernladungszahlen 91 bis 96 [35].

jedes Jahr um 70t an - hauptsächlich durch den zivilen Bereich. Deshalb häuft sich das Interesse an der Erforschung der Extraktion und Vernichtung des Plutoniums und weiterer langlebiger Nuklide aus abgebrannten Brennelementen.

Plutonium und Minore Aktinide entstehen im Kernreaktor durch Neutroneneinfang an ²³⁸U mit Gamma Emission. ²³⁸U kommt zu über 95 Gewichtsprozent im Brennstoff vor:



$\tau_{1/2}$ ist die Halbwertszeit der einzelnen Isotope. Mittels weiterer (n,γ)-Reaktionen werden Plutoniumisotope mit höherer Neutronenzahl erzeugt (siehe Abb. 1.1). Minore Aktinide, wie Americium und Curium, entstehen durch weitere Reaktionen mit Neutroneneinfang und Betazerfällen.

Für die Endlagerung ist nicht nur die Menge an radioaktiven Material ausschlaggebend, sondern auch die Radiotoxizitäten. Daher wird in verschiedenen Projekten versucht, einzelne Nuklide möglichst effizient zu vernichten [36]. Dabei stellt sich heraus, dass der Abbrand sehr hoch sein muss, um das Toxizitätsniveau drastisch zu senken. In dieser Arbeit soll die Frage geklärt werden, ob die Menge an langlebigen Nukliden und damit die Menge an endzulagerndem Material reduziert werden kann.

Was ist Radiotoxizität?

Die Radiotoxizität ist ein Maß für die Gesundheitsschädlichkeit eines Stoffes. Sie hängt von mehreren Faktoren ab, u. a. von der Aktivität des Stoffes und welche Strahlungsarten mit welcher Halbwertszeit und welcher Energie emittiert werden. Nuklide, die über α-Strahlung in ein stabiles Isotop übergehen, weisen eine überdurchschnittlich hohe Radiotoxizität auf. Daher sind die Nuklide, die in Abb. 1.1 in gelb gekennzeichnet sind, sehr toxisch, wie z. B. ²³⁸Pu, ²⁴¹Am und ²⁴⁴Cm.

Da diese Nuklide eine lange Halbwertszeit aufweisen, ist ein sicherer Einschluss von bis zu einer Million Jahre notwendig.

Für die Bestimmung der Radiotoxizität ist es des Weiteren wichtig, die Art und Weise, wie die Strahlung in den Körper gelangt, die Organexposition, und die biologische Halbwertszeit (die Zeit, die das radioaktive Nuklid im Körper verweilt) zu kennen.

Das radiotoxische Gefährdungspotenzial wird je nach Aufnahme in den Körper in m^3 Wasser (Ingestion) bzw. in m^3 Luft (Inhalation) angegeben. Dies definiert die hypothetische Menge an Wasser bzw. Luft, die notwendig ist, um den Stoff soweit zu verdünnen, dass die Freigrenzen nicht überschritten werden. Die maximalen Grenzwerte werden in den „Empfehlungen der Internationalen Kommission für Strahlenschutz“ festgelegt [37].

In den verschiedenen Arbeiten werden unterschiedliche Reaktorkonzepte verfolgt. Zum Beispiel in der Dissertation von J. H. Bultman [38] werden zweierlei Reaktortypen zur Transmutation verwendet, zum einen der natriumgekühlte schnelle Reaktor und zum anderen der thermische Salzschnmelzereaktor. Der schnelle Reaktor hat eine ähnliche Beladungsstrategie wie der LWR, d.h. es wird über einen Zeitraum abgebrannt und in einer Revision die Brennelemente umgeladen und getauscht. Dies zeigt Probleme auf, da ein großer Reaktivitätsvorhalt notwendig ist. Der thermische Reaktor hingegen hat eine kontinuierliche Beladung und ermöglicht einen Abbrand von 160 MWd/kg SM.

In dieser Arbeit soll der thermische gasgekühlte grafitmoderierte Hochtemperatur-Kugelhaufen-Reaktor betrachtet werden.

Was ist ein Kugelhaufenreaktor?

Die Brennelemente in einem HTR bestehen entweder aus Grafitkugeln oder aus prismatischen Blöcken in denen kleine Schwermetall-Kügelchen eingebunden sind. In dieser Arbeit werden Brennelement-Kugeln betrachtet, in denen Plutonium- und Minore Aktiniden-Isotope aus den abgebrannten LWR-Brennelementen extrahiert und möglichst weit reduziert werden sollen. Die detaillierte Beschreibung der Brennelemente wird in Kap. 3.1 und die des Referenzreaktors in Kap. 3.2 beschrieben.

Der Kugelhaufen-Hochtemperaturreaktor wurde in Deutschland entwickelt [51] und Ende der achtziger Jahre wurde das Konzept für den Bau des HTR-Moduls genehmigt [52].

Das Prinzip eines Kugelhaufenreaktors ist folgendes:

Die Brennelementkugeln durchlaufen den Reaktorkern von oben nach unten und geben währenddessen Leistung ab. Am unteren Ende des Reaktors werden sie entnommen und der Abbrand der Brennelemente wird bestimmt. Ist ein vorgegebenes Abbrandlimit noch nicht erzielt, werden die Brennelemente wieder oben in den Reaktor gegeben. Wurde der Grenzwert des Abbrands erreicht oder überschritten, werden diese Brennelemente aussortiert und durch frische im Kern ersetzt. Die Fließgeschwindigkeit wird durch die Anzahl der entnommenen Kugeln pro Tag festgelegt. Der Vorteil des Reaktors liegt

Tabelle 1.2: Weltweit laufende bzw. stillgelegte Hochtemperaturreaktoren und Projekte zukünftiger Kugelhaufenreaktoren.

 MW_{th} : Megawatt thermische Leistung

T: Versuchs-/Testreaktor; P: Prototyp; K: Kommerzieller Reaktor.

Name	Leistung [MW_{th}]	Ort	Jahr	Typ
HTR-Proteus [39]	$1 \cdot 10^{-3}$	Schweiz	1992 - 1996	T
Arbeitsgemeinschaft Versuchsreaktor (AVR) [40]	46	Deutschland	1967 - 1988	T
Hochtemperaturreaktor HTR-10 [41, 42]	10	China	Seit 2003	T
High Temperature Test Reactor (HTTR) [43, 44]	30	Japan	Seit 1999	T
Peach Bottom I [45]	40	USA	1967 - 1974	T
Dragon Reaktor [46]	14	England	1965 - 1976	T
Thorium-Hochtemperatur- reaktor (THTR) [40]	750	Deutschland	1983 - 1989	P
Fort St. Vrain [47]	842	USA	1977 - 1992	P
High Temperature Reactor Pebble Bed Modular (HTR-PM) [48, 49]	2 x 250	China	...	K
Pebble Bed Modular Reactor (PBMR) [50]	400	Südafrika	...	K

in der homogenen Verteilung verschiedener Abbrände und der daraus resultierenden homogenen Leistungsverteilung.

Weitere Vorteile sind:

- Kein Zeitverlust durch Brennelementwechsel. Die Brennelemente werden während des Betriebs ausgewechselt. Eine Revision wegen Brennelementwechsel ist nicht notwendig. Damit ist eine höhere Verfügbarkeit des Reaktors gewährleistet.
- Inhärente Sicherheit. Durch die passive Abfuhr der Nachwärme wird selbst im Störfall bei richtiger Auslegung die maximal zulässige Brennelement-Temperatur nicht überschritten. Die Freisetzung von Spaltprodukten ist damit ausgeschlossen.

- Keine Bildung von Oxidschichten. Im Vergleich zum LWR-Brennelement bildet sich an der Oberfläche der HTR-Brennelemente keine Oxidschicht, die den Wärmetransport im Laufe des Abbrands verschlechtert. Der Abbrand wird daher nicht durch die Oxidschicht, sondern durch die Spaltgaserzeugung im Brennelement begrenzt.
- Hoher Wirkungsgrad. Durch die im Vergleich zum LWR hohen Austrittstemperaturen ist ein Wirkungsgrad von $> 40\%$ möglich.

Es gibt einige Hochtemperaturreaktoren (siehe Tab.1.2) [53], die als Test- oder Prototypreaktor konzipiert sind. Die meisten sind inzwischen nicht mehr in Betrieb. Nicht alle der aufgelisteten Hochtemperaturreaktoren sind Kugelhaufenreaktoren. Die beiden zuletzt genannten Reaktoren sind aktuelle Projekte für die kommerzielle Nutzung eines Kugelhaufenreaktors.

Wie bereits gezeigt, entsteht durch vorhandenes ^{238}U im Reaktor neues Plutonium. Daher darf für eine Minimierung der Plutoniummasse kein ^{238}U im Brennelement vorhanden sein. Die physikalischen Eigenschaften zwischen Uran und Plutonium unterscheiden sich jedoch in einigen Punkten. Daher muss eine detaillierte Analyse zeigen, wie sich ein rein mit Plutonium-Brennstoff beladener Reaktor verhält.

Unterschiede physikalischer Eigenschaften zwischen Uran- und Plutoniumbrennelementen

In der Arbeit von E. Bende [54] wird der Abbrand von Reaktor-Plutonium gezielt analysiert. Die meisten Analysen werden im einfachen Zellmodell unternommen. Außerdem werden Berechnungen eines kompletten Reaktors im HTR-Modul-Design mit 40 MW_{th} und peu-a-peu (PAP) Nachfüllverfahren analysiert. Dabei zeigt sich die Eigenschaft eines teilweise positiven Temperaturkoeffizienten.

In Abb. 1.2 sind die Absorptionsquerschnitte der im Reaktor hauptsächlich vorkommenden Uran- und Plutoniumisotope aufgezeichnet. Zusätzlich sind die Spaltquerschnitte von ^{235}U , ^{239}Pu und ^{241}Pu dargestellt (gestrichelte Linie). Im thermischen Energiebereich (unter $2,38\text{ eV}$) sind sowohl die Absorptions- als auch die Spaltquerschnitte der meisten Plutoniumisotope höher als die des Urans. Dies hat einige Konsequenzen im physikalischen Verhalten des Plutoniums.

Die Absorptions- und Spaltresonanz liegen der Isotope ^{239}Pu und ^{241}Pu im thermischen jeweils bei der gleichen Energie ($0,2\text{--}0,3\text{ eV}$) und in der gleichen Größenordnung. Im Vergleich dazu ist der Spaltquerschnitt des ^{235}U eine Zehnerpotenz höher als dessen Absorptionsquerschnitt. Dies führt beim Uran zum Dopplereffekt. Bei Plutonium hat dieser Effekt keinen großen Einfluss auf das Temperaturverhalten des Reaktors. Dadurch ist auch das Verhalten des Temperaturkoeffizienten bei Plutonium ein anderes im Vergleich zu Uran. Die Rückwirkung einer Temperaturänderung kann, positiv

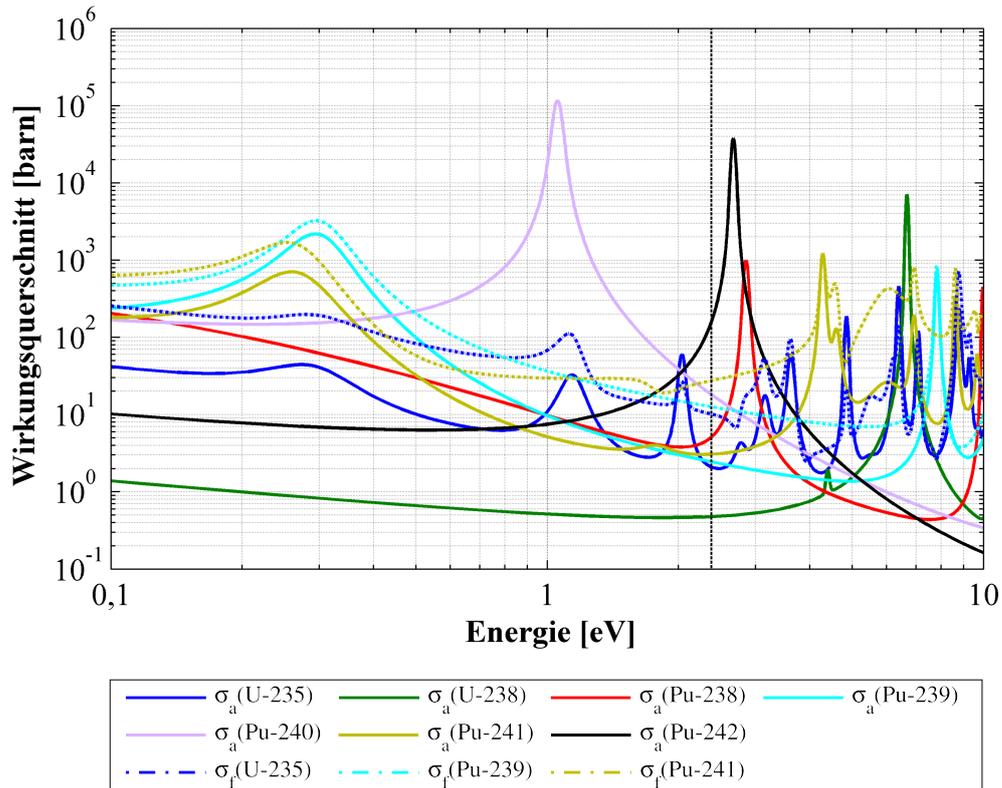


Abbildung 1.2: Spalt- und Absorptionswirkungsquerschnitte von U- und Pu-Isotopen.

sein. Für die Genehmigung eines Reaktors ist ein negativer Temperaturkoeffizient bei Betriebstemperatur notwendig.

Die Querschnitte von Plutonium weisen im thermischen Energiebereich höhere Werte auf als Uran. Dies zeigt sich auch in einem veränderten Neutronenspektrum. Es werden mehr Spaltungen und Absorptionen als bei Uran stattfinden. In wieweit dies Einfluss auf das Verhalten des Reaktors haben wird, muss untersucht werden.

Plutonium erzeugt bei der Spaltung ein anderes Spektrum an verzögerten Neutronen als Uran. Dies hat ebenfalls einen Einfluss auf die Regelung des Reaktors und auf das Verhalten des Reaktors im Reaktivitätsstörfall.

Kapitel 4 beinhaltet die Ergebnisse und die Antworten auf die oben gestellten Fragen. Es wird der maximale Entladeabbrand eines stationären, kritischen Reaktors für die verschiedenen Referenzfälle analysiert. Anschließend werden weitere Parameter der Referenzsysteme, wie Neutronenfluss- und Temperaturverteilung ausgewertet. Die aus bereits früheren Arbeiten erkannten Probleme, wie der Temperaturkoeffizient und die Steuerstabwirksamkeit werden ebenfalls detailliert untersucht. Im Weiteren wird das Verhalten des Reaktors bei Leistungsänderung und im Störfall analysiert. Zu Ende des Kapitels werden schließlich die Reduktion der Nuklidmasse und der Radiotoxizitäten untersucht.

In Kapitel 5 werden Effekte betrachtet, die im Vergleich zum mit Uran-Brennstoff beladenen Reaktor nicht auftreten.

Im abschließenden Kapitel 6 werden mögliche Veränderungen des Referenzsystems betrachtet.

2 Eingesetzte Methoden & Programme

Im folgenden Kapitel werden die für die Berechnung und Auswertung benötigten Programme vorgestellt. Dabei wurden Validierungsrechnungen mit Plutoniumbrennelementen für die Module durchgeführt, die bisher nur für Uranbrennstoff konzipiert waren (z. B. Berechnung des Abbrands und der Nachzerfallsleistung).

2.1 Programmsystem ZIRKUS

Zur Modellierung und Simulation eines HTRs im stationären Zustand wird am Institut für Kernenergetik und Energiesysteme (IKE) das modulare Programmsystem ZIRKUS verwendet [55]. Dieses Programm wurde für die Konzeptentwicklung des 200 MW_{th} HTR-Moduls von Siemens/Interatom entwickelt. Validiert wurde das Programmsystem u. a. mit experimentellen Daten des AVR.

ZIRKUS besteht aus einzelnen Modulen, deren Datenaustausch über ein zentrales Datenarchiv erfolgt. Für jeden Zeitschritt, in dem mehrere Module aufgerufen werden müssen, wird eine stationäre Lösung berechnet. In Abb. 2.1 ist die zeitliche Abfolge

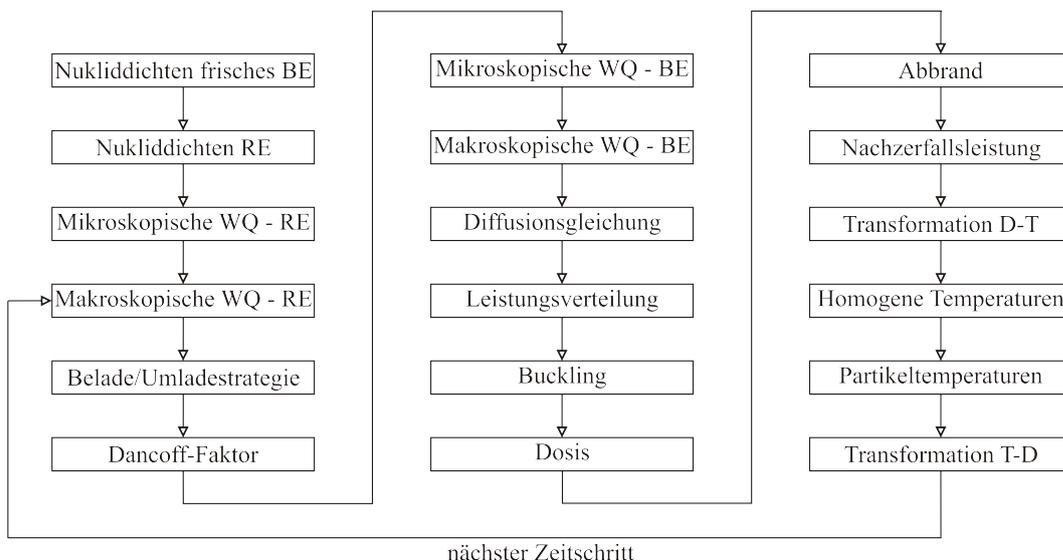


Abbildung 2.1: Zeitliche Abfolge der einzelnen Module in ZIRKUS.

*RE: Reflektor; BE: Brennelement; WQ: Wirkungsquerschnitte;
D: Diffusionsberechnung; T: Temperaturberechnung.*

der einzelnen Module dargestellt, die im Folgenden kurz beschrieben werden. In runden Klammern nach der Modulbeschreibung steht „neues Modul“ für die Implementierung und Validierung eines neuen Moduls, und „erweitertes Modul“ für eine Erweiterung des vorhandenen Moduls. Beides war für die Berechnung eines mit Plutonium und Minore Aktiniden beladenen Reaktor notwendig.

- **Nukliddichten frisches BE** (erweitertes Modul)

Das Modul zur Berechnung und Abspeicherung der Nukliddichten für ein frisches Brennelement nennt sich KUGEL. Als Input dienen Brennelementgeometrie und Anreicherung.

Da das Modul für Brennelemente mit Thorium und Uran konzipiert war, wurde eine Erweiterung für Plutonium und Minore Aktinide vorgenommen. In einem Excel-Programm können die Isotopenanteile eingetragen und die berechneten Nukliddichten über ein Modul namens DATINP im Datenarchiv gespeichert werden.

- **Nukliddichten RE**

Für die Reflektorzonen wird eine mikroskopische Wirkungsquerschnittsdatenbasis vorbereitet. Das Modul DATINP speichert notwendige Grafitdichten mit unterschiedlichen Borverunreinigungen, die im Spektralprogramm genutzt werden.

- **Mikroskopische WQ - RE** (neues Modul)

Dieses Spektralprogramm (MICROX2) berechnet aus den homogenen Grafit- und Bordichten des vorherigen Moduls Spektren an verschiedenen Temperaturstützstellen. Damit wird eine mikroskopische Weniggruppen-Wirkungsquerschnittsbasis erzeugt.

- **Makroskopische WQ - RE**

Im Modul WQRFL werden die Wirkungsquerschnitte des Reflektors für die jeweilige Temperatur in der Reflektorzone interpoliert und die makroskopischen Wirkungsquerschnitte berechnet. Ferner können Verunreinigungen durch äquivalente Borzusätze und Strömungskorrekturen für Zonen mit Gaskanälen berücksichtigt werden.

- **Belade/Umladestrategie**

Für die Simulation der Brennelementbeladung und -umsetzung im Reaktor ist das Modul NIVERM verantwortlich. Es berechnet die Nukliddichten der verschiedenen Umläufe und mittelt diese in der jeweiligen Zone. Nach jedem Zeitschritt werden die Nukliddichten der einzelnen Brennelementumläufe um eine axiale Zone nach unten geschoben. Die Nukliddichten der Brennelemente in den untersten Zonen werden pro Umlauf gemittelt und anschließend als homogenen Nuklidvektor in der obersten Zone hinzugegeben. Nach der letzten Rezyklisierung wird der abgebrannte durch einen frischen Nuklidvektor ersetzt.

Zusätzlich können unterschiedliche Belademöglichkeiten, reine Grafitkugeln und unterschiedliche Fließgeschwindigkeiten berücksichtigt werden.

- **Dancoff-Faktor**

Der Dancoff-Ginsburg-Korrekturfaktor, der im Modul NEWA berechnet wird, berücksichtigt die Wahrscheinlichkeit, dass ein Neutron die Brennstoffzone verlässt und in eine weitere Brennstoffzone eintritt und stößt, ohne zwischendurch am Moderator gestreut zu werden [56].

- **Mikroskopische WQ - BE** (neues Modul)

Das neue Spektralprogramm MICROX2 [57] ist eine erweiterte und aktualisierte Version des MICROX-Programms [58]. Erklärung und Validierung dieses Moduls finden sich in Kap. 2.2.

MICROX2 löst die Transportgleichung in einer doppelt heterogenen Geometrie und bestimmt effektive homogenisierte Weniggruppen-Wirkungsquerschnitte für die Diffusionsberechnung. Der Dancoff-Faktor (Modul NEWA) korrigiert die eindimensionale Zellberechnung auf das reale mehrdimensionale, unendliche Zellgitter. Die Leckage der Neutronen im Zellgitter wird durch energieabhängige Bucklings berücksichtigt (Modul ZBUCK).

Die Grenze zwischen schnellem und thermischen Energiebereich liegt bei 2,38 eV und wird für die komplette ZIRKUS-Berechnung übernommen. Die Wirkungsquerschnittsbibliothek im Bereich zwischen 300 K und 2000 K wurde auf der Grundlage der Wirkungsquerschnittsdatenbasis JEFF 3.1 erstellt [59].

- **Makroskopische WQ - BE**

Bei der Berechnung der makroskopischen Wirkungsquerschnitte (Modul MAGRU) wird die Diffusionskonstante um den Strömungsterm in der Kugelschüttung korrigiert (Behrenskorrektur [60, 61]). Verunreinigungen im Brennelementgrafit können berücksichtigt werden.

- **Diffusionsgleichung**

Im Modul HBLOCK wird die zweidimensionale Neutronendifusionsgleichung für den Kern- und den Reflektorbereich gelöst [62]. Als Ergebnis werden die Neutronenflussverteilung und der effektive Multiplikationsfaktor des Systems ausgegeben.

Der Diffusionskoeffizient für den Hohlraum oberhalb der Kugelschüttung wird nach dem Verfahren von Gerwin und Scherer berechnet [63]. Der Hohlraum wird dabei als eine Region ohne Absorption und Streuung betrachtet; nur die richtungsabhängigen Diffusionskonstanten, die von der Höhe und dem Radius des Hohlraums abhängen, werden betrachtet.

- **Leistungsverteilung**

Die Berechnung der Leistungsverteilung und Normierung auf die gewünschte Reaktorleistung erfolgen im Modul VORNEK.

- **Buckling**

Für die Berücksichtigung der Leckage werden im Modul ZBUCK auf Basis der Lösung der Neutronendiffusionsgleichung die energieabhängigen Bucklings zonenweise berechnet.

- **Dosis** (neues Modul)

Die Neutronendosis, die das Grafit im Brennelement während der kontinuierlichen Bestrahlung im Reaktor erhält, wird im Modul DOSIS bestimmt.

- **Abbrand** (erweitertes Modul)

Das Modul SBURN berechnet die Erzeugung und Vernichtung der einzelnen Isotope in den Abbrandzonen zu jedem Zeitschritt. Zu Beginn dieser Arbeit wurden explizit 16 Aktinide und 69 Spaltprodukte betrachtet. Dies ist für ein System mit Uran-Brennelementen ausreichend. Für Brennelemente mit Plutonium und Minoren Aktiniden müssen weitere Isotope berücksichtigt werden. Daher wurde das Modul auf 22 Aktinide und 78 Spaltprodukte erweitert.

- **Nachzerfallsleistung**

Die Nachzerfallsleistung des Reaktors wird bei einer bestimmten Leistungs- und Abbrandverteilung für 65 Zeitschritte bestimmt. Die Module NZW/NZWAUS wurden für den HTR-Modul mit Uran-Brennelementen konzipiert. Für andersartige Brennelemente unterscheidet sich die Spaltproduktausbeute.

In einem Vergleich mit dem Programm ORIGEN 2.2 (siehe Kap. 2.3) wurde überprüft, ob die berechnete Nachzerfallsleistung im konservativen Sinn für die Plutonium- und Minore Aktiniden-Brennelemente ausreichend ist. ORIGEN 2.2 berücksichtigt nahezu alle Nuklide bei einer Abbrandrechnung und gibt daher einen genauen Aufschluss über das Nuklidinventar. Zuerst wird in ZIRKUS ein stationärer Gleichgewichtszustand mit Plutonium-Brennelementen berechnet. Anschließend werden die Zonenflüsse in ORIGEN 2.2 eingegeben und analog zu ZIRKUS wird das Durchfließen der Brennelemente durch den Reaktor und deren Rezyklierung simuliert.

Für die Uran-Brennelemente werden im Modul NZW/NZWAUS zu hohe Werte für die Nachzerfallsleistung berechnet. Vermutlich wurden hierbei bereits Unsicherheiten bei der Berechnung berücksichtigt. Im Pu-beladenen Reaktor werden in der ZIRKUS-Berechnung ebenfalls höhere Werte ausgegeben. Für eine erste konservative Abschätzung im Störfall kann daher die in NZW/NZWAUS berechnete Nachzerfallsleistung genutzt werden. Exakte Ergebnisse und Berücksichtigung von Unsicherheiten können nicht gemacht werden.

- **Transformation D-T**

Das Thermohydraulikprogramm THERMIX/KONVEK weist ein im Vergleich zum Diffusionsprogramm verändertes Maschengitter auf. Das Modul LDTHMX transformiert die Leistungsverteilung aus dem Gitter des Diffusionsmoduls in das Gitter des Thermohydraulikmoduls.

- **Homogene Temperaturen**

THERMIX/KONVEK ist ein zweidimensionales Thermohydraulikprogramm [64]. Im ersten Teil wird die Wärmeleitung, im zweiten Teil der Wärmeübertrag durch Konvektion berechnet. Dieses Modul berechnet die Brennstoff- und Moderatortemperaturen in jeder Thermohydraulik-Zone.

- **Partikeltemperaturen**

Die Brennelemente der unterschiedlichen Umläufe erzeugen unterschiedlich viel Leistung. Für die Berechnung der Temperatur spielt dies eine entscheidende Rolle. Das Modul HTM berechnet mittels eines heterogenen Brennelementmodells explizit die Wärmeleitgleichung für die Partikel unter Berücksichtigung der unterschiedlichen Leistungsabgaben [65]. Des Weiteren kann die Veränderung der Wärmeleitfähigkeit des Grafits durch die Neutronendosis berücksichtigt werden.

- **Transformation T-D**

TZIRK transformiert die in THERMIX berechneten Temperaturen zurück in das Maschennetz des Moduls HBLOCK zur Lösung der Diffusionsgleichung. Dabei werden die mittleren Temperaturen in den Zonen, sowohl im Reaktorkern als auch im Reflektor, bestimmt.

2.2 Spektralprogramm MICROX 2

Für die Berechnung der effektiven homogenisierten Weniggruppen-Wirkungsquerschnitte für die Diffusionsrechnung wurde bis jetzt das Programm MICROX verwendet. Dieses Programm wurde 1972 entwickelt und berücksichtigt die doppelte Heterogenität der Brennelemente (siehe Kap. 3.1). Jedoch zeigt es auch einige Vereinfachungen, z. B. in der Behandlung der Resonanzen. Die Wirkungsquerschnittsdatenbasis ist seit der Entwicklung nicht mehr aktualisiert worden. Durch die damaligen geringen Speicherkapazitäten ist die Anzahl der Nuklide, Spektralzonen und temperaturabhängigen Wirkungsquerschnitte begrenzt.

Am Paul-Scherer-Institut (PSI) in der Schweiz wurde das Spektralprogramm MICROX erweitert - MICROX2 - und bezüglich der HTR-Brennelemente mittels Experimente am Proteus-Reaktor validiert. Für die Nutzung am IKE wurde für MICROX2 eine neue Wirkungsquerschnittsdatenbasis mit mehr Nukliden und Temperaturstützstellen auf Grundlage der aktuellen Wirkungsquerschnittsdatenbasis JEFF 3.1 erstellt.

MICROX2 löst die B_1 -Neutronentransportgleichung in einer Zweizonengeometrie. Die erste Zone ist das Schwermetall-Partikel mit seinen vier Schichten, eingebettet in der Grafitmatrix; die zweite Zone entspricht der äußeren schwermetallfreien Grafitzone. Die Stoßwahrscheinlichkeiten des unendlichen Gitters werden unter Einbeziehung des dazugehörigen Dancoff-Ginsburg-Faktors berechnet. Der Selbstabschirmungseffekt in den Partikeln wird über die Methode nach Wälti berücksichtigt [58]. Über energieabhängige Bucklings wird die Leakage der Neutronen in die Berechnung mit einbezogen.

MICROX2 ist ein Multigruppen-Code mit drei Energiebereichen. Der schnelle Energiebereich zwischen 14,9 MeV und 2,38 eV wird in 92 Gruppen unterteilt. Im aufgelösten Resonanzbereich liegt die Wirkungsquerschnitts-Bibliothek in einem feinen Energienetz von über 20.000 Energiepunkten vor (7,10 keV bis 2,38 eV). Hierbei wird die Bremsgleichung für die komplette Isotopenzusammensetzung der Resonanzabsorber berechnet. Dadurch werden auch Abschirmungseffekte von Resonanzen unterschiedlicher Isotope und energetisch benachbarte Resonanzen berücksichtigt. Der thermische Energiebereich, unterhalb von 2,38 eV, wird in 101 Energiegruppen eingeteilt. Es liegen sieben Temperaturstützstellen im Bereich zwischen 300 K und 2000 K vor.

MICROX2 wird mittels eines Interfaces in das ZIRKUS-Programmsystem eingebunden und über einen Systemaufruf als selbstständiges Programm gestartet. Durch diese Kopplung können die aus anderen ZIRKUS-Modulen abgespeicherten Daten auf dem Archiv für MICROX2 abgerufen und die in MICROX2 erzeugten Ergebnisse im Archiv abgespeichert werden.

Validierung von MICROX 2

Da die alten Wirkungsquerschnitte nicht mehr für das neue Programm verwendet werden können, ist eine Überprüfung von MICROX 2 mit MICROX nicht möglich.

Für eine Validierung steht das Monte-Carlo-Programm MCNP 5 (siehe Kap. 2.6) zur Verfügung. Damit kann die Multiplikationskonstante k_{inf} der Brennelemente im unendlichen Gitter berechnet und mit dem Ergebnis aus MICROX 2 verglichen werden. In Tab. 2.1 stehen die mit MICROX 2 und MCNP 5 berechneten Multiplikationskonstanten für frische Brennelemente mit verschiedenen Schwermetallen. Der Unterschied der mit MICROX 2 und MCNP 5 berechneten Werte ist weniger als ein halbes Prozent und zeigt damit eine gute Übereinstimmung.

Weitere Ergebnisse mit Weniggruppen-Wirkungsquerschnitten und gemessenen Spektren von GeneralAtomic [66] konnten von MICROX 2 ebenfalls validiert werden.

Zusammen mit dem Abbrandprogramm ORIGEN 2.2 (siehe Kap. 2.3) konnten Zellabbrandrechnungen verglichen werden. Gute Übereinstimmungen waren bei dem internationalen HTR-N1-Benchmark [67] möglich. In einem weiteren aktuellen internationalen NEA-Benchmark [68] wurden Abbrandrechnungen von Uran-Brennelementen durchgeführt. Internationale Ergebnisse wurden noch nicht

Tabelle 2.1: Vergleich der Multiplikationskonstanten k_{inf} berechnet mit MICROX 2 und MCNP 5 in einem unendlichen Gitter aus identischen Brennelementkugeln.

k_{inf}	MICROX 2	MCNP 5
Uran	1,53935	1,53158 \pm 0,0015
Plutonium	1,26927	1,27380 \pm 0,0005
Minore Aktinide	1,13855	1,14314 \pm 0,0001

veröffentlicht¹. Institutsintern zeigt ein Vergleich zwischen SCALE, MCNP 5 und MICROX 2 gute Übereinstimmung zwischen den einzelnen Programmen.

In Abb. 2.2 werden die berechneten Neutronenspektren $E \cdot \phi(E)$ über der Energie eines frischen Uranbrennelements der unterschiedlichen Programme dargestellt. Es zeigt sich, dass innerhalb der Linienbreite alle drei Programme die gleichen Neutronenspektren liefern [69]. Auch bei höheren Abbränden ergeben sich keine Änderungen.

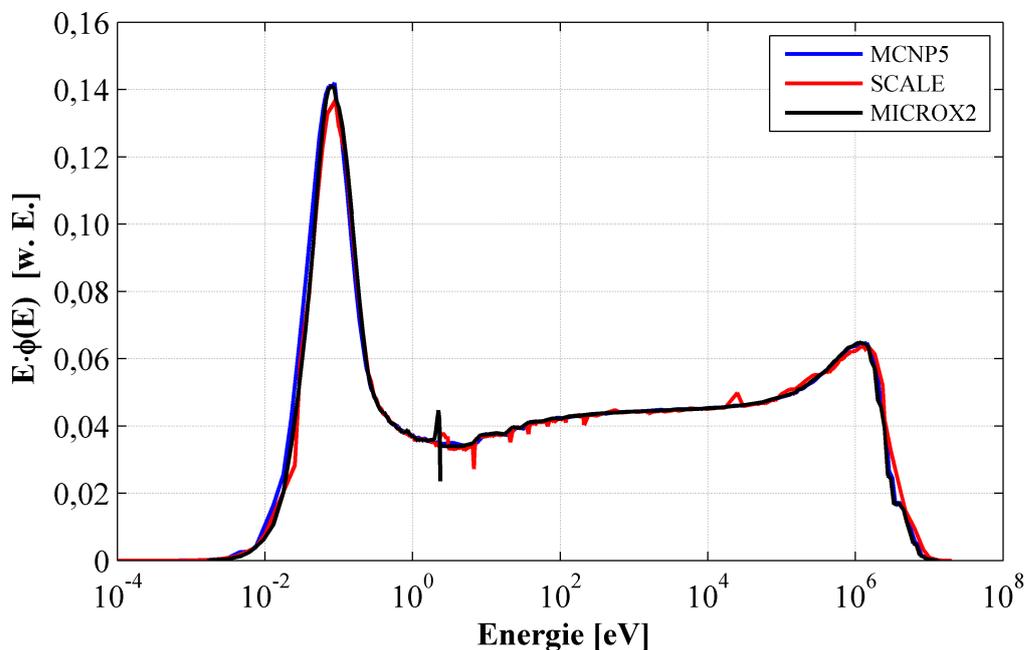


Abbildung 2.2: Neutronenspektrum eines frischen U-Brennelements im Vergleich zwischen MCNP 5, SCALE und MICROX 2.

¹Stand: Oktober 2010

2.3 Abbrandprogramm ORIGEN 2.2

Das Abbrandprogramm ORIGEN 2.2 wurde vom „Oak Ridge National Laboratory“ in den USA entwickelt [70]. Es berechnet den Aufbau, Zerfall und Verlauf von radioaktiven Nukliden in Zeitintervallen mit konstanter Neutronenflussdichte oder konstanter Leistung. Der Vorteil dieses Programms im Vergleich zu anderen Abbrandmodulen, wie „SBURN“ oder „ABBRAND“ ist, dass sehr viel mehr Nuklide (ca. 1.300 Nuklide) in der Abbrandbibliothek vorhanden sind. Dadurch ist eine Validierung von Programmen mit weniger Nukliden möglich. Des Weiteren können für die einzelnen Nuklide die Nachzerfallsleistung und Radiotoxizitäten zu jedem Abbrandzeitpunkt und nach Brennelemententnahme bestimmt werden (siehe Kap. 4.5).

Kopplung mit MICROX 2

Bei der Kopplung von ORIGEN 2.2 mit MICROX 2 wird für jeden berechneten Zeitschritt die Nuklidverteilung unter Berücksichtigung der Wirkungsquerschnittsänderung über dem Abbrand berechnet. Dabei werden die effektiven Eingruppen-Wirkungsquerschnitte im Spektralprogramm erzeugt und in der ORIGEN 2.2-Bibliothek aktualisiert. Anschließend erfolgt die Berechnung eines Abbrandzeitschritts in ORIGEN 2.2. Die daraus resultierenden Nukliddichten werden in MICROX 2 gegeben, womit neue Wirkungsquerschnitte erzeugt werden. So wird die Veränderung des Neutronenspektrums und die damit resultierende Veränderung des Wirkungsquerschnittes durch die unterschiedlichen Nukliddichten während des Abbrands berücksichtigt.

Zusammen mit einer konstanten Neutronenflussdichte aus der ZIRKUS-Rechnung kann mit dieser Programmkopplung die Dichten und die dazugehörigen Radiotoxizitäten nahezu aller Nuklide beim Entladeabbrand bestimmt werden (siehe Kap. 4.5).

Diese Kopplung wurde mit verschiedenen Programmen verglichen und verifiziert [69, 71].

2.4 Diffusionsprogramm CITATION

CITATION [72] ist ein Programm zur Lösung der Neutronen-Diffusionsgleichung auf Basis des Finite-Differenzen-Verfahrens. Es hat einige Fähigkeiten im Vergleich zum Modul HBLOCK im Programmsystem ZIRKUS, die zusätzlich benötigt werden.

Durch die Resonanzen haben Neutronen unterschiedlicher Energie unterschiedlichen Einfluss auf die Reaktivität im Reaktor (siehe Kap. 5.4). Dieser Einfluss ist proportional zum adjungierten Neutronenfluss, der in CITATION berechnet werden kann.

Außerdem können mit CITATION nicht nur zweidimensionale, sondern auch dreidimensionale Probleme berechnet werden (siehe Kap. 5.3). Für das vorliegende Problem besteht die einzige Nicht-Zylindersymmetrie in den Steuerstäben. Durch den Vergleich einer zwei- und einer dreidimensionalen Rechnung kann die zweidimensionale Modellierung der Steuerstäbe validiert werden.

2.5 Zeitabhängiges Thermohydraulikprogramm ATTICA3D

Das Programmsystem ZIRKUS ist nur für stationäre bzw. quasi-stationäre Probleme konzipiert. Damit können nur sehr langsam ablaufende Veränderungen im Reaktor simuliert werden. Für Störfälle, in denen die verzögerten Neutronen eine Rolle spielen, sind Berechnungen in kleinen Zeitschritten notwendig.

Für dieses Problem steht das Thermohydraulikprogramm ATTICA3D (**A**dvanced **T**hermal hydraulics **T**ool for **I**n-vessel and **C**ore **A**nalysis **3**-dimensional) zur Verfügung [73]. Dieses Programm hat ein Modul zur Lösung der Punktkinetik implementiert. Zur Berechnung der zeitabhängigen Temperaturen wird die Ausgangsleistungsverteilung benötigt. Im Punktkinetikmodell wird über die ebenfalls vorgegebenen Temperaturkoeffizienten das gegebene Leistungsprofil um einen berechneten Faktor abgeändert. Eine Verschiebung des Leistungsprofils, durch Effekte wie Steuerstabziehen, kann jedoch nicht berücksichtigt werden.

2.6 Monte Carlo Methode MCNP 5

Die Lösung der Diffusionsgleichung ist in Hohlräumen und an Grenzflächen mit großer Neutronenflussänderung nicht lösbar. Die Lösung der Transportgleichung berücksichtigt die winkelabhängige Neutronenflussdichte und die anisotrope Streuung und ist daher bei diesen Problemstellungen exakter. Die Neutronentransportgleichung kann u. a. mit der Monte Carlo-Methode berechnet werden.

Das Programm MCNP 5 (**M**onte **C**arlo **N**-**P**article Code Version **5**) [74] simuliert individuelle Neutronenwege, von dessen Freisetzung (meist durch Spaltung) bis zum Einfang (meist durch Absorption oder bei Austritt aus dem betrachteten Bereich). Der Ort und die Art der Reaktion werden durch Wahrscheinlichkeiten vorgegeben, die durch energieabhängige Reaktionsquerschnitte dargestellt werden. Die Querschnitte liegen in einem kontinuierlichen Energiebereich zwischen $1 \cdot 10^{-11}$ MeV und 20 MeV auf Grundlage von JEFF 3.1 vor. Entsprechend der Wahrscheinlichkeiten werden bestimmte Ereignisse (Streuung, Spaltung, Einfang, ...) „gewürfelt“ - ähnlich dem Glückspiel in der gleichnamigen Stadt „Monte Carlo“.

MCNP 5 wird in dieser Arbeit für die Validierung von MICROX2 eines einzelnen Brennelements im unendlichen Gitter genutzt (siehe Kap. 2.2), zur Analyse der Neutronenflussdichte in einem Cluster aus Brennelementen mit unterschiedlichen Abbränden (siehe Kap. 5.2) und zur dreidimensionalen Analyse der Steuerstabwirksamkeit (siehe Kap. 4.2.4).

Des Weiteren liegt eine mit einem Abbrandprogramm namens ABBRAND [75] gekoppelte Version des MCNP 5 vor. ABBRAND ist ein vereinfachtes Abbrandmodul, welches explizit 106 Nuklide berücksichtigt. Ähnlich zur Kopplung zwischen MICROX 2 und ORIGEN 2.2 werden die berechneten Wirkungsquerschnitte aus MCNP 5 in das Abbrandmodul übergeben, welches dann für den nächsten Zeitschritt die Nukliddichten berechnet. Diese werden dann zurück an MCNP 5 übergeben. Diese Kopplung wurde als Vergleich zur Kopplung zwischen ORIGEN 2.2 und MICROX 2 hinzugezogen [69].

3 Beschreibung des Referenzsystems

In dieser Arbeit wird ein Referenzreaktor mit drei verschiedenen Brennelementtypen analysiert. Die notwendigen Parameter und Geometrien für den Reaktor und die Brennelemente werden im Folgenden charakterisiert.

3.1 Brennelement

3.1.1 Geometrie und Anreicherung

In Abb. 3.1 sind die Brennelemente des Kugelhaufenreaktors dargestellt. Es sind sechs Zentimeter große Grafitkugeln, in denen das Schwermetall als Oxid in kleine Kügelchen eingebunden ist. Der Grafit dient als Brennelementbeschichtung und als Moderator. Die HTR-Brennelemente sind im Vergleich zu den LWR-Brennelemente für höhere Temperaturen ausgelegt. Des Weiteren ist selbst im Störfall der Rückhalt der Spaltprodukte gegeben.

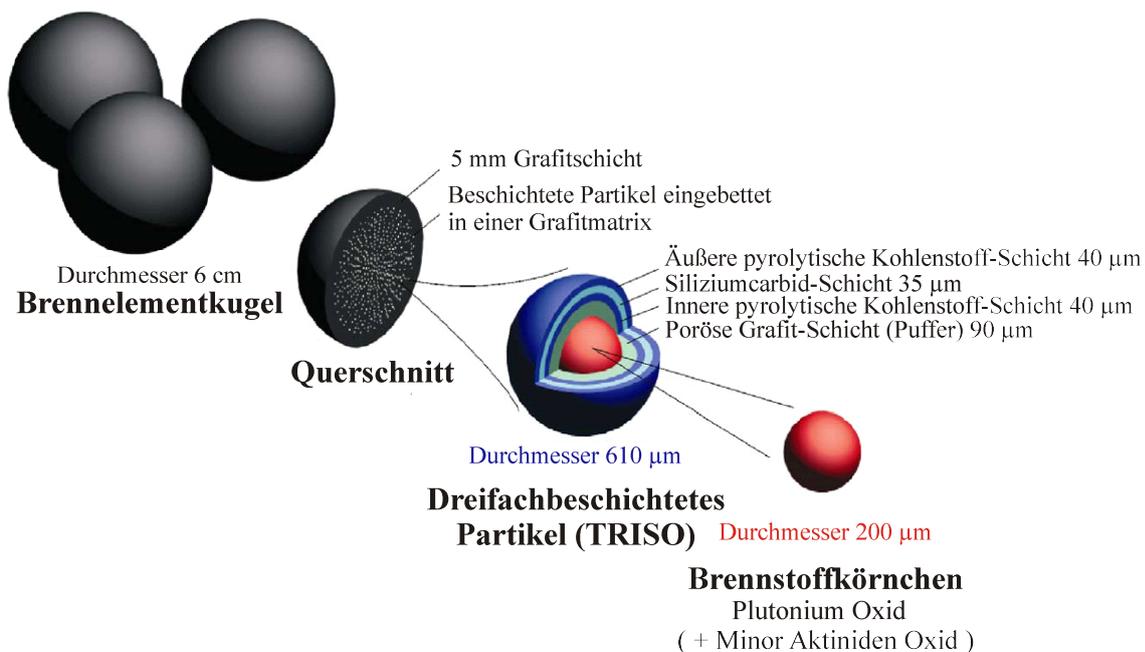


Abbildung 3.1: Darstellung des kugelförmigen Brennelements für einen Kugelhaufenreaktor (Abgeänderte Form aus [76]).

Tabelle 3.1: *Parameter der Referenzbrennelemente.*

		Pu / MA	U
Brennelementradius	cm	3,0	
Dicke der brennstofffreien Zone	cm	0,5	
Partikeldurchmesser	μm	200	500
Schwermetallverbindung	-	PuO_2 / MAO_2	UO_2
Schwermetallgehalt pro Brennelement	g	2,0	9,0
Schwermetalloxiddichte	g/cm^3	10,89	10,4
Material der Schichten	-	C / C / SiC/ C	
Dicke der Schichten	μm	90 bzw. 95 / 40 / 35 / 40	
Dichte der Schichten	g/cm^3	1,05 / 1,9 / 3,18 / 1,9	
Anzahl Partikel im Brennelement	-	48.817	14.734

Es gibt drei unterschiedliche Referenzbrennelemente; eines mit Plutonium (Pu), eines mit Plutonium und Minoren Aktiniden (MA) und als Vergleich ein Uran-Brennelement (U). Die Geometrieparameter (siehe Tab. 3.1) und Isotopenzusammensetzung (siehe Tab. 3.2) für das Pu- und MA-Brennelement werden aus der Definition des PuMA-Projekts [77] entnommen, für das U-Brennelement aus dem PBMR-Benchmark [78].

Das Schwermetall wird als Oxidverbindungen zu kleinen Kügelchen geformt. Diese Partikel haben je nach Definition einen Durchmesser von $200\ \mu\text{m}$ bzw. $500\ \mu\text{m}$ und werden mehrfach beschichtet. Die innerste Schicht ist eine poröse Grafitsschicht (C). Durch die Porosität kann das im Partikel erzeugte Spaltgas aufgenommen und somit der Druck im Partikel begrenzt werden. Für Uran wird, da das Partikel größer ist, eine $5\ \mu\text{m}$ dickere Pufferschicht angenommen. Dieser Schicht folgen eine pyrolytische Kohlenstoffschicht (C), anschließend eine Schicht aus Siliziumcarbid (SiC) und eine weitere pyrolytische Kohlenstoffschicht (C). Wegen dieser vielen Schichten werden die kleinen Kügelchen auch „Coated particle“ (beschichtete Partikel) genannt. Das Siliziumcarbid ist temperatur- und druckstabil und nur in sehr geringem Maße gasdurchlässig und dient damit als innere Schutzbarriere für Spaltprodukte.

Für Uranoxid-Partikel (UO_2) wurden temperatur- und bestrahlungsabhängige Experimente zur Stabilität der beschichteten Partikel durchgeführt. Dabei wurden Grenztemperaturen von $1200\ ^\circ\text{C}$ im stationären Fall und kurzzeitig im Störfall bis zu $1600\ ^\circ\text{C}$ ermittelt [79]. Im stationären Fall verringert sich bei höheren Temperaturen die Diffusionsdurchbruchzeit der gasförmigen Spaltprodukte. Ein sicherer Einschluss kann dadurch nicht mehr gewährleistet werden. Im Störfall bricht bei längerfristigen Temperaturen über $1600\ ^\circ\text{C}$ die SiC-Schicht auf, so dass die Spaltprodukte aus den Brennelementen diffundieren und in den Primärkreis gelangen. Die Reaktorkernausslegung wird daher so gewählt, dass die auftretenden Temperaturen

Tabelle 3.2: *Isotopenverteilung in den Referenzbrennelementen (in Gewichtsprozent).*

	Pu	MA	U
^{238}Pu	2,59	2,9	-
^{239}Pu	53,85	49,5	-
^{240}Pu	23,66	23,0	-
^{241}Pu	13,13	8,8	-
^{242}Pu	6,78	4,9	-
^{237}Np	-	6,8	-
^{241}Am	-	2,8	-
^{242m}Am	-	0,02	-
^{243}Am	-	1,4	-
^{235}U	-	-	9,6
^{238}U	-	-	90,4

weit unter den Grenztemperaturen für den stationären Fall und für den Störfall sind.

Für Plutoniumoxid-Partikel (PuO_2) wurden vereinzelte Experimente durchgeführt [20, 31, 53]. Die Studien werden jedoch nicht so detailliert, dass eine definierte Temperatur bestimmt worden wäre, bei der die Pu-Partikel brechen. Daher werden in dieser Arbeit die gleichen Grenztemperaturen wie für ein U-Brennelement angenommen. Die Schwermetallpartikel werden mit Grafit vermischt und zu einer 5 cm großen Kugel geformt. Je nach Schwermetallgehalt sind zwischen 10.000 und 50.000 Partikel in einem Brennelement. Abschließend wird diese Matrix von einer 0,5 cm dicken reinen Grafitschicht umgeben.

In Tab. 3.2 werden für die Referenzfälle die Isotopenanteile im Schwermetall angegeben. Der zu Pu und MA gehörige Isotopenvektor stammt aus einem abgebrannten LWR-Brennelement, mit einem Abbrand von 41,2 MWd/kg SM und einer Abklingzeit von fünf Jahren.

3.1.2 Modellierung in MICROX 2

Für die Berechnung der Multiplikationskonstante und des mikroskopischen Weniggruppenwirkungsquerschnitts eines Brennelements kann das Spektralprogramm MICROX2 genutzt werden. Hierbei wird das Brennelement in drei Regionen unterteilt. Region 1A symbolisiert das Schwermetallpartikel; Region 1B alles außerhalb des Schwermetallpartikels - die Beschichtungen und die Matrix. In Region 2 befindet sich die 0,5 cm dicke schwermetallfreie Grafitzone.

Als Input benötigt das Programm die Dichten und Temperaturen in den jeweiligen Regionen, die Volumenverhältnisse und den Dancoff-Faktor.

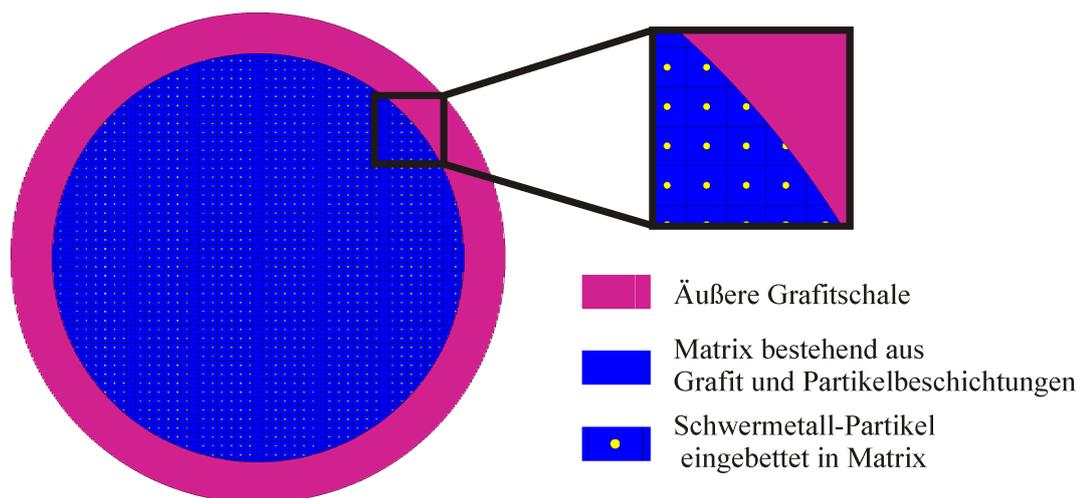


Abbildung 3.2: Modellierung eines kugelförmigen Brennelements mittels MCNP 5.

3.1.3 Modellierung in MCNP 5

In Abb. 3.2 wird das MCNP 5-Modell eines einzelnen Brennelements dargestellt.

Analog zur MICROX 2-Modellierung wird das Partikel explizit modelliert, die Nuklidichten der Beschichtungen werden mit den Dichten der Matrix homogenisiert. Die geometrische Lage der Partikel in der Matrix werden als einfach kubisches Gitter modelliert. Für eine individuelle Auslenkung der Partikel im Gitter kann eine sogenannte „URAN“-Karte im Input genutzt werden, mit der eine zufällige Anordnung der Partikel simuliert werden kann. Für die Bestimmung der Multiplikationskonstante eines Brennelements wird eine reflektierende Randbedingung angenommen.

Ein weiteres Modell beinhaltet ein Cluster von sechs Brennelemente mit unterschiedlichen Abbränden mit reflektierender Randbedingung. Damit können in einem Verbund aus Brennelementen die Spektren in den einzelnen Brennelementen bestimmt werden (siehe Kap. 5.2).

Bei der Modellierung des kompletten Reaktors muss der Füllfaktor von 0,61% berücksichtigt werden. Im Modell eines einfach kubischen Gitters liegt ein geringerer Faktor vor. Daher werden die Einheitszelle und das Brennelement so angeglichen, dass der Füllfaktor und die Masse an Grafit pro Einheitszelle der Modellierung des Reaktors entspricht.

3.2 Reaktorgeometrie

3.2.1 Geometrie und Parameter

Der Referenzreaktor ist ein Kugelhaufenreaktor mit Innensäule analog dem Konzept des PBMR in Südafrika [50]. In Abb. 3.3 wird die Geometrie des PBMR als Referenzsystem dieser Arbeit dargestellt. Der Reaktorkern besteht aus einer elf Meter hohen zylindrischen mit Brennelementkugeln gefüllte Ringzone. Die Brennelemente weisen eine mittlere Kugelschüttungsdichte von 61 % auf, d. h. es befinden sich ca. 450.000 Brennelemente im Reaktor. Der Innenradius der Kugelschüttungszone beträgt 1,00 m und der Außenradius 1,85 m. Die Kugelschüttung wird durch Grafitblöcke im inneren und äußeren Bereich begrenzt. Diese dienen als Reflektor.

Die Leistung des HTRs ist durch die maximal erlaubte Temperatur der Brennelemente im stationären Gleichgewicht und im Kühlmittelverluststörfall begrenzt. Im Störfall darf, bei passiver Kühlung, eine Partikeltemperatur von 1600 °C nicht überschritten werden (siehe Kap. 3.1.1). Durch die Grafitinnensäule ist bei einer Befüllung mit U-Brennelementen eine Leistung von bis zu 400 MW_{th} möglich. Diese Leistung wird auch für die Referenzfälle mit Pu- und MA-Brennelementen verwendet.

Die Kühlung erfolgt über das chemisch und neutronenphysikalisch inerte Gas Helium. Bei einem Druck von 90 bar und einer Einlasstemperatur von 500 °C wird es von oben durch die Kugelschüttung geleitet. Mit einer mittleren Auslasstemperatur von 900 °C wird das Gas unterhalb der Kugelschüttung gemischt und anschließend direkt auf eine Gasturbine gegeben - dieser Kreislauf nennt sich Brayton Cycle.

Für die Regelung des Reaktors sind im äußeren Reflektor zwei Steuerstabbänke zu je 12 Steuerstäben mit 7,17 m Länge aus Borcarbid vorhanden. Bei komplett eingefahrenen Steuerstäben, teilen sich die beiden Bänke auf. Die erste Bank erreicht ihre Endstellung wenn das obere Ende der Steuerstäbe mit der Oberkante des Reaktors abschließt. Die zweite Bank wird komplett eingefahren, so dass das untere Ende am unteren Ende der Kugelschüttung ankommt. Dabei entsteht im mittleren Bereich der Kugelschüttung eine Überlappung beider Steuerstabbänke (siehe auch Abb. 4.13). Für die Steuerstabstellung im stationären Gleichgewicht werden beide Steuerstabbänke 1,50 m unterhalb der Oberkante der Kugelschüttung positioniert (Definition aus der PuMA-Projektbeschreibung). Prinzipiell orientiert sich die Gleichgewichtsstabstellung am gewünschten Lastwechsel (siehe Kap. 4.3.1).

In der Mittelsäule befinden sich Bohrungen für kleine Absorberkugeln (Klaks), die für die Langzeitabschaltung des Reaktors notwendig sind. Die Klaks bestehen aus Borcarbid und haben einen Durchmesser von 1 cm.

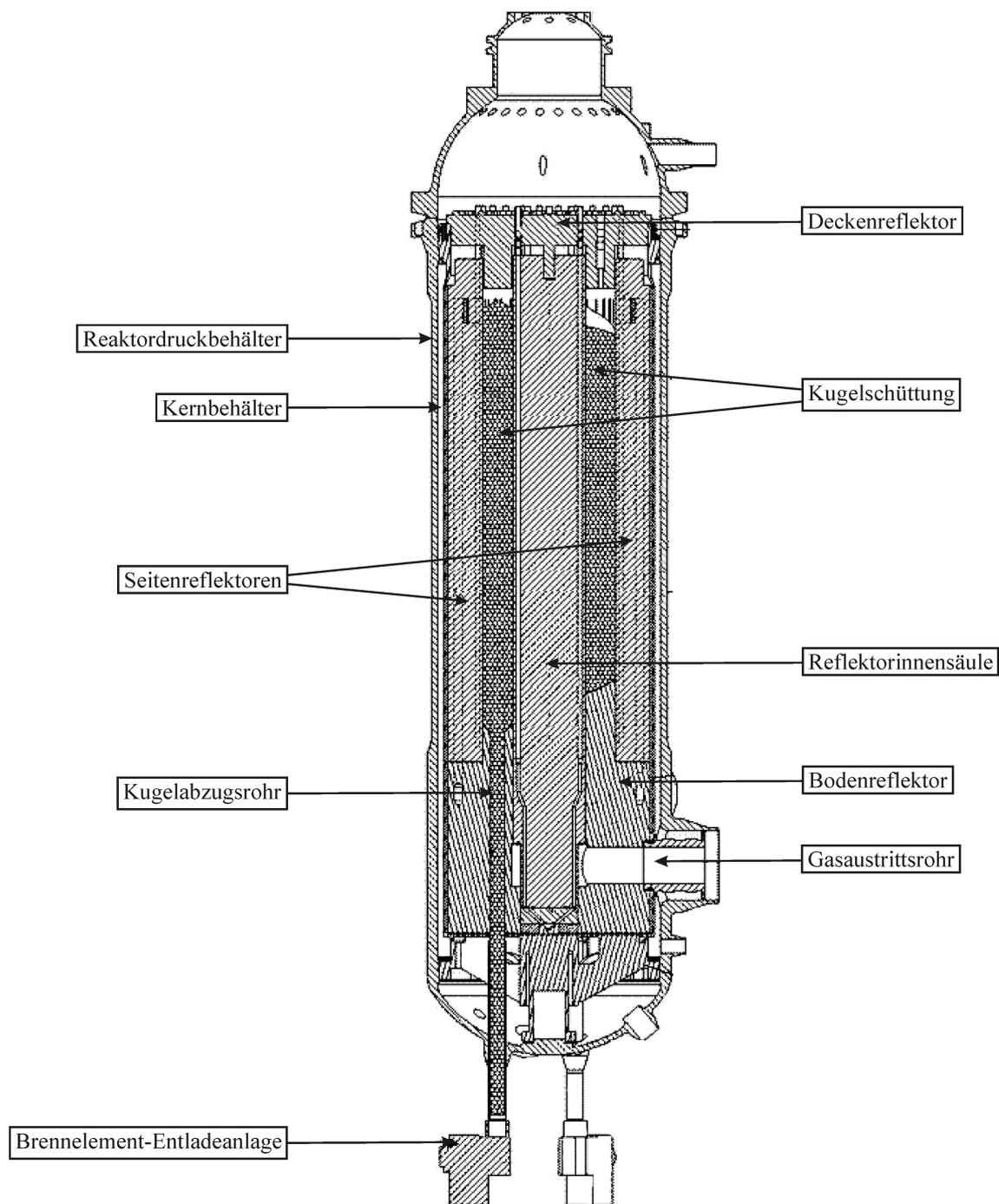


Abbildung 3.3: Reaktorgeometrie des PBMRs (Abgeänderte Form aus [80]).

Folgende Vereinfachungen werden durchgeführt, da diese keinen relevanten Einfluss auf die in Kap. 1 gegebenen Fragestellungen haben:

- Kein Konus an der Oberkante der Brennelementschüttung.
- Keine Modellierung der Brennelement-Austrittsrohre und den dazugehörigen Konen.
- Keine Berücksichtigung der unterschiedlichen Brennelement-Fließgeschwindigkeiten. (In der Realität laufen die Brennelemente am Reflektor durch die Reibung langsamer durch den Reaktorkern als in der Mitte der Kugelschüttung). Die Fließgeschwindigkeit ist so gegeben, dass die Brennelemente sechsmal rezykliert werden.

3.2.2 Modellierung in ZIRKUS

Für die Berechnung des PBMRs in ZIRKUS wird dieser als zweidimensionales, zylindersymmetrisches Modell abgebildet (siehe Abb. 3.4).

Der Reaktorkern wird in sogenannte Spektralzonen unterteilt. Dies sind Zonen im Reaktor mit gleicher Temperatur in denen mittels MICROX2 die notwendigen effektiven Weniggruppenquerschnitte berechnet werden. Diese Spektralzonen werden in je zwei Abbrandzonen unterteilt, in der die Abbrandrechnungen durchgeführt werden. Die Nummern in Abb. 3.4 entsprechen den 220 Abbrandzonen. Die Lösung der Diffusionsgleichung wird für ein feineres Maschennetz berechnet, welches in der Abbildung nicht eingezeichnet ist. Der thermohydraulische Teil der Berechnung hat eine leicht unterschiedliche Zoneneinteilung, da dort die unterschiedlichen Porositäten, Wärmeleitfähigkeiten und Materialien berücksichtigt werden müssen.

Die einzige nicht zylindersymmetrische Komponente sind die 24 Steuerstäbe, die Klaks und die dazugehörigen Löcher im Reflektor. Die Löcher werden in beiden Fällen über eine homogenisierte Ringzone modelliert, in der die Grafitdichte um den Anteil der Löcher vermindert wird (Zonen 321 - 345 und 433 - 457). Die Steuerstäbe werden durch eine entsprechende Menge an Bor-Absorber, das in die jeweilige Zone hinzugefügt wird, modelliert (Zone 571). Das Boräquivalent muss in der Berechnung die gleiche Wirksamkeit haben, wie die korrekt modellierte dreidimensionale Lösung (siehe auch Kap. 5.3). Die im PuMA-Projekt vorgegebene Bor-Teilchendichte für die homogenisierte Ringzone beträgt $6,0 \cdot 10^{18} \text{ cm}^{-3}$.

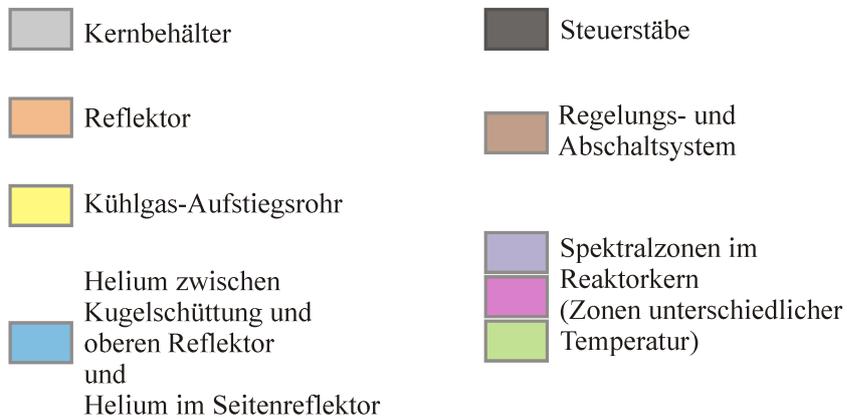
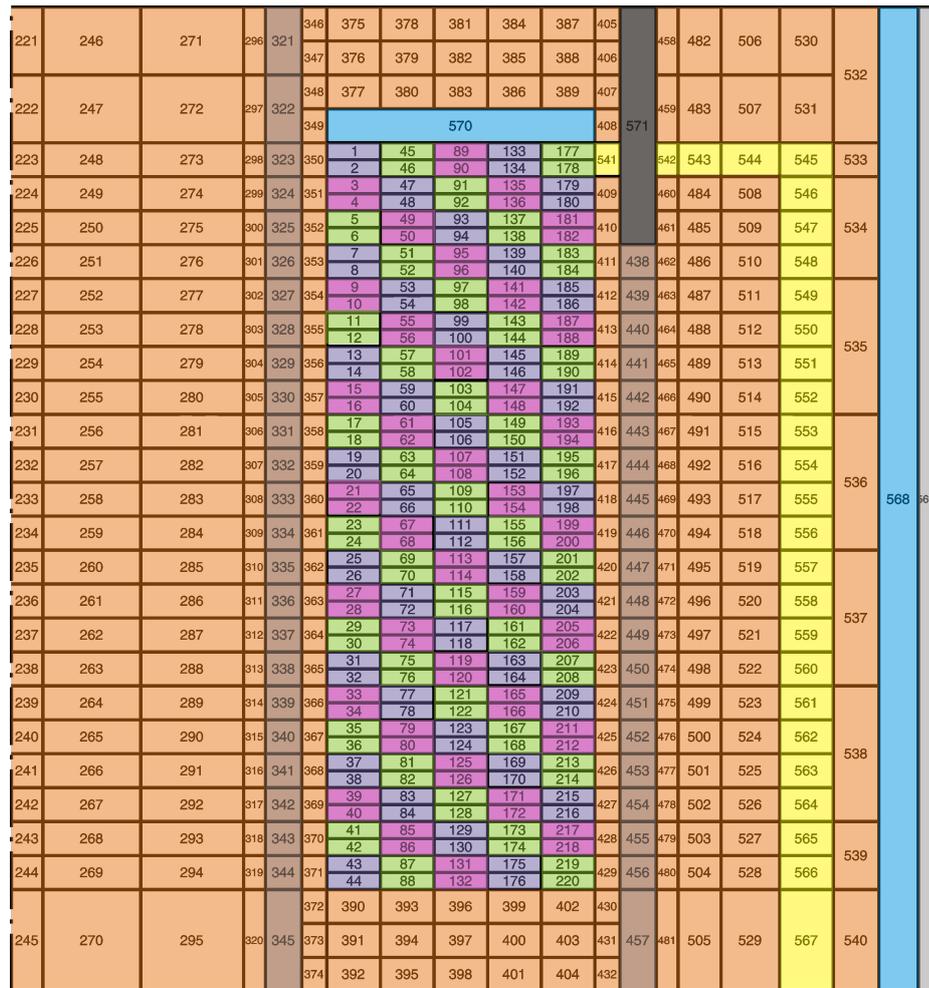


Abbildung 3.4: Modell des Referenzreaktors in ZIRKUS.

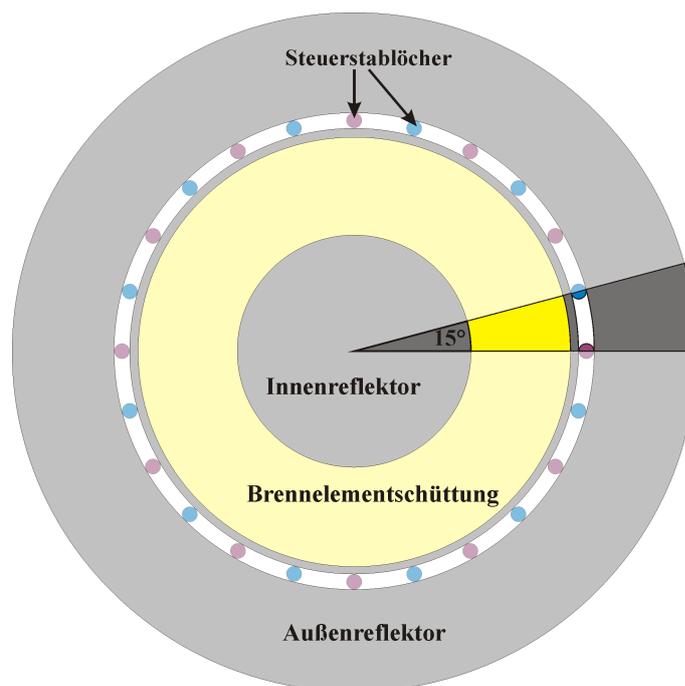


Abbildung 3.5: *Horizontaler Schnitt eines dreidimensionalen Modells für den Referenzreaktor für CITATION.*

3.2.3 Modellierung in CITATION

Mit dem Diffusionsprogramm CITATION wird sowohl ein zwei- als auch dreidimensionales Modell erstellt. In Kap. 5.4 werden im Zweidimensionalen die adjungierten Neutronenflüsse berechnet. Dort wird ein zum ZIRKUS-Maschennetz identisches Gitter angenommen. Die dazugehörigen makroskopischen Wirkungsquerschnitte werden aus ZIRKUS entnommen und aufbereitet.

Für die dreidimensionale Modellierung wird das zweidimensionale Maschennetz übernommen und um die Winkelabhängigkeit erweitert. Dabei kann die Symmetrie der beiden Steuerstabbänke ausgenutzt werden. In Abb. 3.5 ist ein horizontaler Schnitt durch den Reaktor dargestellt. Markiert ist ein 15° -Segment, welches durch Symmetrie den kompletten Reaktor repräsentiert. Die beiden Steuerstabbänke können voneinander unabhängig bewegt werden. An den Grenzen des Segments liegt eine reflektierende Randbedingung an. Das Segment wird in 30 Maschen unterteilt. Für den Vergleich mit der dreidimensionalen Berechnung von MCNP5 werden je zehn Maschen zu 5° zusammengefasst. Das Boräquivalent für die einzelnen Steuerstäbe wird über einen Vergleich zur MCNP5-Berechnung angeglichen (siehe Kap. 5.3).

3.2.4 Modellierung in MCNP 5

In MCNP 5 wird ein 360° Modell für den PBMR entworfen. Durch dieses komplette Modell muss keine Symmetrie berücksichtigt werden. Jeder Steuerstab kann einzeln und unabhängig von den anderen Steuerstäben verfahren werden. In Abb. 3.6 ist ein vertikaler Schnitt durch die Mitte des Reaktors und ein horizontaler Schnitt durch den Deckenreflektor dargestellt. Diese Bilder werden von MCNP 5 erzeugt. Die graphische Oberfläche hat es nicht ermöglicht, die komplette Kugelschüttung mit den einzeln modellierten Partikeln darzustellen. Daher ist der Kugelschüttungsbereich durch die Abbrandzonen nur schematisch durch farblose Zonen dargestellt. Die Modellierung der Brennelemente wurde bereits in Kap. 3.1.3 erläutert.

Die Nuklidichten und Temperaturen werden aus der ZIRKUS-Berechnung entnommen. Die Steuerstäbe werden im Detail mit den Verbindungen zwischen

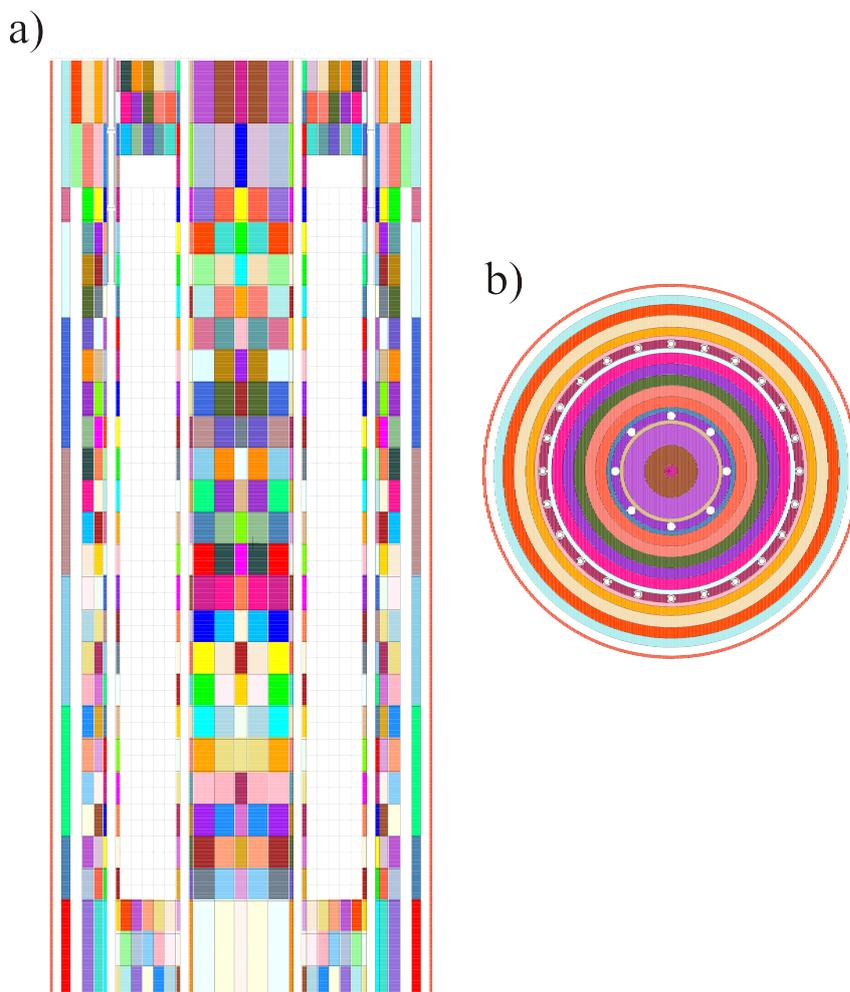


Abbildung 3.6: a) Vertikaler Schnitt durch die Reaktormitte und b) horizontaler Schnitt im Deckenreflektor des dreidimensionalen MCNP 5-Modells des Referenzreaktors.

den einzelnen Steuerstabsegmenten nachgebildet. Die Bornuklidichten sind mit einer Borcarbid-Dichte (B_4C) von $2,2\text{ g/cm}^3$ gegeben.

Für die Auswertung wird in einem sogenannten „mesh tally“ das Maschennetz für das Neutronenflussprofil angegeben. In radialer Richtung ist es identisch mit dem ZIRKUS und CITATION Gitter. In axialer Richtung wird aus Gründen des schnelleren Rechnens mit höherer Statistik ein Maschennetz von 50 cm Höhe angenommen. In azimuthaler Richtung wird der komplette Reaktor in 5° -Segmente eingeteilt. Für eine bessere Statistik werden die homologen Segmente zusammengefasst und gemittelt.

4 Ergebnisse

Im Folgenden werden die in Kap.3 beschriebenen Referenzfälle analysiert. Für die Systeme mit Pu-Brennelementen und MA-Brennelementen wird der maximale mittlere Entladeabbrand bestimmt und die Frage beantwortet, in wieweit sich der Toxizitätsverlauf der entladenen Brennelemente gegenüber den frischen Brennelementen reduzieren lässt. Die stationären Fälle werden mit einem mit U-Brennelementen beladenen Reaktor bezüglich der Brennstofftemperaturen und der Leistungs- und Neutronenflussverteilungen verglichen. Außerdem wird das Verhalten der unterschiedlich beladenen Reaktoren bei Leistungsänderungen und bei verschiedenen Störfällen analysiert.

4.1 Maximaler mittlerer Entladeabbrand

Um den maximalen mittleren Entladeabbrand zu bestimmen, muss mit den gegebenen Definitionen ein stationäres, kritisches System berechnet werden. Dies ist erreicht, wenn sich pro Umladeschritt der Brennelemente die Multiplikationskonstante k_{eff} nicht verändert und die Nukliddichten, Leistungsdichten und Temperaturen in einer Zone konstant bleiben.

Es gibt kein Entlade- bzw. Wiederbelade-Abbrandkriterium in ZIRKUS. Die Brennelemente werden eine bestimmte Anzahl Mal rezykliert und anschließend entladen. Durch die radiale Leistungsverteilung erhalten die Brennelemente unterschiedliche Abbrände. Um eine statistische Verteilung der Brennelemente der verschiedenen Umläufe zu erhalten, werden die Nukliddichten der untersten Zonen im jeweiligen Umlauf gemittelt und gleichmäßig in die obersten Zonen gegeben. Angegeben wird der mittlere Entladeabbrand aller entladenen Brennelemente. Der Abbrand wird über die Verweilzeit der Brennelemente (BE) im Reaktor bestimmt:

$$\text{Abbrand} = \frac{\text{Verweilzeit} \cdot \text{Leistung}}{\text{Anzahl BE im Reaktor} \cdot \text{Schwermetallgehalt pro BE}}$$

In Abb. 4.1 wird der Verlauf der Multiplikationskonstante des mit Pu-Brennelementen beladenen Reaktors für verschiedene Verweilzeiten der Brennelemente im Reaktor über der Anzahl der Iterationsschritte in ZIRKUS dargestellt. Hierbei entspricht ein Iterationsschritt in ZIRKUS einem Zeitschritt.

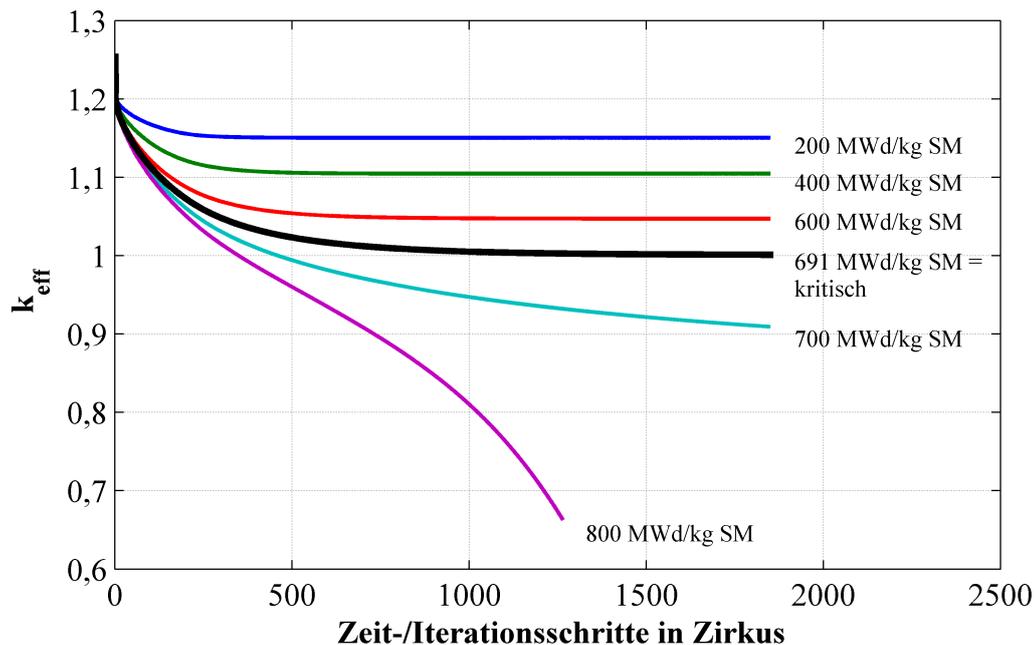


Abbildung 4.1: Verlauf der Multiplikationskonstante k_{eff} von einem anfänglich mit frischen Pu-Brennelementen beladenen Reaktor iteriert bis ins stationäre Gleichgewicht bei unterschiedlichen BE-Verweilzeiten im Reaktor.

Pro Iterationsschritt werden die Nukliddichten für die jeweilige Rezyklierung eine Abbrandzone nach unten geladen. Zu Beginn wird der Reaktor mit frischen Brennelementen befüllt. Mit der vorgegebenen Verweilzeit eines Brennelements im Reaktor wird das stationäre Gleichgewicht berechnet. Die Anzahl der Iterationsschritte bis zum stationären Reaktor hängt vom Entladeabbrand ab. Je höher der Entladeabbrand, desto stärker ändert sich das Spektrum im Vergleich zum Spektrum mit frischen Brennelementen und desto mehr Iterationsschritte werden benötigt, bis der Reaktor ins Gleichgewicht kommt.

In der Realität wird der Reaktor beim Anfahren mit Brennelementen mit hohem Absorberanteil, reinem Grafit oder gegebenenfalls auch mit weniger Spaltstoff beladen, sodass der Reaktor von Anfang an, unter Berücksichtigung der Steuerstäbe, kritisch ist. Der berechnete Verlauf der Multiplikationskonstante ist daher nicht realitätstreu wiedergegeben und nur der Endwert repräsentiert das System im Gleichgewicht.

Der erste Abfall des k_{eff} nach einem Zeitschritt resultiert aus dem Aufbau des Isotops ^{135}Xe , einem starken Neutronenabsorber. Bei einem mittleren Entladeabbrand von 200 MWd/kg SM ist der Reaktor mit einem Endwert von $k_{\text{eff}} = 1,18$ überkritisch. Für eine Verweilzeit von 1800 Tagen, die umgerechnet einem Entladeabbrand 800 MWd/kg SM entspricht, wird die Berechnung bei einem k_{eff} von weniger als 0,7 vom Programm abgebrochen.

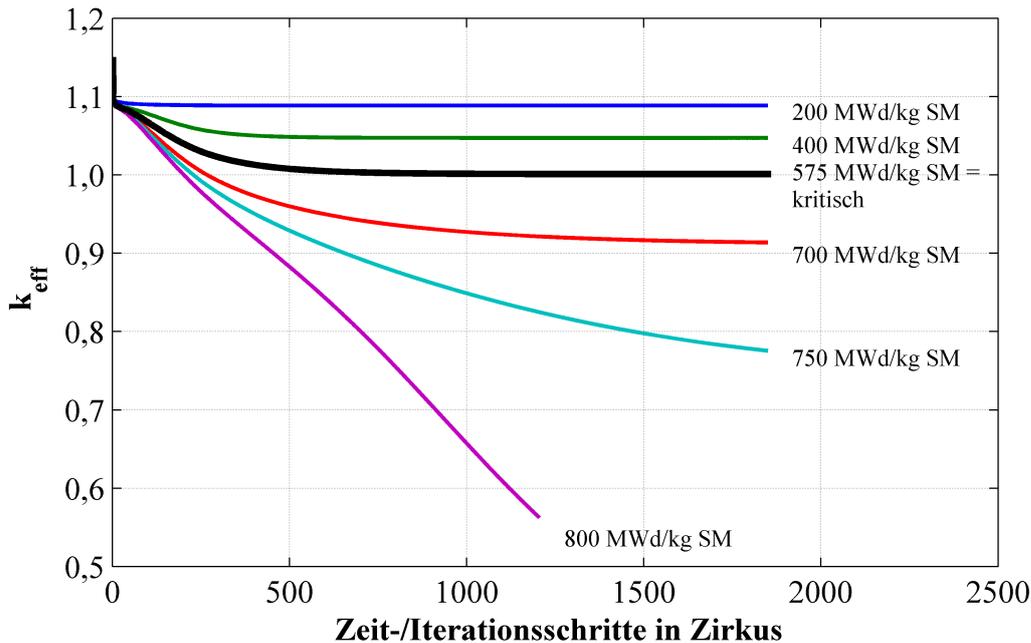


Abbildung 4.2: Verlauf der Multiplikationskonstante k_{eff} von einem anfänglich mit frischen MA-Brennelementen beladenen Reaktor iteriert bis ins stationäre Gleichgewicht bei unterschiedlichen BE-Verweilzeiten im Reaktor.

Die Erklärung liegt in den Brennelementen, die bereits einen hohen Abbrand erreicht haben. Sie leisten nur noch einen geringen Beitrag zur Reaktorleistung, müssen jedoch für den gewünschten Entladeabbrand noch im Reaktor verweilen. Da der Entladeabbrand sehr hoch gewählt ist, steigt der Anteil an hochabgebrannten, nur noch in geringem Maße leistungserzeugenden Brennelemente im Reaktor. Der Anteil an frischen Brennelementen, die den Großteil der Reaktorleistung erzeugen müssen, sinkt. Es ist nicht mehr möglich, die Kettenreaktion im Reaktor aufrecht zu erhalten.

Ein kritisches Gleichgewicht eines mit Pu-Brennelementen beladenen Reaktors wird bei einem mittleren Entladeabbrand von 691 MWd/kg SM erreicht. Das entspricht einer mittleren Verweilzeit von ungefähr 1560 Tagen im Reaktor.

Für den mit MA-Brennelementen beladenen Reaktor ergibt sich ein ähnliches Verhalten (siehe Abb. 4.2). Durch die größere Menge an stark absorbierenden Isotopen, wie z. B. ^{242m}Am und ^{244}Am wird in diesem Fall der kritische Entladeabbrand bereits bei 575 MWd/kg SM erreicht. Dies entspricht einer Verweilzeit von knapp 1300 Tagen.

Der mit U-Brennelementen beladene PBMR erreicht den kritischen Zustand bei einem mittleren Entladeabbrand von 105 MWd/kg SM.

Diese drei kritischen Reaktoren sollen in den folgenden Kapiteln miteinander verglichen werden.

4.2 Analyse des Gleichgewichtsystems

4.2.1 Neutronenfluss-, Leistungs- und Temperaturverteilung

Die Leistungs- und Neutronenflussverteilungen sowie die Brennstofftemperaturen der verschiedenen Systeme werden in diesem Kapitel verglichen.

In Abb.4.4 sind die thermischen Neutronenflüsse im Reaktor dargestellt. In allen drei mit den verschiedenen Brennelementen beladenen Reaktoren ist der thermische Neutronenfluss an der Grenze zum Innenreflektor am größten. Dies liegt zum einen an den zurückgestreuten thermischen Neutronen aus dem Reflektor und zum anderen (im Vergleich zum Außenreflektor) an der geringeren Leckage. Für den mit U-Brennelementen beladenen Reaktor nimmt der Neutronenfluss in der Mitte der Kugelschüttung auf die Hälfte des Neutronenflusses im Maximum an der Reflektorgrenze ab. Der Neutronenfluss im mit Pu-Brennelementen beladenen Reaktor nimmt an dieser Stelle um 60 % ab, beim MA-Brennelementen beladenen Reaktor sogar um 70 %.

Die Erklärung hierfür liefern die Wirkungsquerschnitte. In Abb.4.3 sind die Spalt- und Absorptionswirkungsquerschnitte der Plutonium- und Uranisotope bis zu einer Energie von 10 eV dargestellt.

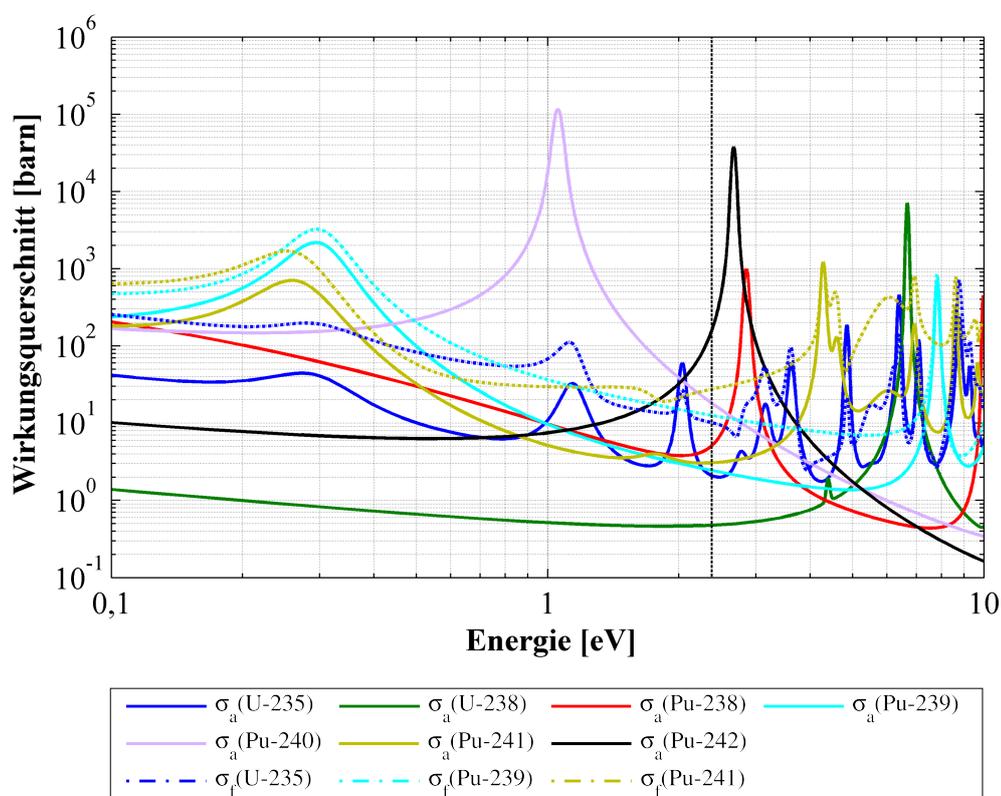


Abbildung 4.3: Spalt- und Absorptionswirkungsquerschnitte von U- und Pu-Isotopen im Energiebereich bis 10 eV.

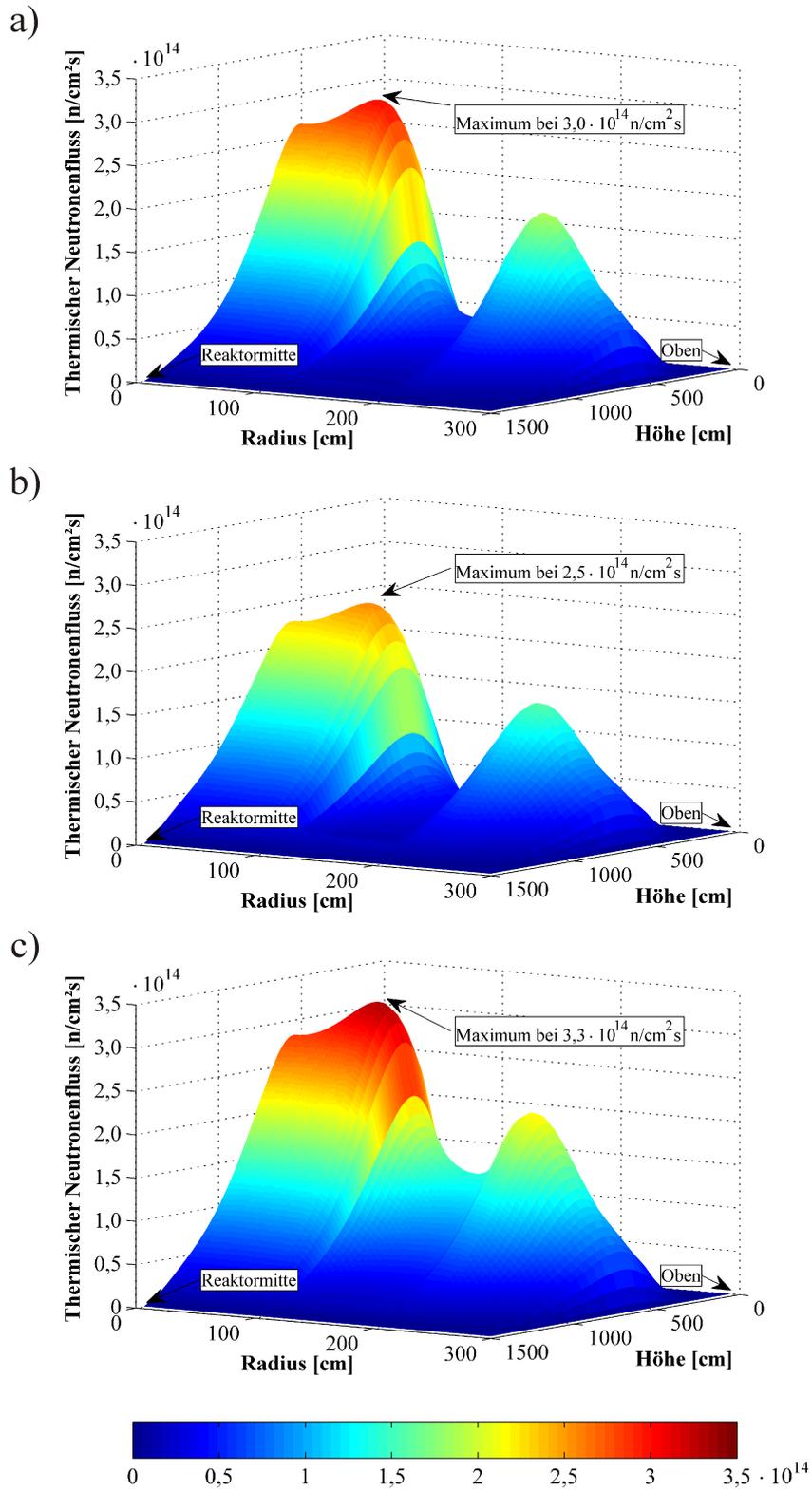


Abbildung 4.4: Thermischer Neutronenfluss für einen mit a) Pu-, b) MA- und c) U-Brennstoff beladenen Reaktor.

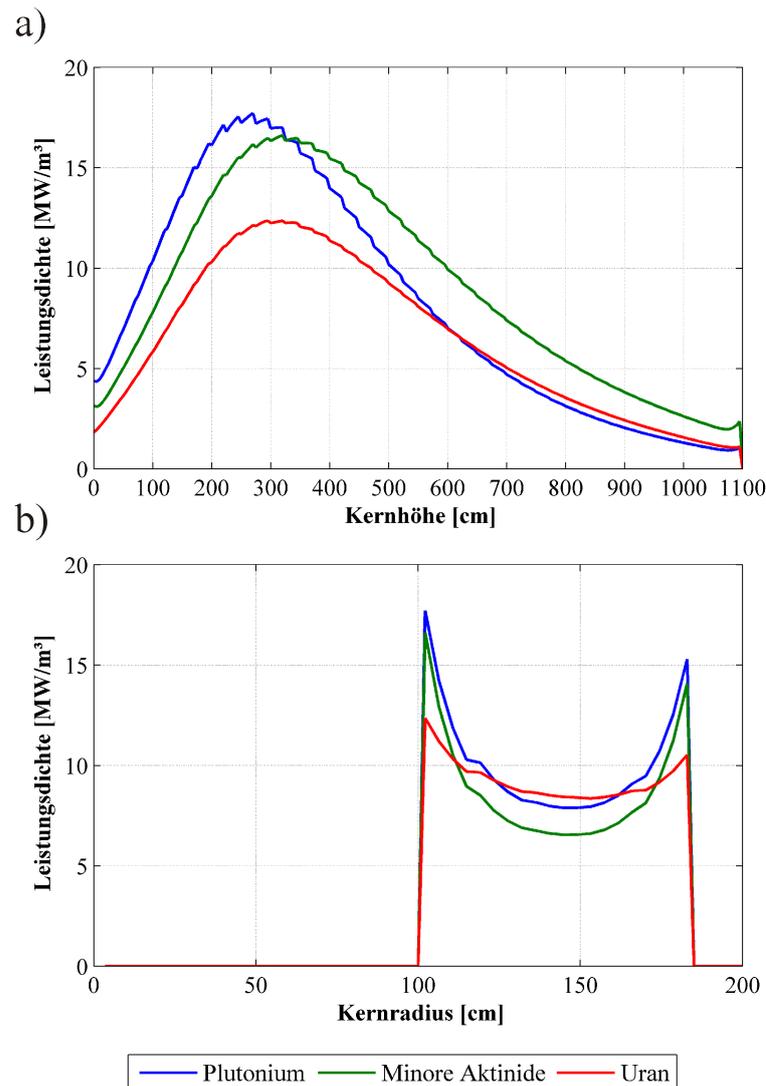


Abbildung 4.5: a) Axiales Leistungsdichteprofil im radialen Maximum und b) radiales Leistungsdichteprofil im axialen Maximum eines mit Pu-, MA- und U-Brennstoff beladenen Reaktors. Höhe = 0 cm entspricht der Oberkante der Kugelschüttung.

Die Grenze bei 2,38 eV zwischen dem schnellen und dem thermischen Bereich ist durch eine gestrichelte Linie gekennzeichnet. Zu erkennen sind die Absorptionsmaxima der Plutoniumisotope ^{239}Pu und ^{241}Pu bei ca. 0,3 eV; von ^{240}Pu bei 1 eV und von ^{242}Pu bei 2,65 eV. Da diese Resonanzen alle im thermischen und epithermischen Energiebereich liegen, beeinflussen sie den thermischen Neutronenfluss stark. Im Vergleich hierzu ist der Absorptionsquerschnitt von ^{235}U über eine Größenordnung kleiner. Zusätzlich sind bei ca. 0,3 eV zwei große Spaltresonanzen der Plutoniumisotope ^{239}Pu und ^{241}Pu . Auch hier ist der Spaltquerschnitt des ^{235}U im Maximum um eine Größenordnung kleiner. Diese Plutoniumresonanzen haben einen starken Einfluss auf die thermischen Neutronen. Viele Neutronen, die aus höheren Energiegruppen in den thermischen Bereich gestreut werden,

werden durch die Pu-Resonanzen eingefangen und verursachen eine Kernspaltung oder eine andere Kernreaktion (z. B. (n,γ)). Der Anteil der thermischen Neutronen für den Pu- und MA-Reaktor ist geringer als für den U-Reaktor (siehe auch Abb. 5.5). Die dazugehörigen Leistungsdichteprofile sind in Abb. 4.5 dargestellt. In Abb. 4.5 a) ist das axiale Leistungsprofil im jeweiligen radialen Maximum abgebildet. Die prinzipielle Kosinusform des axialen Leistungsdichteprofiles ist zu erkennen. Durch das Abbrandprofil und die geringeren Temperaturen ist das Spektrum im oberen Bereich weicher. Dadurch ist das Maximum der Leistung in das obere Drittel verschoben. Die Maximalwerte sind sehr unterschiedlich und liegen bei Pu bei $17,7 \text{ MW/m}^3$, bei MA bei $16,6 \text{ MW/m}^3$ und bei U bei $12,4 \text{ MW/m}^3$. Die Pu- und MA-Brennelemente, die bereits mehrfach rezykliert worden sind, haben einen hohen Abbrand und dementsprechend nur noch einen geringen Anteil an Spaltmaterial. Dies wirkt sich zum einen im unteren Kernbereich aus, in dem die Leistung stark abfällt und zum anderen im oberen Bereich, in dem die frischen Pu- und MA-Brennelemente im Vergleich zu den frischen U-Brennelementen an dieser Stelle im Reaktor mehr Leistung erzeugen. Der Leistungsgradient zwischen Maximum und unterem Ende des Reaktors ist bei Pu- und MA-Brennelement beladenen Reaktoren stärker ausgeprägt als bei U.

In Abb. 4.5 b) ist das radiale Leistungsdichteprofil im axialen Maximum dargestellt. Durch das thermische Neutronenflussmaximum an den Reflektorgrenzen ist die Leistung an den beiden Reflektorgrenzen maximal, während im Inneren der Kugelschüttung die Leistungsdichte absinkt. Die höchste Leistungsdichte entsteht durch die geringe Leckage an der Grenze zum Innenreflektor. Der Leistungsdichteunterschied zwischen Kernmitte und Reflektorgrenze beim U-beladenen Reaktor beträgt ca. 4 MW/m^3 , bei Pu und MA beträgt die Differenz knapp 10 MW/m^3 .

Das Leistungsdichteprofil wirkt sich auf die Partikeltemperaturen aus, die in Abb. 4.6 als Funktion der Höhe im radialen Temperaturmaximum zu sehen sind. Die Partikeltemperatur ist die Temperatur, die im Innersten eines kleinen Schwermetallkugelchens erreicht wird. Das Leistungsmaximum verursacht, dass das Temperaturmaximum ebenfalls an der Grenze zum Innenreflektor auftritt. Durch die höheren Leistungsmaxima und den geringeren Partikelradius bei Pu und MA sind die Partikeltemperaturen im Vergleich zu U größer.

Dargestellt werden in Abb. 4.6 die maximalen Partikeltemperaturen für die unterschiedlichen Rezyklierungen. Während bei den U-Brennelementen der Temperaturunterschied zwischen dem ersten und dem sechsten Umlauf nur knapp $250 \text{ }^\circ\text{C}$ beträgt, sind es beim Pu-Brennelement $555 \text{ }^\circ\text{C}$.

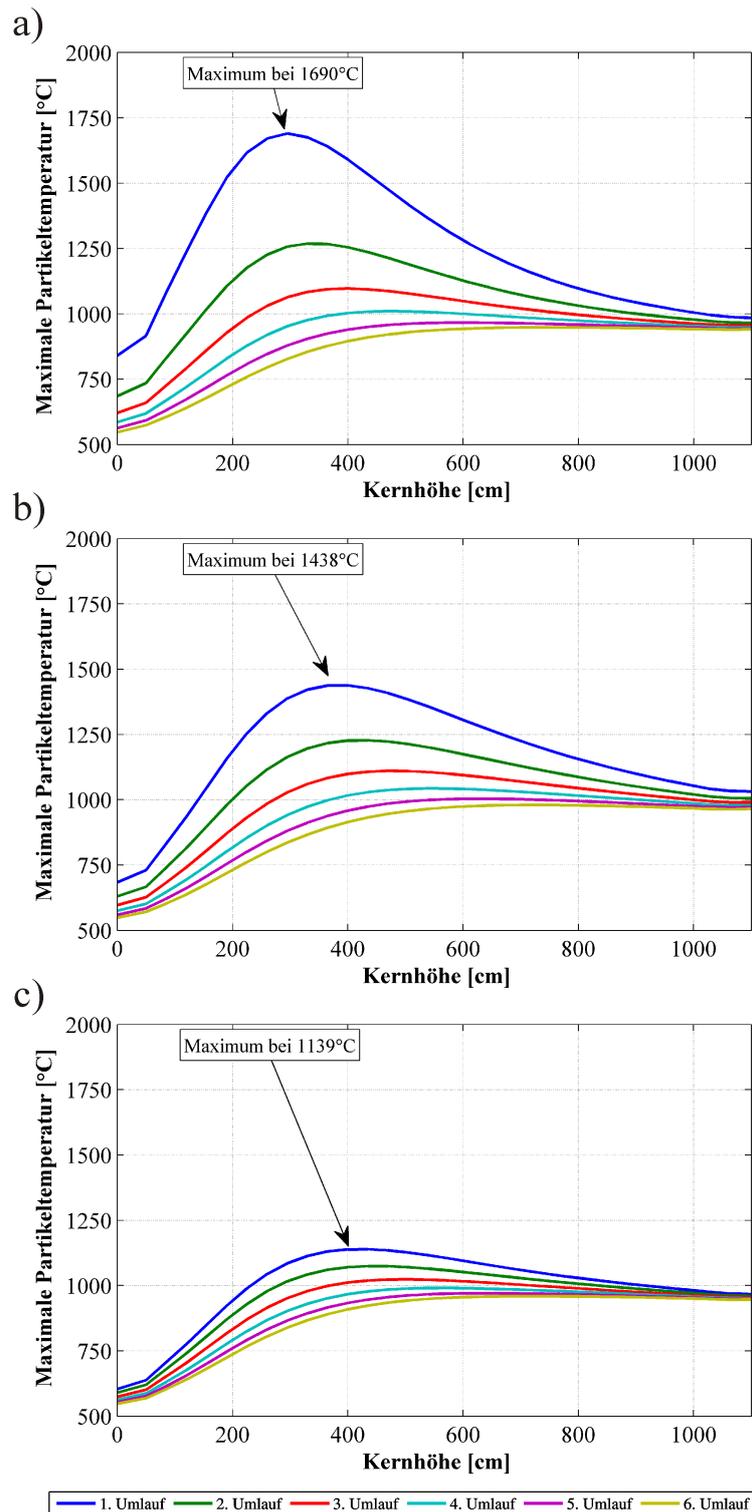


Abbildung 4.6: Maximale Partikeltemperaturen für einen mit a) Pu-, b) MA- und c) U-Brennstoff beladenen Reaktor mit 400 MW_{th} Leistung im radialen Temperaturmaximum. Höhe = 0 cm entspricht der Oberkante der Kugelschüttung.

Tabelle 4.1: Abbrand pro Umlauf, radial gemittelt über alle Zonen [MWd/kg SM].

Umlauf	1	2	3	4	5	6
Pu	284	441	543	612	659	691
MA	186	313	406	477	532	575
U	26	48	66	81	94	105

Dieser Unterschied kann durch die Abbrandverteilung im Reaktor erklärt werden. Bei U ist hauptsächlich das Isotop ^{235}U für die Spaltung verantwortlich. Dies nimmt in erster Näherung linear mit dem Abbrand ab, d. h. der Abbrand nimmt in etwa linear pro Umlauf zu (siehe Tab. 4.1).

Bei einem Pu-Brennelement erzeugen die Isotope ^{239}Pu und ^{241}Pu durch Spaltung die Leistung im Brennelement. Da ^{241}Pu jedoch nicht nur gespalten, sondern auch durch Neutroneneinfang an ^{240}Pu erzeugt wird, nimmt die Reaktivität im Brennelement nicht linear mit dem Abbrand ab (siehe Abb. 4.7).

Die Reaktivität und damit auch der Abbrandzuwachs. nimmt proportional mit dem Anteil an ^{239}Pu -Spaltungen, die zur Leistungserzeugung beitragen, stark ab (ca. ab 4. Umlauf - siehe Tab. 4.1). Es liegt keine gleichmäßige Leistungsabgabe pro Brennelement mehr vor. Der Verlust der Reaktivität in den hochabgebrannten Brennelementen muss

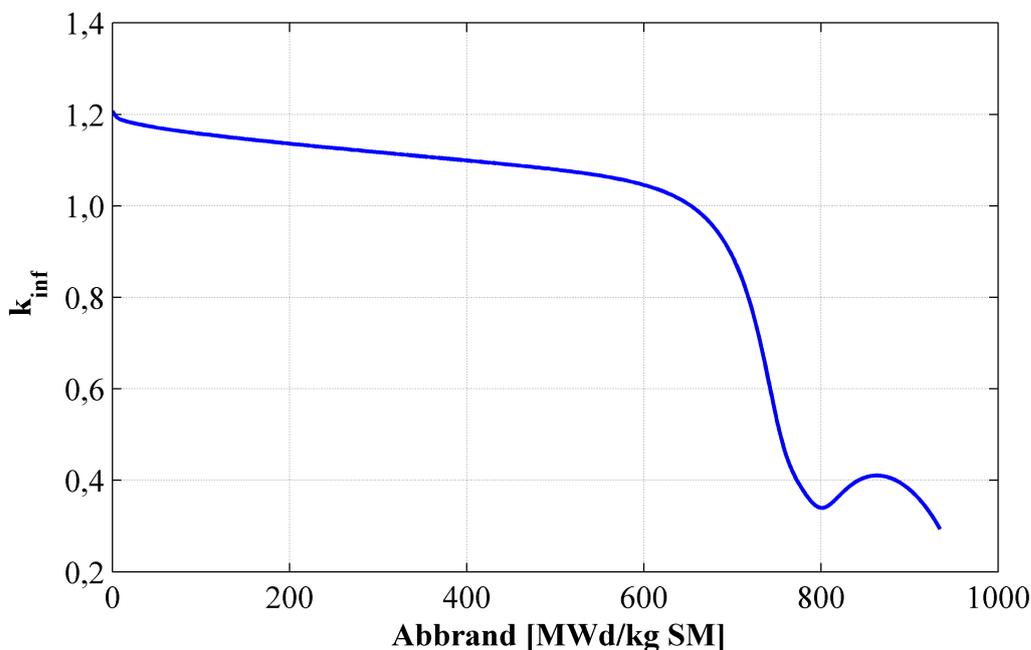


Abbildung 4.7: Multiplikationskonstante k_{inf} eines einzelnen Pu-Brennelements als Funktion des Abbrands. Ergebnis aus der Rechnung mit dem gekoppelten Programm MICROX2 und ORIGEN2.2.

für die konstante Reaktorleistung durch frischere Brennelemente ausgeglichen werden. Die höhere Leistung in den frischen Brennelementen resultiert in höheren Temperaturen, während die Brennelemente mit hohem Abbrand durch die geringe Leistung, relativ geringe Temperaturen aufweisen.

Die Partikel-Temperaturen der Pu- und MA-Partikel sind um mindestens 300 °C höher wie die Uranpartikeltemperaturen. Die im stationären Zustand gegebenen Temperaturen führen zu einer erhöhten Diffusion der Spaltprodukte aus den Brennelementen. Bei den Pu-Partikeln können die Temperaturen zu Brüchen in den Beschichtungen führen, wodurch ebenfalls Spaltprodukte freigesetzt werden. Durch diese Temperaturen ist für die Spaltprodukte keine Barriere mehr vorhanden. Daher muss ein verändertes Reaktorkonzept entwickelt werden, in dem die Partikeltemperatur geringer ist. Mögliche Veränderungen wären z. B. eine Leistungsreduzierung (siehe Kap. 6.1) oder eine veränderte Reaktorgeometrie (siehe Kap. 6.6).

4.2.2 Temperaturkoeffizienten

Der Brennstofftemperaturkoeffizient beschreibt die Reaktivitätsänderung, die durch eine Brennstofftemperaturänderung hervorgerufen wird. Dieser Effekt tritt auch bei einer Temperaturänderung im Moderator oder Reflektor auf. Hierbei führen jedoch Effekte wie verstärkte oder verminderte Moderation und Rückstreuung in den Reaktorkern im Vergleich zur Brennstoff zu unterschiedlichen Reaktivitätsrückwirkungen.

In der Realität erfolgt eine Temperaturänderung immer in allen drei Regionen, jedoch nicht unbedingt zeitgleich. Für die theoretische Berechnung können die drei Anteile separat bestimmt werden. Für die folgenden Ergebnisse wird die Temperatur einer einzelnen Region (Brennstoff, Moderator, Reflektor) verändert, während die Temperaturen der beiden anderen Regionen bei Gleichgewichtstemperatur konstant gehalten werden.

In Abb. 4.8 sind die Temperaturkoeffizienten für den U-beladenen Reaktor dargestellt. Zusätzlich wird der kombinierte Temperaturkoeffizient aus Brennstoff und Moderator dargestellt. Dieser ist oft hilfreich für die Betrachtung einer Temperaturänderung im Kern (z. B. Reaktivitätszufuhr), in dem die Rückwirkung auf den Reflektor nur sehr langsam erfolgt.

Durch den Dopplereffekt am Isotop ^{238}U ist der Brennstoffkoeffizient im gesamten Temperaturbereich negativ. Eine Temperaturänderung im Moderator erzeugt eine Verschiebung des Neutronenspektrums. Dadurch ändert sich der Einfluss der Spalt- und Absorptionsresonanzen. Dies zeigt sich in einer Änderung im Moderatorkoeffizienten. Der Moderatorkoeffizient weist einen Maximalwert bei 450 °C mit $-1,3 \cdot 10^{-5} \text{ °C}^{-1}$ auf.

In Abb. 4.9 sind die Temperaturkoeffizienten für den mit Pu-Brennstoff beladenen Reaktor dargestellt. Der Dopplereffekt zeigt sich bei U hauptsächlich in einer Verbreiterung der

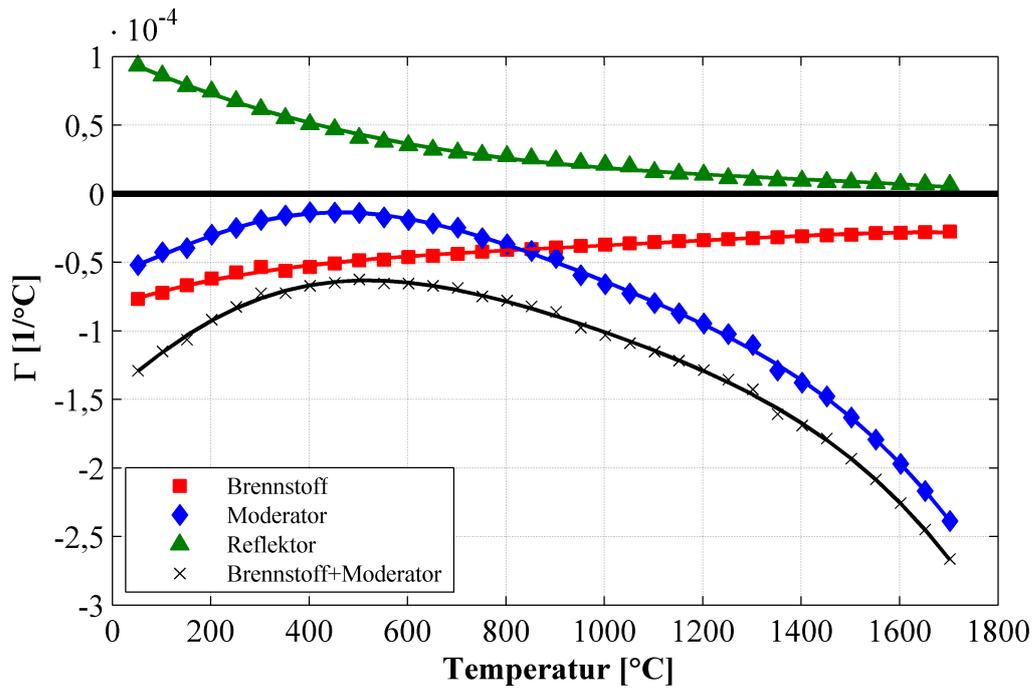


Abbildung 4.8: Brennstoff-, Moderator- und Reflektortemperaturkoeffizient für den stationären Reaktor mit U-Brennstoff. Ebenfalls abgebildet ist die Summe aus Brennstoff- und Moderatorkoeffizient.

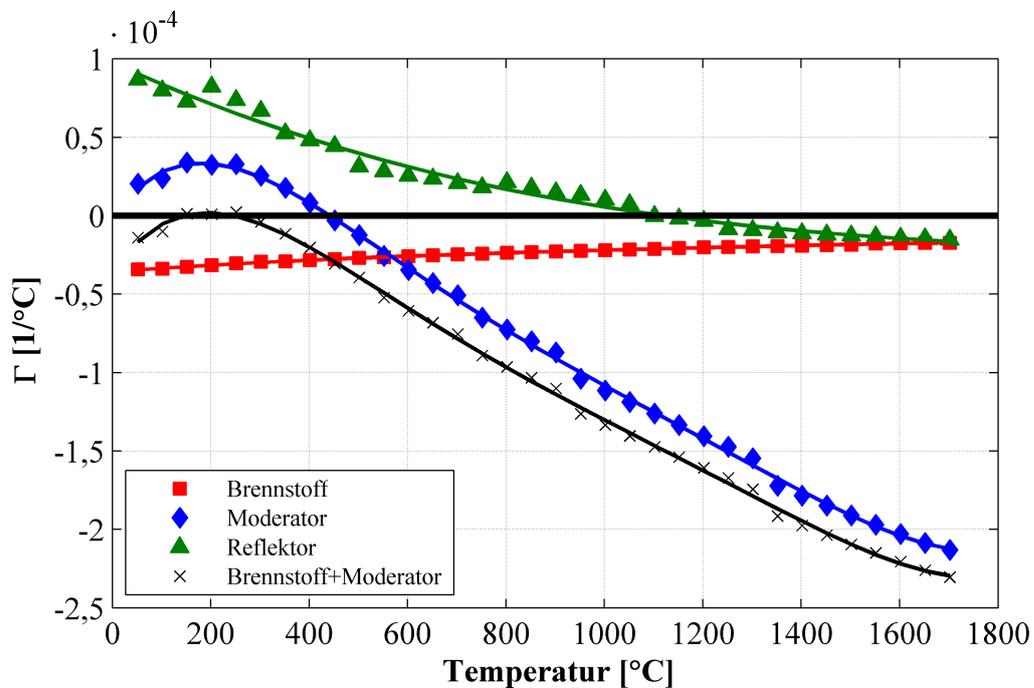


Abbildung 4.9: Brennstoff-, Moderator- und Reflektortemperaturkoeffizient für den stationären Reaktor mit Pu-Brennstoff. Ebenfalls abgebildet ist die Summe aus Brennstoff- und Moderatorkoeffizient.

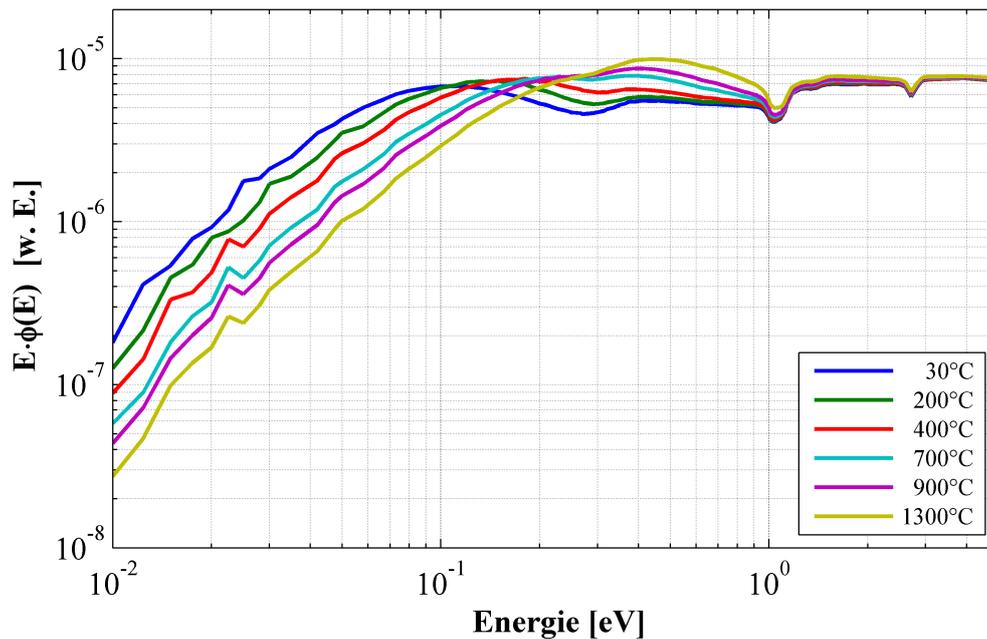


Abbildung 4.10: Moderator temperaturabhängige Spektren in einem Pu-Brennelement mit mittlerem Abbrand (Rechnung mit MCNP5). Die Brennstofftemperatur wird konstant gehalten.

epithermischen Absorptionsresonanzen in ^{238}U . Da bei den Plutoniumisotopen sowohl Absorptions- als auch Streuresonanzen im epithermischen Energiebereich vorliegen (siehe Abb. 4.3), hat der Dopplereffekt keinen merklichen Einfluss auf die Reaktivität. Der Einfluss einer Temperaturänderung im Brennstoff ist somit stärker von den Resonanzen in den einzelnen Energieintervallen abhängig. Insgesamt ist der Brennstoffkoeffizient über den gesamten Temperaturbereich nahezu konstant und negativ.

Im Bereich zwischen $50\text{ }^\circ\text{C}$ und $450\text{ }^\circ\text{C}$ erzeugt die Änderung der Moderatortemperatur eine Verschiebung des Maximums der Neutronenspektrum in eine Spaltresonanz - der Moderator temperaturkoeffizient ist positiv. Das Maximum liegt mit $+0,3 \cdot 10^{-4}\text{ }^\circ\text{C}^{-1}$ bei $200\text{ }^\circ\text{C}$.

In Abb. 4.10 sind die Spektren in einem Pu-Brennelement mit mittlerem Abbrand bei verschiedenen Moderatortemperaturen und konstanter Brennstofftemperatur dargestellt. Eine Verschiebung des weichen Spektrums bei niedrigen Temperaturen zu einem härteren bei höheren Temperaturen ist ersichtlich. Dadurch ändern sich die Wirksamkeiten verschiedener Einfang- und Spaltresonanzen, was zu einer Veränderung im Moderator koeffizienten führt.

Die aus einem bis $1000\text{ }^\circ\text{C}$ heißen Reflektor zurückgestreuten Neutronen zeigen eine positive Reaktivitätsrückwirkung im Reaktorkern. Dies wird hervorgerufen, da die Neutronen mit Energien im Bereich der Spaltresonanzen zurückgestreut werden. Der Anteil der zurückgestreuten Neutronen nimmt mit höherer Temperatur ab, wodurch

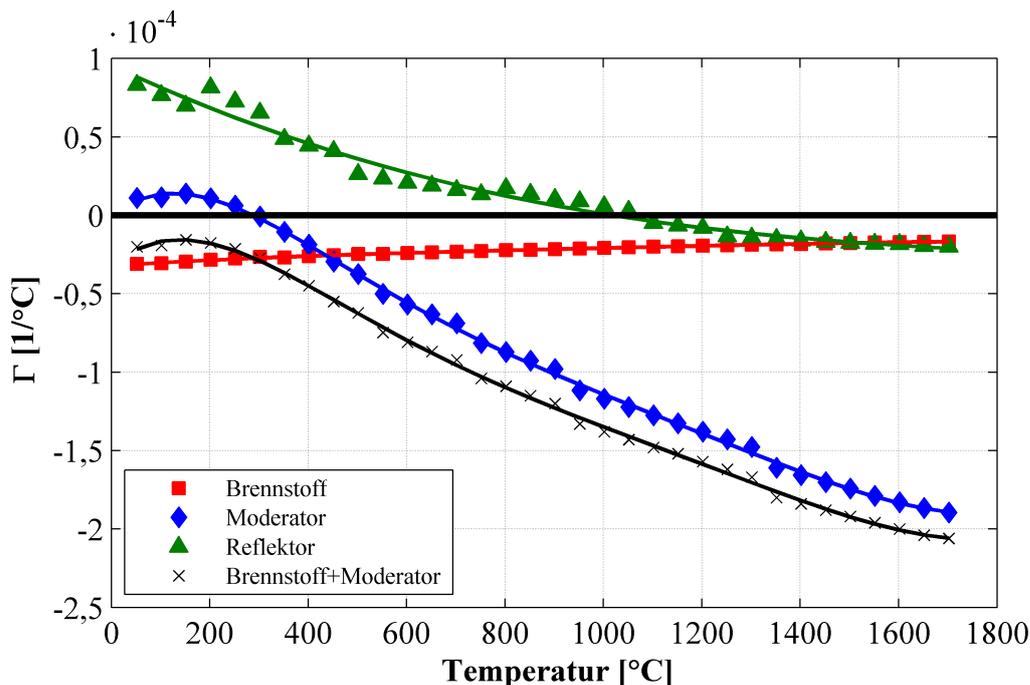


Abbildung 4.11: *Brennstoff-, Moderator- und Reflektortemperaturkoeffizient für den stationären Reaktor mit MA-Brennstoff. Ebenfalls abgebildet ist die Summe aus Brennstoff- und Moderatorkoeffizient.*

der Effekt ebenfalls reduziert wird. Für den U-beladenen Reaktor haben die hohen Reflektortemperaturen kaum mehr einen Einfluss auf die Reaktivität im Kern - der Temperaturkoeffizient ist nahezu Null. Beim Pu-beladenen Reaktor wird bereits durch die Verteilung des thermischen Neutronenflusses der starke Einfluss des Reflektors sichtbar. Bei sehr hohen Reflektortemperaturen wandert das zurückgestreute Spektrum in eine Absorptionsresonanz. Der Reflektorkoeffizient wird über 1000 °C negativ.

In Abb.4.11 werden die Temperaturkoeffizienten für den Fall mit MA-Brennstoff dargestellt. Analog zu dem mit Pu-Brennelementen beladenen Reaktor entsteht durch die Temperaturänderung im Moderator im Temperaturbereich zwischen 50 °C und 300 °C ein positiver Reaktivitätseffekt. Brennstofftemperaturkoeffizient ist wie bei Pu über den konstanten Bereich negativ, so dass auch die Summe aus Brennstoff und Moderator negativ ist.

Ein positiver Temperaturkoeffizient kann bei der Regelung Probleme bereiten. Deswegen muss für eine Genehmigung des Reaktors der Koeffizient bei Betriebsbedingungen negativ sein. Für das Anfahren des Reaktors bei Pu und MA muss eine weitere Analyse zeigen, wie sich der Brennstoff- und Moderatorkoeffizient bei Nulllast und veränderten Nuklidichten verhält. Der Einfluss des Reflektors kann dabei unberücksichtigt bleiben, da die Temperaturänderung im Reflektor sehr langsam erfolgt und dies mit den Steuerstäben kompensiert werden kann.

4.2.3 Einfluss durch ^{135}Xe

Das Isotop ^{135}Xe wird bei der Kernspaltung erzeugt und ist ein starker Absorber von thermischen Neutronen. Die durch ^{135}Xe bedingten Reaktivitätseffekte werden in diesem Kapitel analysiert. Der Einfluss des ^{135}Xe auf die Reaktivität kann bestimmt werden, indem im stationären Gleichgewicht die Xenondichte auf Null gesetzt wird und die Multiplikationskonstante berechnet wird. Es wird keine Temperaturrückwirkung berücksichtigt.

Tabelle 4.2: ^{135}Xe -Reaktivität von Pu-, MA- und U-Brennstoff beladenen stationären Reaktoren.

	^{135}Xe -Reaktivität
Pu	2,46%
MA	1,91%
U	3,26%

In Tab. 4.2 wird die kompensierte Reaktivität des Isotops ^{135}Xe in den unterschiedlich beladenen Reaktoren im stationären Gleichgewicht angegeben. Die Reaktivitätsänderung ist proportional zum Absorptionsquerschnitt σ_a des ^{135}Xe , dem im Reaktor vorherrschenden Neutronenfluss ϕ und der Gleichgewichtsnuklidichte $N(^{135}\text{Xe})$. Die Gleichgewichtsnuklidichte von ^{135}Xe kann folgendermaßen beschrieben werden:

$$N(^{135}\text{Xe}) = \frac{\sum_i \gamma_i \cdot \Sigma_{f,i} \cdot \phi}{\lambda + \sigma_a \cdot \phi} \quad (4.1)$$

Die Produktion von ^{135}Xe hängt vom Neutronenfluss ϕ , der akkumulierten Ausbeute γ_i bei einer Spaltung, den makroskopischen Spaltquerschnitten $\Sigma_{f,i}$ der verschiedenen Spaltisotope i und von der Zerfallskonstante λ ab. Die akkumulierte Ausbeute bezieht sich auf die direkte Ausbeute von ^{135}Xe durch Kernspaltung und die indirekte Erzeugung durch Kernspaltung mit anschließenden β^- -Zerfällen. Der Hauptanteil von ^{135}Xe entsteht durch den Zerfall von ^{135}I mit einer Halbwertszeit von $\tau_{1/2} = 6,61 \text{ h}$. ^{135}Xe selbst zerfällt über einen β^- -Zerfall mit einer Halbwertszeit von $\tau_{1/2} = \ln(2)/\lambda = 9,14 \text{ h}$ zu ^{135}Cs . Zum anderen wird durch den großen Absorptionsquerschnitt σ_a von ^{135}Xe in das stabile ^{136}Xe umgewandelt, welches einen sehr geringen Absorptionsquerschnitt besitzt. Der gewichtete Gruppenabsorptionswirkungsquerschnitt ist abhängig vom jeweiligen Neutronenspektrum.

In Abb. 4.12 werden die Spektren der verschiedenen Brennelemente bei einem mittleren Abbrand dargestellt (linke Ordinatenachse). Ebenfalls eingezeichnet ist der mikroskopische Absorptionswirkungsquerschnitt [81] von ^{135}Xe (rechte Ordinatenachse). Evident ist, dass der Eingruppenquerschnitt ($\sigma \cdot \phi$), der für Gl. 4.1 benötigt wird, für U größer ist, als für Pu und MA. Durch das thermisch etwas höhere Spektrum lässt

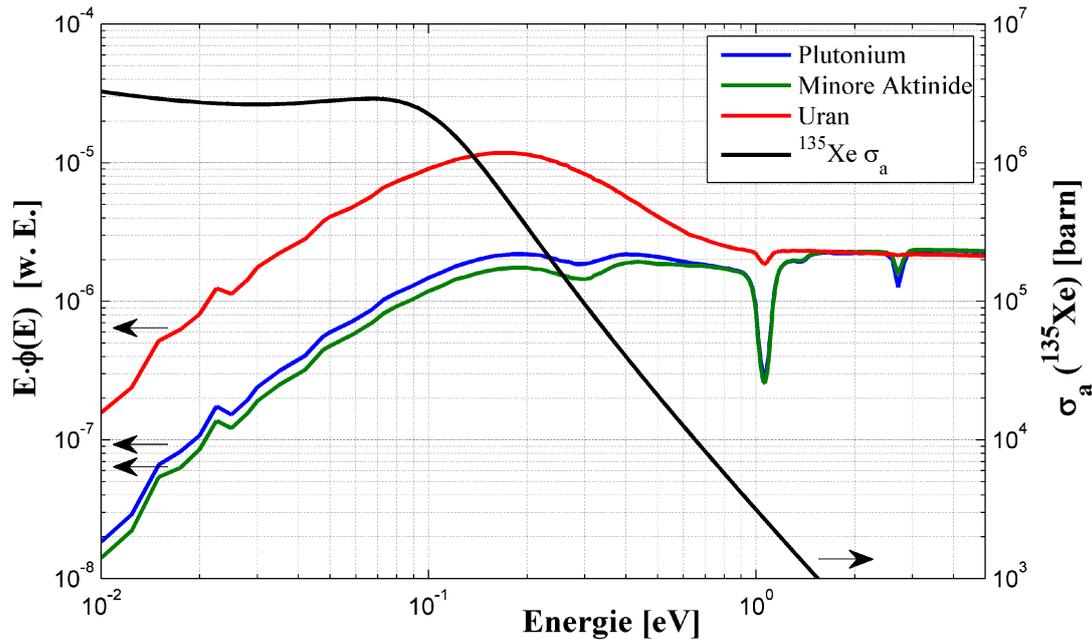


Abbildung 4.12: *Spektren eines Pu-/MA- und U-Brennelements (Rechnung mit MCNP5) und mikroskopischer Absorptionswirkungsquerschnitt des Isotops ^{135}Xe .*

sich außerdem die größere Xe-Wirksamkeit im Pu-Reaktor im Vergleich zu MA-Reaktor erklären. Insgesamt zeigt sich, dass die Xenonwirksamkeit für den U-beladenen Reaktor größer ist, als für den Pu- und MA-beladenen.

4.2.4 Wirksamkeit der Steuerstäbe

Für verschiedene Lastwechsel und das Abschalten des Reaktors ist die Wirksamkeit der Steuerstäbe von großer Bedeutung.

In der zweidimensionalen Diffusionsrechnung werden die Steuerstäbe als homogene Zylinderschale mit entsprechendem Boräquivalent berechnet (siehe Kap. 2.1). Für eine exakte Berechnung wird daher mit einem dreidimensionalen Monte-Carlo-Modell gearbeitet. Hierzu werden die Gleichgewichtsnuklidichten und -temperaturverteilungen aus der ZIRKUS-Berechnung übernommen. Die Steuerstäbe werden einzeln modelliert und können realistisch als zwei Steuerstabbänke im Reaktor bewegt werden. Es findet keine Rückwirkung der veränderten Stabstellung auf die Temperaturen statt. Es werden ausschließlich die Reaktivitätsänderungen zwischen den unterschiedlichen Stabstellungen betrachtet.

In Abb. 4.13 ist die Reaktivitätsänderung $\Delta\rho$ über der Steuerstabeinfahrtiefe dargestellt. Höhe = 0 cm entspricht der Oberkante der Kugelschüttung. In der Gleichgewichtsstellung befindet sich die Unterkante der 24 Steuerstäbe - beide Steuerstabbänke - auf 150 cm unterhalb der Oberkante der Kugelschüttung. An dieser Stelle wird die Ausgangsstellung

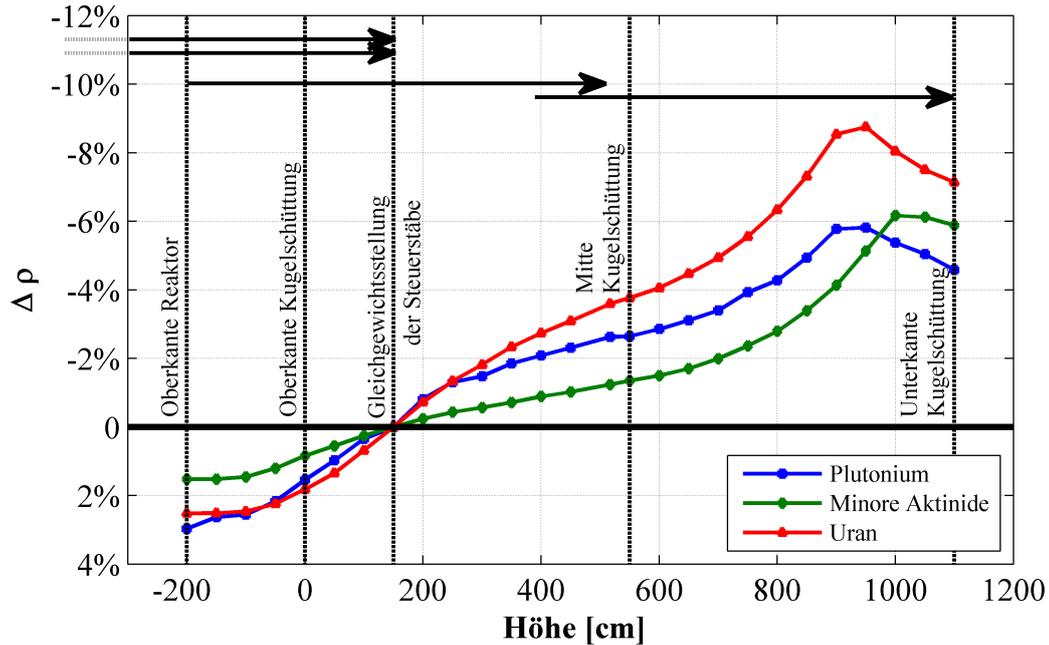


Abbildung 4.13: *Reaktivitätsänderung bei Veränderung der Steuerstabposition für den mit Pu-, MA- und U-Brennstoff beladenen Reaktor (Rechnung mit MCNP5).*

definiert, von der aus die Reaktivitätsänderung berechnet wird. Im Falle des kompletten Ausfahrens aller Steuerstäbe wird im Pu-beladenen Reaktor 2,88 % Reaktivität frei, beim MA-beladenen 1,45 % und mit U-Brennelementen 2,55 %.

Der Anteil der verzögerten Neutronen beträgt bei Uran 0,55, bei Pu 0,39 und bei MA 0,37 (entspricht 1 \$ Reaktivität). Damit ist die freigesetzte Reaktivität beim Auswerfen aller Steuerstäbe für U 4,6 \$, für MA 3,9 \$ und für Pu 7,4 \$. Die dadurch freiwerdende Reaktivität ist nicht kontrollierbar und damit nicht zulässig.

Die Steuerstäbe müssen für den stationären Zustand soweit eingefahren werden, dass ein Lastwechsel auf 50 % Leistung möglich ist (siehe auch Kap. 4.3.1). Bei tieferer Stabstellung im stationären Gleichgewicht ist die zur Verfügung stehende Abschaltreaktivität geringer. Außerdem wird im Falle eines Steuerstabauswurfs mehr Reaktivität frei. Wie in Kap. 4.3.1 gezeigt wird, ist diese starke Reaktivitätsrückhaltung nicht notwendig für einen Lastwechsel auf 50 %. Die Einfahrtiefe der Steuerstäbe muss daher für die unterschiedlich beladenen Reaktoren den betrieblichen und sicherheitstechnischen Anforderungen angepasst werden.

Die maximale Länge der Steuerstäbe inklusive aller Verbindungsstücke beträgt 717 cm. Bei komplett eingefahrenen Steuerstäben wird die erste Steuerstabbank so eingefahren, dass das obere Ende mit der Oberkante des Reaktors abschließt und die zweite Steuerstabbank so, dass das untere Ende mit der Unterkante der Kugelschüttung abschließt. Damit ist in der Mitte ein Bereich, in der die beiden Steuerstabbänke überlappen.

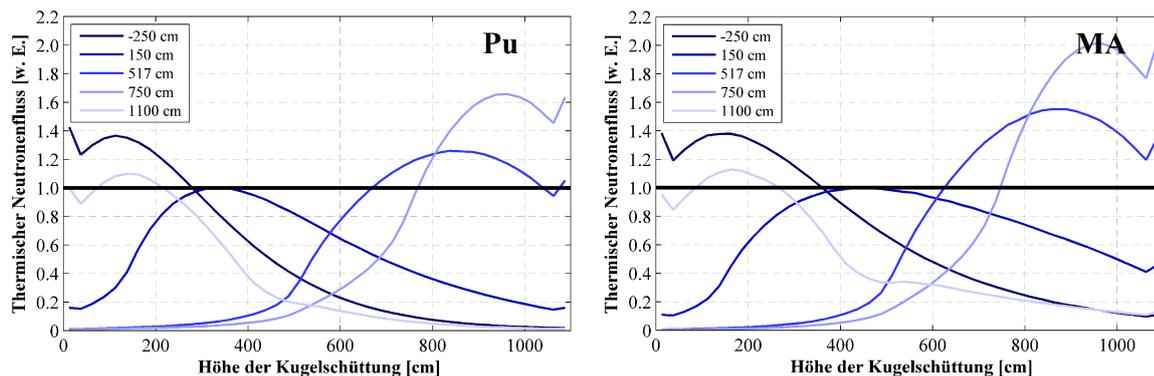


Abbildung 4.14: *Axiales thermisches Neutronenflussprofil an der Grenze zum Außenreflektor von verschiedenen Steuerstabstellungen beim Pu- und MA-beladenen Reaktor (Rechnung mit MCNP5). Die Angabe in der Legende symbolisiert die jeweilige Einfahrtiefe der Steuerstäbe ausgehend von der Oberkante der Kugelschüttung. Höhe = 0 cm entspricht der Oberkante der Kugelschüttung.*

Die gesamte Wirksamkeit zwischen komplett ausgefahrenen und komplett eingefahrenen Steuerstäben beträgt für den Pu-beladenen Reaktor 7,6 %, für den MA-beladenen 7,4 % und für den U-beladenen 9,7 %. Das Maximum der Wirksamkeit ist für den Pu- und U-beladenen Reaktor bei einer Einfahrtiefe von 9,5 m erreicht. Diese Reaktivität steht für das heiße Abschalten des Reaktors zur Verfügung. Für das Kaltfahren des Systems stehen zusätzlich kleine Absorberkugeln zu Verfügung, die in die Abschaltkanäle im Innenreflektor fallen.

Der Verlauf der Steuerstabkurven des U und Pu beladenen Reaktors sind sehr ähnlich. Bei weiter ausgefahrenen Steuerstäben wird bei Pu mehr Reaktivität frei, während in der Reaktormitte ein Drittel weniger kompensiert wird. Bei komplett eingefahrenen Steuerstäben lässt die Wirksamkeit bei Pu und U um 1,3 % bzw. 1,6 % nach, da die Länge der Überlappung beider Steuerstabbänke abnimmt. Dadurch entsteht bei ca. 9 Meter ein Maximum in der Wirksamkeit für U und Pu. Im MA-Brennelementen beladenen Reaktor wird das Maximum der Wirksamkeit erst nach 10 Meter Einfahrtiefe erreicht. Eine Erklärung hierfür liefern die axialen thermischen Zonenflüsse im äußersten radialen Kanal bei verschiedenen Stabstellungen (siehe Abb. 4.14).

Die Neutronenflüsse in dieser Abbildung wurden auf den maximalen Wert in der Gleichgewichtssteuerstabstellung („150 cm“) normiert. Durch den Einfluss des Boden- bzw. Deckenreflektors steigen die Neutronenflüsse in der obersten und untersten Reaktorzone an.

Im MA-beladenen Reaktor liegt eine homogenere Abbrandverteilung im Vergleich zum Pu-beladenen Reaktor vor. Dadurch lassen sich die unterschiedlichen Leistungsverteilungen bei den verschiedenen Stabstellungen erklären. Bei der Stabstellung

„150 cm“ weist der MA-beladene Reaktor eine weitgehend homogene Leistungsverteilung auf, während der Pu-beladene Reaktor ein Leistungsmaximum im oberen Drittel hat.

Dies liegt an den stark abgebrannten Brennelementen im unteren Bereich im Pu-Reaktor. Diese können die geforderte Leistung nicht erbringen, wodurch die frischeren Brennelemente im oberen Bereich mehr Leistung erzeugen müssen. Da der Abbrand im MA-Reaktor nicht so hoch ist, ist dieser Effekt auch nicht so stark ausgeprägt.

Dies hat einen Einfluss auf die Wirksamkeit der Steuerstäbe. Durch das Einfahren der Steuerstäbe wird das Neutronenflussmaximum in den unteren Bereich des Reaktors verschoben. Im Verhältnis zum maximalen Wert in der Gleichgewichtsstabstellung steigt das Neutronenflussprofil bei MA stärker an als bei Pu. Das Leistungsmaximum kann durch den geringeren Abbrand bei MA im unteren Bereich stärker verschoben werden. Die Wirksamkeit der Steuerstäbe ist damit nicht so groß. Erst wenn das Maximum durch die Steuerstäbe ganz an den unteren Rand des Reaktors geschoben ist, nimmt die Wirksamkeit der Steuerstäbe stark zu.

Eine Analyse zur Steuerstabwirksamkeit mit zweidimensionaler Diffusionsrechnung wird in Kap. 5.3 diskutiert.

4.3 Verhalten des Hochtemperaturreaktors bei Leistungsänderung

4.3.1 Lastwechsel 100 % - 50 % - 100 % Leistung

Eine Leistungsänderung im Hochtemperaturreaktor erfolgt über das Verfahren von Steuerstäben. Das Verhalten des Reaktors beim Lastwechsel von 100 % auf 50 % und zurück auf 100 % Leistung wird in diesem Kapitel analysiert.

Wird der Reaktor auf 50 % der Nennleistung abgefahren, so halbiert sich auch die Neutronenflussdichte. Dies führt zu einer Halbierung der Produktions- und Absorptionsraten im Reaktor.

$$\frac{dN_{135\text{Xe}}}{dt} = \gamma_{135\text{Xe}} \cdot \Sigma_f \cdot \phi + \lambda_{135\text{I}} \cdot N_{135\text{I}} - \lambda_{135\text{Xe}} \cdot N_{135\text{Xe}} - \sigma_a^{135\text{Xe}} \cdot N_{135\text{Xe}} \cdot \phi \quad (4.2)$$

In Gl. 4.2 ist die ^{135}Xe -Konzentrationsgleichung dargestellt. Die ^{135}Xe -Produktionsrate fällt bei Leistungsabsenkung um 50 % nicht auf die Hälfte ab, da die Produktion nur zu einem geringen Teil aus der Spaltung erfolgt und hauptsächlich aus dem Zerfall von ^{135}I . ^{135}I hat zum Zeitpunkt der Leistungsreduzierung im Vergleich zur Gleichgewichtskonzentration bei 50 % eine erhöhte Konzentration, die durch den Zerfall abnimmt. Die ^{135}Xe -Konzentration im Reaktor steigt dadurch an und die ^{135}Xe -Absorptionsrate bei 50 % Leistung verglichen mit der bei 100 % Leistung nimmt

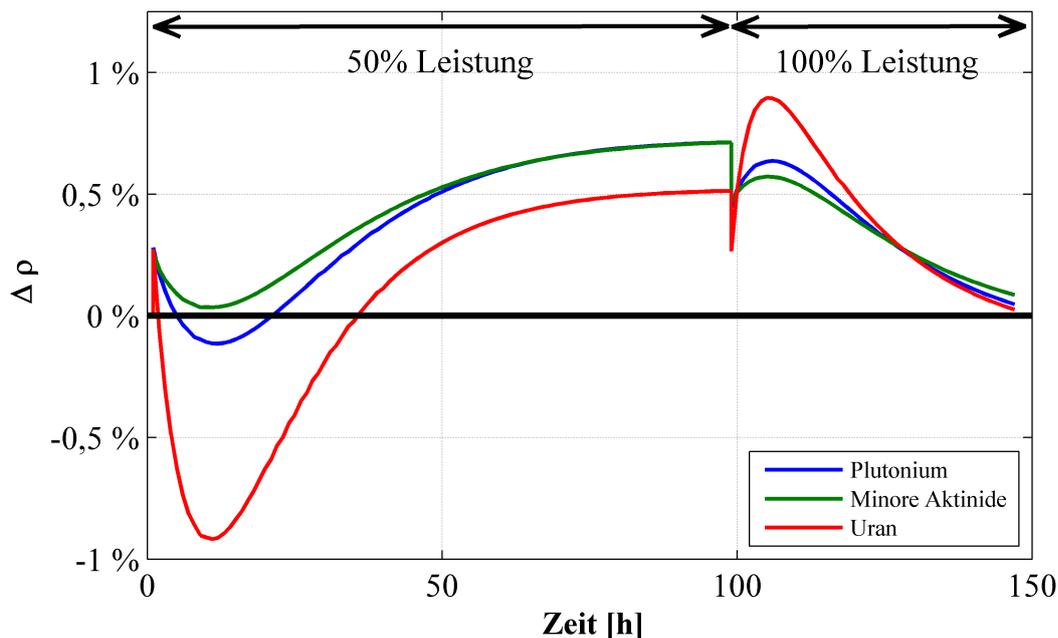


Abbildung 4.15: Reaktivitätsänderung bei Lastwechsel von 100 % auf 50 % Leistung und zurück auf 100 % Leistung ohne Verfahren der Steuerstäbe bei Pu-, MA- und U-Brennstoff beladenen Reaktoren.

zu. Dies führt zu einer Reaktivitätsabnahme im Reaktor, die durch das Ausfahren der Steuerstäbe kompensiert werden muss. Erst durch den ^{135}Xe -Zerfall und durch die exponentielle Abnahme des Produktionsterms von ^{135}I nimmt die Reaktivität wieder zu, bis sich alle Nuklide in der Gleichgewichtskonzentration für 50 % Leistung befinden.

Beim Wechsel zurück auf Vollast steigt im Vergleich zur Teillast die Produktions- und Absorptionsrate im Reaktor durch den Anstieg des Neutronenflusses auf den doppelten Wert an. Auch die ^{135}Xe -Absorptionsrate steigt an. Da die Gleichgewichtskonzentration von ^{135}I bei 50 % geringer ist, wird weniger ^{135}Xe produziert als absorbiert. Es entsteht ein Xenonminimum und die Reaktivität im Reaktor nimmt zu - die Steuerstäbe müssen in den Reaktor eingefahren werden.

In Abb. 4.15 ist der Reaktivitätsverlauf eines Lastwechsels mit 100 % - 50 % - 100 % Leistung ohne Verfahren der Steuerstäbe dargestellt. Im ersten Schritt wird die Leistung auf 50 % abgesenkt. Durch die weniger produzierte Leistung im Partikel sinkt die Partikeltemperatur ab, d. h. die Temperaturdifferenz zwischen Partikel und Moderator sinkt. Dieser Effekt äußert sich in einer positiven Temperaturrückwirkung, sodass für alle drei Fälle die Reaktivität auf 0,27 % ansteigt. Im anschließenden Verlauf verändert sich Reaktivität durch die Konzentrationsänderung von ^{135}Xe bis zur Gleichgewichtskonzentration bei 50 % Leistung. Im mit U-Brennelementen beladenen Reaktor nimmt die Reaktivität durch den Xenonaufbau um 1,2 % ab. Die geringere Xenonwirksamkeit im mit Pu-Brennelementen beladenen Reaktor erzeugt eine geringere

Reaktivitätsabnahme von 0,37 %. Damit ist der Xenoneffekt im Pu-Brennelement jedoch noch größer als der Reaktivitätseffekt durch den Temperaturanstieg bei Leistungsabsenkung. Wie in Kap. 4.2.3 gezeigt, ist die Xenonwirksamkeit im mit MA-Brennelementen beladenen Reaktor noch geringer als bei Pu. Damit zeigt sich eine Reaktivitätsabnahme von nur 0,23 % durch den Xenonaufbau. Dies ist ein kleinerer negativer Beitrag zur Reaktivität als die positive Reaktivitätsrückwirkung bei Leistungsabsenkung.

In allen drei Fällen ist, wie aus Kap. 4.2.4 ersichtlich, die Steuerstabstellung im Gleichgewicht zu tief gewählt. Die vorgehaltene Reaktivität wird bei Abfahren auf 50 % Leistung nicht benötigt. Daher könnten entweder weniger Steuerstäbe eingesetzt werden, oder die Steuerstäbe sollten für das stationäre Gleichgewicht weniger weit in den Reaktor eingefahren werden.

Nach knapp 100 Stunden ist der Reaktor im stationären Gleichgewicht bei 50 % Leistung. Das Reaktivitätsniveau bei Pu und MA liegt mit 0,71 % über dem Niveau bei 100 % Leistung, bei Uran nur bei 0,51 %. Die gleiche Reaktivitätszufuhr bei unterschiedlicher Wirksamkeit von ^{135}Xe bei Pu und MA kann durch die Veränderung der Nuklidverteilung im Reaktor und des Temperaturprofils im Brennelement erklärt werden.

Anschließend wird der Reaktor wieder auf Volllast gefahren. Dadurch steigt die Partikeltemperatur an, und der Temperaturunterschied zwischen Partikel und Moderator nimmt zu. Dies äußert sich in einer Reaktivitätsabnahme im Reaktor. Die ^{135}Xe -Konzentration nimmt ab, wodurch Reaktivität im Reaktor frei wird. Durch die höhere Wirksamkeit von ^{135}Xe wird im U beladenen Reaktor mit 0,9 % mehr Reaktivität frei als bei Pu mit 0,64 % und MA mit 0,57 %. Bei Pu und MA ist das Reaktivitätsmaximum kleiner als die freigesetzte Reaktivität durch den Temperaturanstieg und somit werden die Steuerstäbe nicht weiter eingefahren. Bei U ist der ungünstigste Zeitpunkt für den Störfall eines Steuerstabauswurfs zu dem Zeitpunkt, an dem das Xenon sein Minimum nach Anfahren auf 100 % Leistung erreicht hat. Bei Pu und MA ist dieser Zeitpunkt im Gleichgewichtsfall bei 50 % Leistung erreicht.

Nach weiteren 50 Stunden wird wieder die Gleichgewichtssituation wie vor dem Lastwechsel erreicht. Unter der Annahme der vorliegenden Wirksamkeit der Steuerstäbe ist in allen drei Fällen ein Lastwechsel auf 50 % möglich. Zur Sicherheit gegen Störfälle muss die Stabstellung für das stationäre Gleichgewicht angepasst werden. Bei MA ist für den Lastwechsel auf 50 % keine Vorhaltung durch Steuerstäbe notwendig.

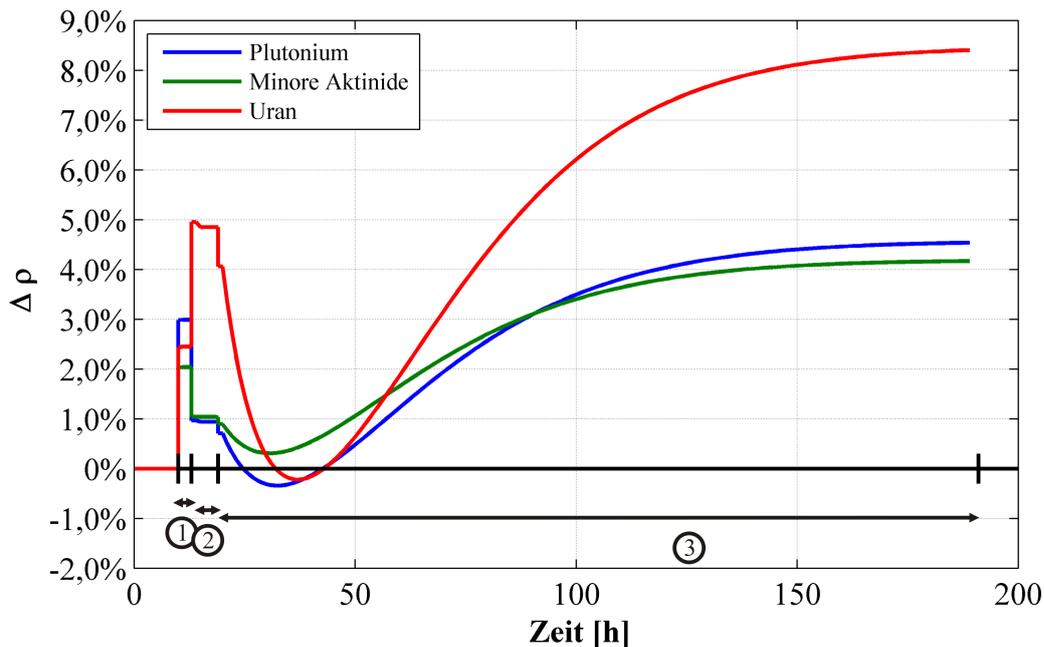


Abbildung 4.16: *Separierte Reaktivitätseffekte beim Kaltfahren des Reaktors: 1) Ziehen der Steuerstäbe an die Oberkante des Reaktors, 2) Abfahren auf 30 °C, 3) Kernzerfälle verschiedener Nuklide.*

4.3.2 Kaltfahren des Systems

In diesem Kapitel soll geklärt werden, welche Reaktivität bei Kaltfahren des Reaktors frei wird. Durch den negativen Temperaturkoeffizienten wird bei Abkühlung des Reaktors Reaktivität frei. Änderungen der Reaktivität treten auch durch Kernzerfälle verschiedener Isotope auf. Großen Einfluss haben die Isotope ^{135}Xe und ^{149}Sm mit hohen Absorptionsquerschnitten und ^{239}Pu mit einem hohem Spaltquerschnitt. ^{239}Pu entsteht durch den Zerfall von ^{239}Np , welches durch den Neutroneneinfang an ^{238}U entsteht. Damit wird dieses Nuklid nur im U-Brennelement, nicht aber im Pu- und MA-Brennelement erzeugt.

In der Realität werden die Steuerstäbe komplett eingefahren und die kleinen Absorberkugeln in den Innenreflektor gegeben. Anschließend wird der Reaktor mittels externer Hilfsmittel kalt gefahren.

In Abb. 4.16 ist die Reaktivitätsänderung $\Delta\rho$ dargestellt, die zugeführt werden muss, damit der Reaktor im kalten Zustand unterkritisch bleibt. Um die drei wesentlichen Reaktivitätseffekte separiert betrachten zu können, wird das Abfahren in einzelne Abschnitte unterteilt. In den ersten zehn Stunden ist der Reaktor im stationären Gleichgewicht. Für die Reaktivitätsänderung durch die Steuerstäbe werden zuerst die Steuerstäbe an die Oberkante des Reaktors gezogen (Schritt 1). Damit ist ein Vergleich zwischen den unterschiedlich beladenen Reaktoren möglich. Im Vergleich zu der

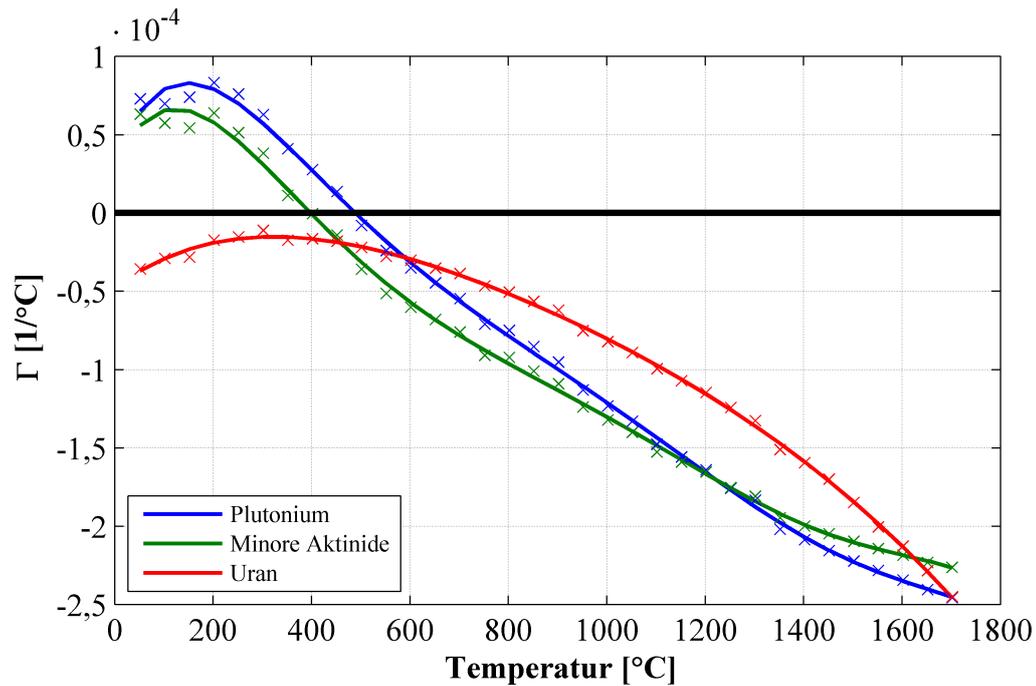


Abbildung 4.17: *Integraler Temperaturkoeffizient für Brennstoff, Moderator und Reflektor für Pu-, MA- und U-Brennstoff beladene HTRs.*

in Kap. 4.2.4 berechneten Steuerstabwirksamkeit mittels MCNP5 sind die mit ZIRKUS berechneten Werte leicht unterschiedlich.

Den Reaktivitätseffekt durch das Abkühlen des Systems auf 30 °C wird durch Schritt 2 sichtbar gemacht. Die Abkühlphase mit den unterschiedlichen Wechselwirkungen, wie sie in der Realität ablaufen, werden dabei nicht berücksichtigt.

In Abb. 4.17 wird der integrale Temperaturkoeffizient für die Reaktoren mit konstanter Brennstoff-, Moderator- und Reflektortemperatur dargestellt. Der integrale Temperaturkoeffizient für U ist negativ. Dadurch äußert sich eine Temperaturabsenkung mit einem Anstieg in der Reaktivität.

Bei Pu und MA hingegen ist der integrale Temperaturkoeffizient unterhalb von 500 °C bzw. 400 °C positiv. Durch das Absenken der Temperatur auf 30 °C nimmt die Reaktivität im Reaktor bei Pu um 2,0 % und bei MA um 1,0 % ab.

Ab Schritt 3 wird die Reaktivitätsänderung durch die Kernzerfälle unterschiedlicher Nuklide betrachtet, wobei der Hauptanteil aus ^{135}Xe besteht. Die geringere Halbwertszeit von ^{135}I mit $\tau_{1/2} = 6,61$ h lässt die Konzentration an ^{135}Xe mit $\tau_{1/2} = 9,14$ h ansteigen. Dies führt zu einer Abnahme in der Reaktivität. Bei U nimmt die Reaktivität stärker ab als bei Pu und MA.

Nach knapp 200 Stunden wird die Endabschaltreaktivität von 4,6 % bei Pu und 4,2 % bei MA erreicht. Bei Uran ist die zu kompensierende Reaktivität bei 8,4 %.

4.4 Störfallanalyse

In diesem Kapitel wird das Verhalten der Reaktoren bei unterschiedlichen Störfällen untersucht. Zum einen Kühlmittelverluststörfälle, die durch eine fehlende Kühlung zu einer starken Temperaturerhöhung in den Brennelementen führen können. Zum anderen Reaktivitätsstörfälle, in welchen dem System in verschiedenen Szenarien Reaktivität zugeführt wird. In allen Störfällen wird die Grenztemperatur von 1600 °C im Partikel angenommen, die nicht überschritten werden darf. Für die Pu- und MA-Partikel ist dies eine Annahme, da bis jetzt keine experimentellen Abbranddaten vorliegen.

4.4.1 Störfälle im Kühlkreislauf

4.4.1.1 Ausfall der aktiven Kühlung unter Druck

Fällt die aktive Kühlung im Reaktor unter Druck (LOFC - Loss Of Forced Cooling Accident) aus, wird durch eine Reaktorschnellabschaltung (RESA) der Reaktor abgeschaltet. Die Wärmeentwicklung durch Kernspaltung wird gestoppt. Durch Kernreaktionen der Spaltprodukte und Aktinide entsteht Nachzerfallsleistung. Nach zwei Sekunden werden je nach Brennelementzusammensetzung noch 5% - 10% der Ausgangsleistung erzeugt, die abgeführt werden müssen. Der Kompressor wird durch den Störfall abgeschaltet. Es stellt sich ein Heliumausgleichsdruck von ca. 60 bar im Reaktordruckbehälter ein. Die obere Kugelschüttung weist kühlere Temperaturen auf. Es bildet sich ein Naturkonvektionsstrom des Heliums, das im Reaktor nach oben steigt, den Deckenreflektor aufheizt und am kühlen Seitenreflektor nach unten abfällt.

Da im Partikel nur noch Nachzerfallsleistung erzeugt wird, gleichen sich die Partikel- und die Moderatortemperatur innerhalb der ersten Minuten an. Diese Ausgleichsvorgänge werden nicht simuliert, da sie für die maximale Temperatur nicht ausschlaggebend sind. Für die Analyse der maximalen Temperatur reicht die Betrachtung der Brennstofftemperatur. Von der Brennelementoberfläche wird die Wärme durch Naturkonvektion und Wärmeleitung von Helium abgeführt.

In Abb. 4.18 ist die maximale Brennstofftemperatur im gesamten Reaktor dargestellt. Durch Naturkonvektion kann sich der Ort der maximalen Temperatur im Reaktor ändern. In diesem Störfall ist die größte Belastung nicht an den Brennstoffpartikeln, sondern an der schnellen Aufheizung des Decken- und Seitenreflektors und den daraus resultierenden Zug- und Druckspannungen. Die maximalen Temperaturen bleiben im Verlauf dieses Störfalls unterhalb der zulässigen Temperaturen für diese Strukturen.

Die maximale Brennelementtemperatur liegt bei Pu bei 1254 °C, bei MA bei 1200 °C und bei U bei 1307 °C. Diese sind weit von der maximal zulässigen Brennstofftemperatur entfernt. Damit stellt dieser Störfall kein Problem für die Spaltnuklidfreisetzung dar.

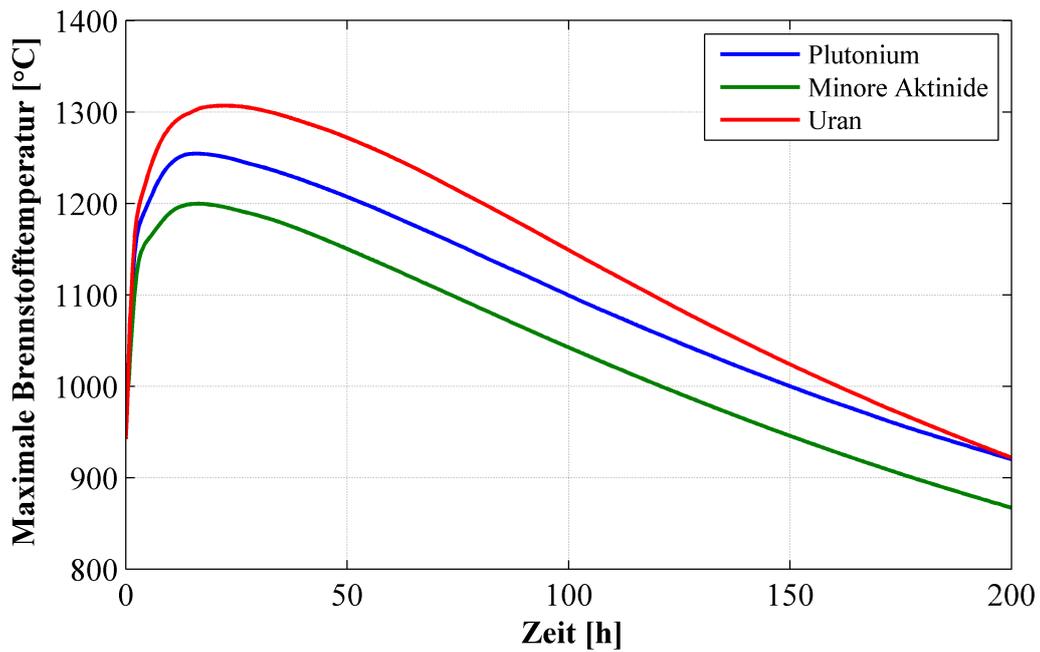


Abbildung 4.18: Maximale Brennstoff-Temperatur bei Ausfall der aktiven Kühlung unter Druck für den Pu-, MA- und U-Brennstoff beladenen Reaktor.

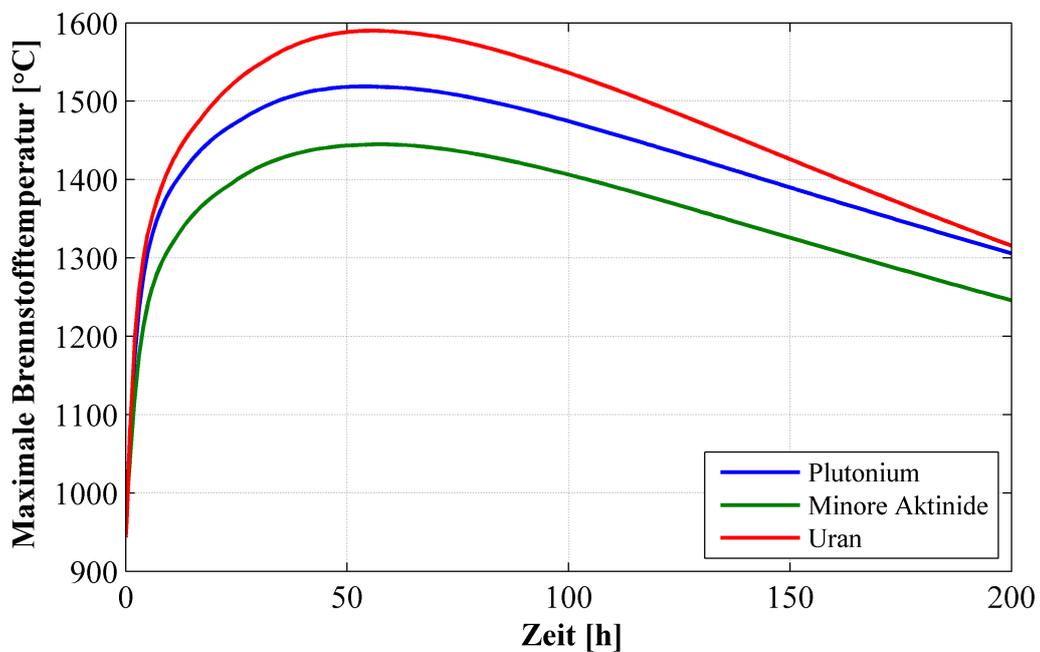


Abbildung 4.19: Maximale Brennstoff-Temperatur bei Kühlmittelverlust für den Pu-, MA- und U-Brennstoff beladenen Reaktor.

4.4.1.2 Kühlmittelverluststörfall

Im Falle eines Kühlmittelleitungsbruchs fällt die aktive Kühlung aus und der Heliumdruck fällt auf den Druck ab, der im Containment herrscht (DLOCA - Depressurized Loss Of Coolant Accident). Der konvektive Wärmetransport nimmt durch den Abfall auf ca. 1 bar Druck stark ab. Die Wärme muss über Wärmeleitung und Wärmestrahlung an den Flächenkühler abgegeben werden.

In Abb. 4.19 werden die maximalen Brennstoff-Temperaturen für Pu, MA und U über der Zeit angegeben. Analog zum Störfall LOFC werden die Ausgleichsvorgänge zwischen Partikel- und Moderatortemperatur nicht simuliert. Die Brennelementtemperatur steigt nach ca. 60 Stunden auf einen Maximalwert von 1519 °C (Pu), 1445 °C (MA) und 1590 °C (U). Die Abkühlung findet durch den Wegfall des konvektiven Wärmetransports langsamer statt als im LOFC-Fall. Die maximal zulässige Temperatur im Brennelement wird auch im Kühlmittelverluststörfall nicht überschritten.

4.4.2 Reaktivitätsstörfälle

Ein weiterer Störfall ist die Zufuhr von Reaktivität ins System. Diese Reaktivität muss entweder durch externe Systeme (Einfahren der Steuerstäbe) oder durch interne Rückwirkung (negativer Temperaturkoeffizient) kompensiert werden.

4.4.2.1 Wassereinbruch

LWR werden leicht untermoderiert betrieben. Dadurch wird bei einer Leistungserhöhung oder im Kühlmittelverluststörfall die Dichte bzw. die Menge an Moderator (Wasser) reduziert, was zu einer Abnahme der Reaktivität im Reaktor führt. Im HTR ist keine Änderung der Moderatorichte möglich. Trotzdem wird dieser Reaktor mit einem geringen Moderator-zu-Brennstoff-Verhältnis betrieben. Durch Zugabe von Moderator, z. B. Wasser, wird das Moderationsverhältnis verbessert, und die Reaktivität im Reaktor steigt an.

Da auch beim Brayton-Cycle die Wärme des Heliums u. a. an wasserbetriebene Wärmetauscher abgegeben wird, ist ein Wassereinbruch im HTR nicht ausgeschlossen. Daher soll in diesem Kapitel der Einfluss von Wasser auf die Reaktivität im HTR betrachtet werden. In einer rein stationären Rechnung mittels ZIRKUS soll die Reaktivitätsänderung als Funktion des partiellen Wasserdampfdrucks im Reaktor ermittelt werden.

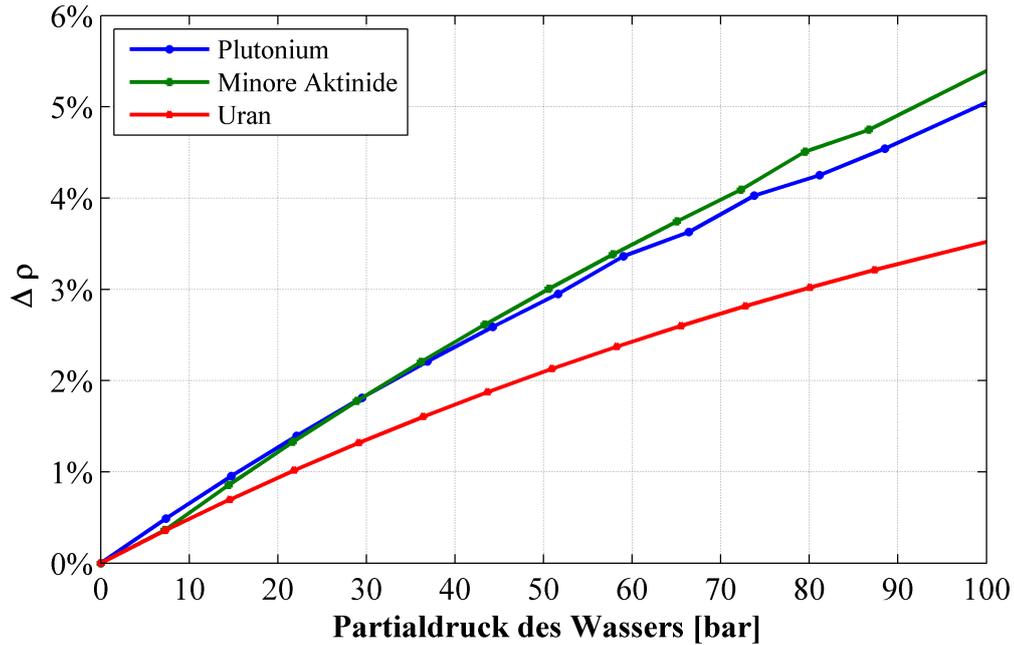


Abbildung 4.20: *Reaktivitätsänderung in Abhängigkeit des Wasserdampfpartialdrucks in einem HTR mit Pu-, MA- bzw. U-Brennstoff.*

In ZIRKUS wird die Masse an Wasser als Eingabeparameter angegeben. Daher berechnet sich der Partialdruck folgendermaßen:

$$p \cdot V = m \cdot R_s \cdot T$$

Dabei ist V das Volumen, das der Wasserdampf einnehmen kann, m die Masse des Wasserdampfs im Reaktor, R_s die spezifische Gaskonstante ($R_s = 8,31451 \text{ J}/(\text{mol} \cdot \text{K})$) und T die mittlere Gastemperatur im System.

Der Druck wird im gesamten Reaktor als konstant angenommen, d. h. es wird keine Wasserdampfdruckänderung durch unterschiedliche Temperaturbereiche im Reaktor berücksichtigt. Die mittleren Brennelement-Oberflächentemperaturen sind $T(\text{Pu}) = 770 \text{ }^\circ\text{C}$, $T(\text{MA}) = 749 \text{ }^\circ\text{C}$ und $T(\text{U}) = 756 \text{ }^\circ\text{C}$. Bei den gegebenen Temperaturen und der gegebenen Geometrie entspricht 1 bar Wasserdampfdruck ungefähr 7 kg Wasser. Die Rückwirkung durch den Reaktivitätsanstieg auf die Brennstofftemperaturen und auch die durch das eingedrungene Wasser hervorgerufenen chemischen Reaktionen werden nicht betrachtet.

In Abb. 4.20 ist die Reaktivitätsänderung $\Delta\rho$ zum Gleichgewichtszustand über dem Wasserdampfpartialdruck aufgetragen. Um den verschiedenen beladenen Reaktoren eine Reaktivitätszufuhr in der Höhe der verzögerten Neutronen zuzuführen ($1\beta(\text{Pu}) = 0,39$; $1\beta(\text{MA}) = 0,37$; $1\beta(\text{U}) = 0,55$), ist ein partieller Wasserdruck von ca. 0,6 bar bei Pu, von ca. 0,7 bar bei MA bzw. ca. 1,1 bar bei U notwendig. Damit stellt der Wassereinbruch für den Pu- und MA-beladenen Reaktor eine größere Gefahr dar als bei U.

Durch den Wasserdampf wird der Druck im Reaktor erhöht. Dadurch öffnet sich ein Ventil, um den Druck wieder unter 90 bar zu reduzieren. Der maximal mögliche Wasserdampfdruck liegt daher bei 90 bar, wobei das komplette Helium aus dem Reaktor verdrängt worden wäre. Dies entspricht einer maximalen Wassermenge von ca. 620 kg im Reaktor, was zu einer Reaktivitätsfreisetzung von 4,75 % für MA, 4,5 % für Pu und 3,2 % für U führt. Die freigesetzte Reaktivität bei Pu erreicht nahezu die Reaktivität, die durch das Einwerfen der Steuerstäbe aus dem Gleichgewichtszustand kompensiert werden kann. Transiente Analysen müssen zeigen, in wieweit Temperaturänderungen die Wirksamkeit der Steuerstäbe und die Rückwirkung durch Wassereintrich verändern. Außerdem muss die Rückwirkung der Temperaturkoeffizienten berücksichtigt werden. Prinzipiell sollte eine solch starke Reaktivitätszufuhr verhindert werden. Im Falle des Brayton-Cycle wäre z. B. ein Helium-Helium-Zwischenwärmetauscher notwendig.

4.4.2.2 Gleichzeitiges Ausfahren aller Steuerstäbe

Ein weiterer Störfall, der betrachtet wird, ist das Ausfahren aller Steuerstäbe, hervorgerufen durch einen technischen Defekt. Die dadurch freiwerdende Reaktivität resultiert in einer Leistungserhöhung, die eine Temperaturerhöhung mit sich zieht.

In diesem Kapitel soll ermittelt werden, in wieweit die negativen Temperaturkoeffizienten diesen Störfall kompensieren können. Dieses Problem wird mittels einer gekoppelten Version des zeitabhängigen Thermohydraulikprogramm ATTICA3D mit einem Punktkinetikprogramm berechnet. Die Leistung wird dabei mittels einem konstanten Faktor auf die Reaktivitätsänderung angepasst. Eine Veränderung des Leistungs- und Temperaturprofils durch die Reaktivitätszufuhr wird nicht berücksichtigt. Daher kann keine genaue Aussage über die maximalen Temperaturen gemacht werden. Da die Ausgangstemperaturen jedoch bereits für den stationären Zustand viel zu hoch sind, ist diese Analyse nur für das prinzipielle Verhalten des Reaktors sinnvoll. Deshalb werden im Folgenden die mittleren Temperaturen von Brennstoff und Moderator gezeigt.

Das Leistungsprofil wird aus den stationären Berechnungen aus ZIRKUS übernommen. Als Input erhält ATTICA3D die Temperaturkoeffizienten des jeweiligen Reaktortyps. Bei dieser Programmkopplung wird nur ein Brennelement mit mittlerem Abbrand, d. h. mit einer mittleren Nuklidichte in einer Abbrandzone betrachtet.

In den folgenden Analysen wird den jeweiligen Reaktoren über eine lineare Rampe eine Reaktivität über einen zwei unterschiedlich lange Zeiträume zugeführt. Dies soll einem schnellen und einem langsamen Steuerstabziehen entsprechen. Die dem System zugeführte Reaktivität soll in allen drei unterschiedlich beladenen Reaktoren 2\$ betragen. Der Reaktivitätswert resultiert aus der Vorgabe, dass ein Anfahren von 50 % Leistung auf 100 % Leistung im Xenonmaximum möglich ist. Wie in Kap. 4.3.1 gezeigt, war bei U eine Reaktivitätsfreigabe von knapp 1 % notwendig. Bei einem Anteil der verzögerten Neutronen von 0,55 im U-Brennelement beträgt die dafür benötigte Reaktivität der

Steuerstäbe in etwa 2\$. Für Pu und MA bedeutet eine Reaktivitätsreserve von 2\$ eine Reaktivität von 0,78% (Pu) bzw. 0,74% (MA). Dies ist für einen Lastwechsel dieser Reaktoren auch ausreichend.

Eine direkte Rückkopplung des Systemkreislaufs wird nicht betrachtet. Bei 120% der Nennleistung wird der Massenstrom innerhalb von 20 Sekunden auf 30% des Nenn-Massenstroms abgefahren. Diese Werte stammen aus früheren Berechnungen von ähnlichen Systemen, die mit einem gekoppelten Programmsystem durchgeführt worden sind [82]. Ein RESA-Signal, das den Reaktor durch Einwerfen der Steuerstäbe abschaltet, wird unterdrückt.

Langsames Ausfahren

Der erste betrachtete Fall ist das langsame Ausfahren aller Steuerstäbe. Über eine lineare Reaktivität-Rampe wird dem System innerhalb eines Zeitraums von 350 Sekunden insgesamt eine Reaktivität von 2\$ zugeführt.

In Abb. 4.21 werden der Verlauf der Leistung der mittleren Brennstoff- und Moderatortemperaturen für diesen Störfall dargestellt. Abb. 4.21a) zeigt die relative Leistungsänderung während des Ziehens der Steuerstäbe in den unterschiedlich beladenen Reaktoren. In allen Fällen nimmt die Leistung in den ersten Sekunden zu, wobei bei Uran der Anstieg am stärksten ist. Die Grenze von 120% der Nennleistung, bei der der Massenstrom reduziert wird, wird bei U nach 89 Sekunden erreicht. Für Pu und MA setzt die Reduktion des Massenstroms erst nach über 200 Sekunden ein. Der unterschiedlich starke Leistungsanstieg zwischen Pu, MA und U kann durch die Temperaturkoeffizienten erklärt werden.

In Abb. 4.22 werden die Brennstoff- und Moderator-koeffizienten für Pu, MA und U dargestellt. Die mittleren Brennstoff- und Moderatortemperaturen sind zu Beginn des Störfalls in allen drei Brennelementen zwischen 750 °C und 850 °C. Bei dieser Temperatur ist der Moderator-koeffizient von U betragsmäßig weniger als halb so groß wie bei Pu und MA. Der Brennstoffkoeffizient von U kann diese Differenz nicht ausgleichen, sodass insgesamt die Summe aus Brennstoff- und Moderator-koeffizient für U betragsmäßig am kleinsten ist. Der Reflektorkoeffizient wird in diesem Störfall nicht berücksichtigt, da die Temperaturrückwirkung im Reflektor langsamer abläuft als der Störfall im Gesamten.

Eine Temperaturänderung führt bei Uran zu einer kleineren Rückkopplung. Daher nimmt die Leistung stärker zu und die Brennstoff- (siehe Abb. 4.21b) und Moderatortemperaturen (siehe Abb. 4.21c) steigen schneller an.

Innerhalb der ersten 50 Sekunden wird ein kleines Leistungsmaximum erreicht. Dies resultiert daraus, dass die Reaktivitätszufuhr durch das Ausfahren der Steuerstäbe mittels dem Temperaturkoeffizienten kompensiert werden kann.

Bei Beginn der Massenstromabnahme nimmt die mittlere Moderatortemperatur in den drei unterschiedlichen Reaktoren stark zu, da die Wärme nicht mehr abgeführt wird.

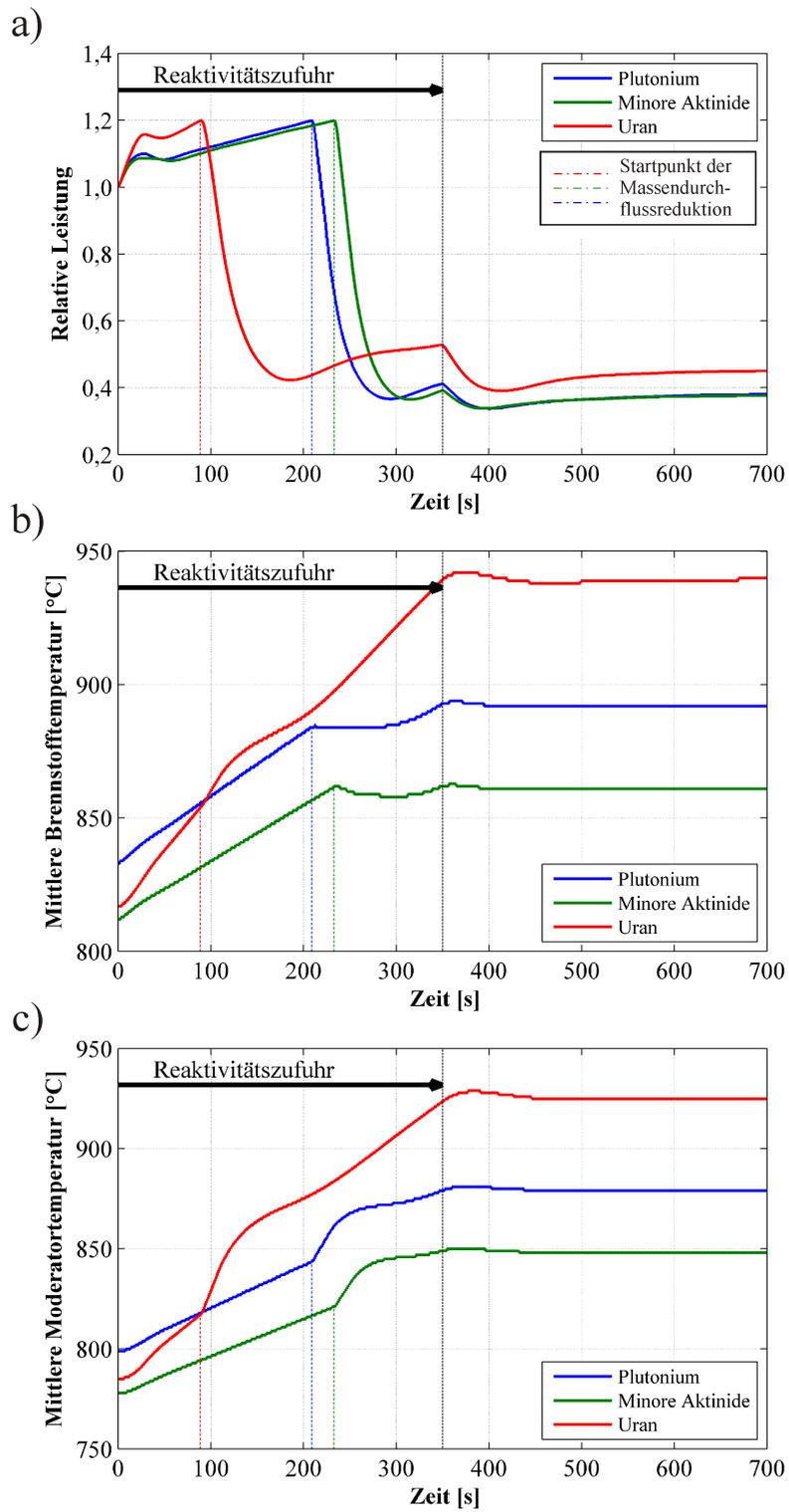


Abbildung 4.21: a) Relative Leistung, b) mittlere Brennstoff- und c) Moderatortemperatur bei einem Reaktivitätsstörfall mit langsamen Steuerstabziehen für einen Pu-, MA- und U-beladenen Reaktor.

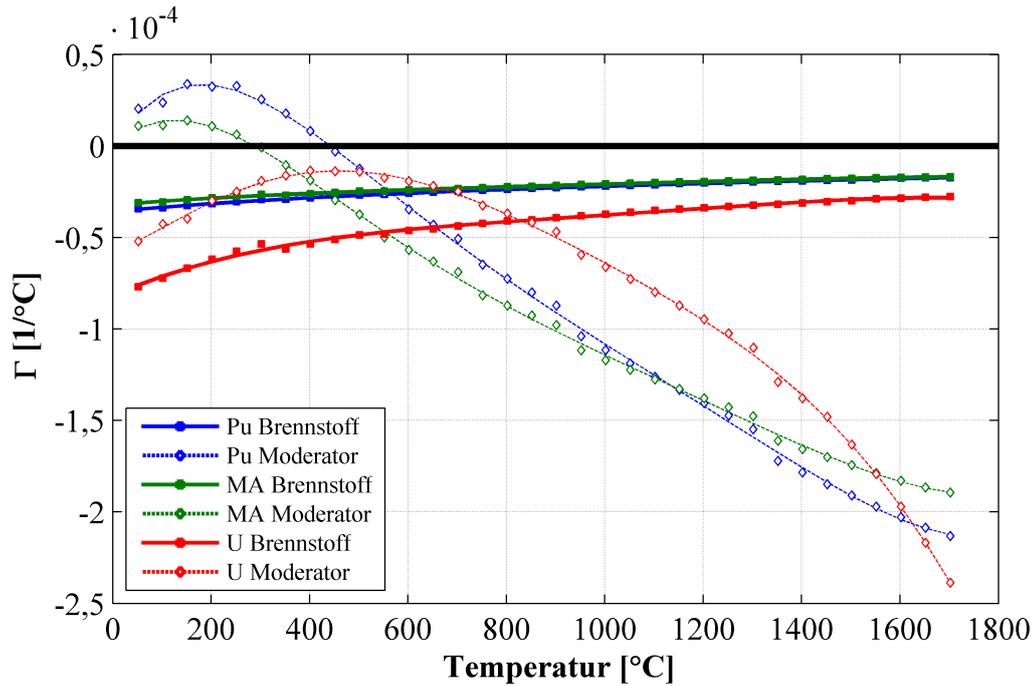


Abbildung 4.22: Brennstoff- und Moderatoroeffizient von Pu, MA und U.

Durch die große Temperaturdifferenz zwischen Partikel und Moderator bei Pu und MA, findet eine Temperaturumverteilung statt, sodass die mittlere Brennstofftemperatur des Reaktors kurzzeitig auf einem konstanten Wert stagniert. Nach Beendigung der Reaktivitätszufuhr wird in allen Fällen die maximale mittlere Brennstoff- und Moderatortemperatur erreicht. Nach 700 Sekunden werden noch 0,35 % (Pu/MA) bzw. 0,45 % (U) der Nennleistung erzeugt.

Insgesamt wird festgestellt, dass das mittlere Verhalten des Pu und MA beladenen Reaktors durch den stark negativen Moderatoroeffizienten besser ist als im U beladenen. Für genauere Angaben über die maximalen Temperaturen ist eine zwei- bzw. dreidimensionale Berechnung inklusive Kopplung zum Systemkreislauf notwendig.

Stabauswurf

Im zweiten Reaktivitätsstörfall werden die Steuerstäbe mit hoher Geschwindigkeit aus dem Reaktor geschossen. Die Reaktivität wird innerhalb von 3,5 Sekunden im Reaktor freigesetzt. In Abb. 4.23 wird der Leistungsverlauf und die mittlere Brennstoff- und Moderatortemperatur für diesen Störfall dargestellt.

In Abb. 4.23 a) zeigt die relative Leistungsänderung. Alle drei unterschiedlich beladenen Reaktoren zeigen einen starken Anstieg in der Leistung, wobei durch den betragsmäßig kleineren Temperaturkoeffizienten der Anstieg von Uran am stärksten ist. Die einsetzende Massenstromreduzierung bei 120 % der Nennleistung zeigt keinen Einfluss. Die Leistung fällt nach Beendigung der Reaktivitätszufuhr schnell ab und geht nach 40 Sekunden in ein Gleichgewicht von 41 % (Pu/MA) und 55 % (U) der Nennleistung.

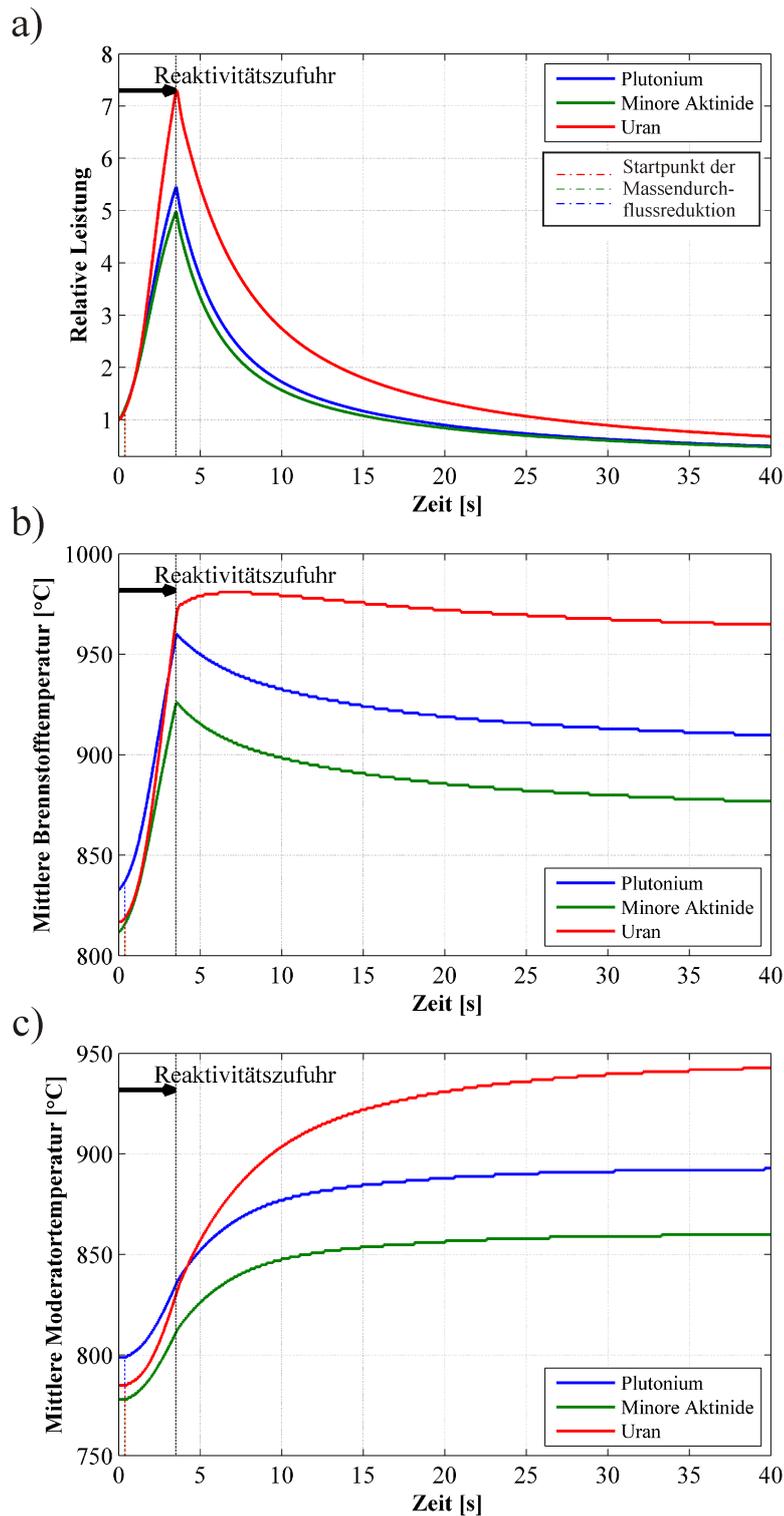


Abbildung 4.23: a) Relative Leistung, b) mittlere Brennstoff- und c) Moderatortemperatur bei einem Reaktivitätsstörfall mit schnellem Steuerstabziehen für einen Pu-, MA- und U-beladenen Reaktor.

Die Brennstoff- und Moderatortemperaturen (siehe Abb. 4.23 b), c)) sind durch den betragsmäßig kleineren Temperaturkoeffizienten von U am höchsten. Bei Pu und MA fällt die mittlere Brennstofftemperatur nach Beendigung der Reaktivitätszufuhr ab. Der Anstieg bei der Moderatortemperatur wird flacher. Durch den kleineren Partikelradius und den höheren negativen Moderatorkoeffizienten ist die Rückwirkung schneller als bei Uran.

Diese hohe Leistungsspitze mit mehr als dem fünf- bis siebenfachen der Nominalleistung führt zu extremen Verspannungen und Temperaturanstiegen im einzelnen Partikel. Da dieser Störfall ein hypothetischer Fall ist, sind diese Temperaturen jedoch nicht zu erwarten. Prinzipiell kann das Risiko insoweit verringert werden, als dass die Steuerstäbe im stationären Gleichgewicht möglichst wenig Reaktivität vorhalten. Wie in Kap. 4.3.1 analysiert, ist bei MA zum Beispiel keine Reaktivitätsvorhaltung durch Steuerstäbe für einen Lastwechsel auf 50 % Leistung notwendig.

4.5 Analyse der Aktiniden- und Toxizitätsreduktion

In den vorangegangenen Kapiteln wurde die Machbarkeit mit Plutonium und Minoren Aktiniden beladenen Reaktoren und deren Verhalten betrachtet. Analysiert wird im anschließenden Kapitel, ob eine Reduzierung der Masse an langlebigen Isotopen und eine Verminderung deren Toxizitäten erreicht werden kann. Es werden die Isotopendichten und Toxizitäten eines frischen mit einem abgebrannten Brennelements verglichen.

4.5.1 Reduktion der Nuklidmassen

Da die Isotope in sehr unterschiedlichen Dichten im Brennelement vorhanden sind, wird die relative Massenänderung eines Isotops während des kontinuierlichen Abbrands betrachtet (siehe Abb. 4.24). Mittels der Kopplung zwischen Spektralprogramm MICROX 2 und dem Abbrandprogramm ORIGEN 2.2 kann unter Annahme eines konstanten Neutronenflusses und konstanten Wirkungsquerschnitten die Änderung der Nukliddichten ermittelt werden (siehe auch Kap. 2 und Kap. 5.4).

In einem frischen Pu-Brennelement stellen die Spaltisotope ^{239}Pu und ^{241}Pu 67 % des Schwermetallgehalts dar. ^{241}Pu wird im Reaktor außerdem durch Neutroneneinfang an ^{240}Pu erzeugt. Bis ca. 300 MWd/kg SM wird mehr ^{241}Pu erzeugt als durch Spaltung und β -Zerfall abgebaut wird.

Zum Zeitpunkt des Entladeabbrands von 691 MWd/kg SM sind noch 6 % Spaltmaterial des Ausgangsspaltmaterials im Brennelement. Die im frischen Brennelement vorliegenden Pu-Isotope können um 79 % reduziert werden. Dabei werden die stark absorbierenden Pu-Isotope ^{238}Pu und ^{242}Pu während des Abbrands kurzzeitig bis zu 140 % bzw. 160 % ihrer Ausgangsmasse aufgebaut.

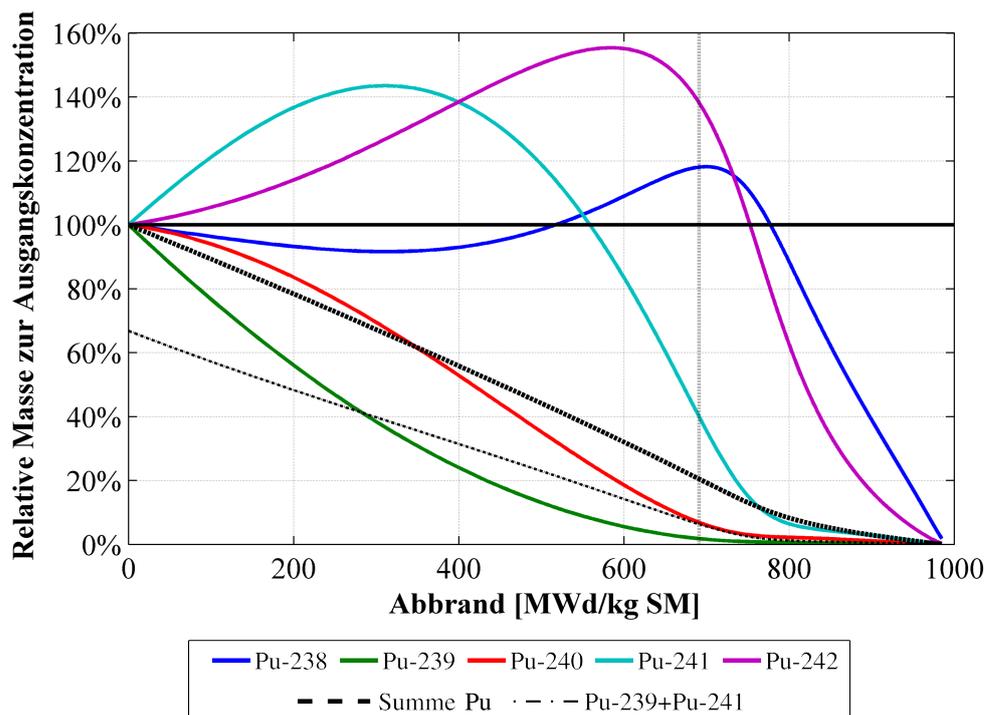


Abbildung 4.24: Relative Massenänderung der Pu-Isotope über dem Abbrand in einem Pu-Brennelement.

^{238}Pu wird folgendermaßen erzeugt:



$\tau_{1/2}$ ist die jeweilige Halbwertszeit der verschiedenen Nuklide. Das Isotop ^{242}Pu entsteht durch den Neutroneneinfang an ^{241}Pu .

In Abb. 4.25 werden die relativen Isotopenmassen in einem MA-Brennelement als Funktion des Abbrands dargestellt. Der Anteil der im frischen MA-Brennelement vorkommenden Isotope kann auf 36 % reduziert werden. Die Spaltisotope werden von 58 % auf 11 % minimiert. Neben den Nukliden, die bereits beim Pu-Brennelement eine Massenzunahme zum Entladezeitpunkt aufweisen, werden beim MA-Brennelement außerdem die Nuklide ^{242m}Am und ^{243}Am aufgebaut. Diese Nuklide entstehen auch während des Abbrands eines Pu-Brennelements. In Abb. 4.24 sind jedoch nur Nuklide betrachtet, die bereits im frischen Brennelement vorhanden sind. ^{242m}Am wird durch die oben gezeigte Reaktionskette, die auch zu ^{238}Pu führt, produziert. ^{243}Am kann durch Neutroneneinfang an ^{242m}Am erzeugt werden, aber auch durch den β^- -Zerfall an ^{243}Pu .

Die Isotope ^{238}Pu und ^{242m}Am besitzen Halbwertszeiten unter 100 Jahren. Die kurze Halbwertszeit und die erzeugte Menge dieser Isotope führt zu einer hohen Aktivität über einen kurzen Zeitraum hinweg. Die Isotope ^{242}Pu und ^{243}Am hingegen haben eine Halbwertszeit von $3,73 \cdot 10^5$ Jahren bzw. $7,37 \cdot 10^3$ Jahren. Da sie in gleichem Maße wie die kurzlebigen Nuklide erzeugt werden, ist die Aktivität dieser Nuklide durch die lange

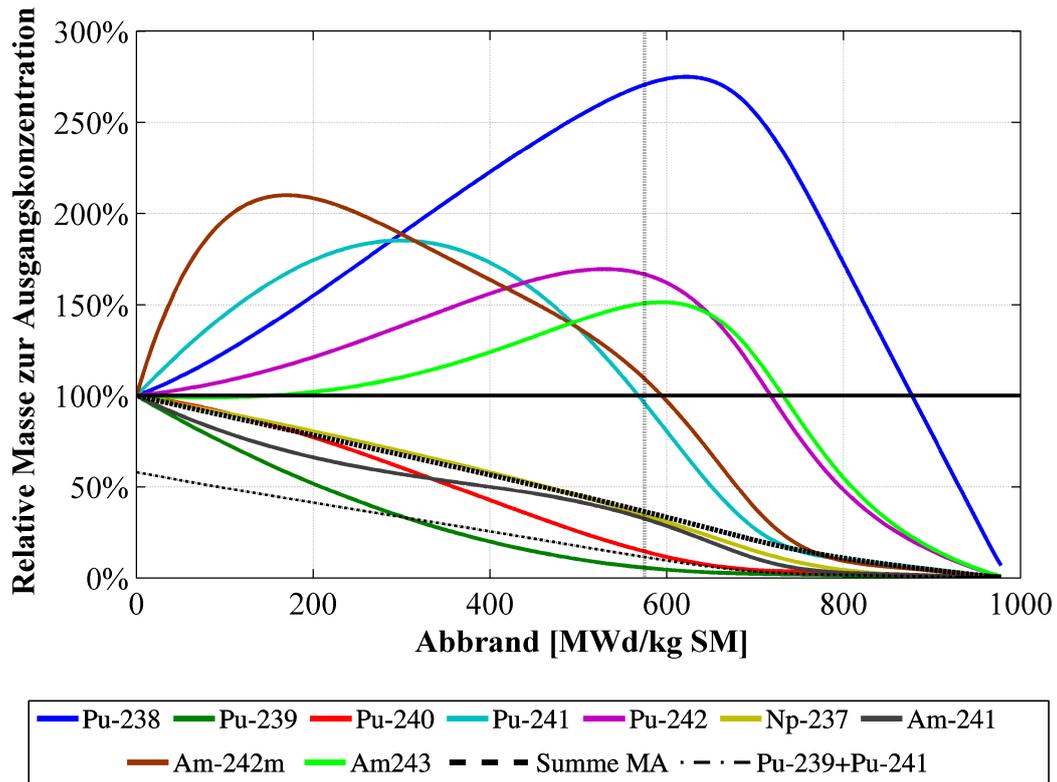


Abbildung 4.25: *Relative Massenänderung der Isotope über dem Abbrand in einem MA-Brennelement.*

Halbwertszeit etwas geringer. Jedoch nimmt die Aktivität durch die lange Halbwertszeit nur sehr langsam ab. Da die Radiotoxizität und die Wärmeentwicklung im Endlager ausschlaggebend sind, werden diese in den folgenden Kapiteln analysiert.

4.5.2 Toxizitätsverlauf im Endlager

Die Betrachtung der Nuklidmassen bei Entladeabbrand lässt keine Rückschlüsse auf die Radiotoxizität und die Wärmeentwicklung im Endlager zu. Die Nuklide weisen unterschiedliche Toxizitäten für Ingestion und Inhalation auf, sodass diese Parameter getrennt voneinander betrachtet werden. Die radiotoxische Ingestion ist die Strahlenbelastung durch die Aufnahme der radioaktiven Nuklide über die Nahrung. Die Inhalation ist die Aufnahme der radioaktiven Stoffe über die Luft.

In ORIGEN 2.2 sind die radioaktiven Grenzkonzentrationen für Ingestion und Inhalation (RCG - radioactivity concentration guides) [83] implementiert. Damit können die RCG-Werte, d. h. maximal erlaubten Konzentrationen für ein Nuklid für Ingestion und Inhalation und werden in Aktivität pro Volumeneinheit [Ci/m^3] angegeben werden.

Die Aktivität für eine gegebene Nuklidzusammensetzung wird in ORIGEN 2.2 berechnet und anschließend durch den RCG-Wert dividiert. Als Ergebnisse wird die Menge an

Wasser bzw. Luft in $[m^3]$ ausgegeben, die benötigt wird, diese Zusammensetzung bis zur Freigrenze zu verdünnen. Dies ist ein allgemein üblicher Wert zum Vergleich der verschiedenen Toxizitäten und wird Gefährdungspotenzial für Ingestion bzw. Inhalation bezeichnet. Es ist ein hypothetischer Wert, da es gesetzlich nicht erlaubt ist, radioaktive Stoffe zu verdünnen, um die notwendigen radiotoxischen Freigrenzen zu erreichen.

Als Vergleichstoxizitätsniveau wird üblicherweise die Toxizität der Menge an natürlichem Uran im Gleichgewicht mit den Tochternukliden betrachtet, die einem frischen Brennelement entspricht. Betrachtet wird im Folgenden die Toxizität für ein HTR-Brennelement, d. h. für 2,0 g Schwermetall. Die vorliegende Nuklidzusammensetzung für das Pu- und MA-Brennelement entspricht der Zusammensetzung eines abgebrannten LWR-Brennelements mit 3,7% Anreicherung von 41,2 MWd/kg SM Abbrand [26]. Wird berücksichtigt, dass nur 1% der Schwermetallmasse eines abgebrannten LWR-Brennelements aus Plutonium besteht [84], so sind 200 g angereichertes Uran notwendig, um ein HTR-Brennelement mit 2,0 g Plutonium zu erhalten. Um daraus die Menge an natürlichem Uran zu erhalten, kann folgende Gleichung genutzt werden, die aus der Massenerhaltung von natürlichem Uran U_{Feed} , angereichertem Uran U_{Prod} und abgereichertem Uran U_{Tail} folgt [84]:

$$U_{Feed} = \frac{\epsilon_{Prod} - \epsilon_{Tail}}{\epsilon_{Feed} - \epsilon_{Tail}} U_{Prod} \quad (4.3)$$

$\epsilon_{Prod} = \frac{^{235}U_{Prod}}{U_{Prod}}$: Gewünschte Anreicherung von ^{235}U für das LWR-Brennelement

$\epsilon_{Tail} = \frac{^{235}U_{Tail}}{U_{Tail}}$: ^{235}U -Anteil im abgereicherten Uran

$\epsilon_{Feed} = \frac{^{235}U_{Feed}}{U_{Feed}}$: ^{235}U -Anteil im natürlichen Uran

Der ^{235}U -Anteil in natürlichem Uran beträgt $\epsilon_{Feed} = 0,72\%$ und die gewünschte Anreicherung für das LWR-Brennelement ist $\epsilon_{Prod} = 3,7\%$. Für den ^{235}U -Anteil des abgereicherten Urans wird der Wert aus [84] mit $\epsilon_{Tail} = 0,2\%$ übernommen. Damit ergibt sich eine Menge an natürlichem Uran U_{Feed} von 1.346 g. Im Gleichgewicht mit den Tochternukliden kann aus der Aktivität und den RCG-Werten das Gefährdungspotenzial dieser Menge an natürlichem Uran bestimmt werden. Diese Ingestions- bzw. Inhalationstoxizität dient als Referenzniveau für die abgebrannten Pu- und MA-Brennelemente.

Verglichen werden die Toxizitäten der abgebrannten HTR-Brennelemente außerdem mit den Toxizitäten des Nuklidvektors eines frischen HTR-Brennelements. Der Vergleich soll den Verlauf im Endlager zeigen und damit eine mögliche Reduzierung der Toxizitäten und Nachzerfallsleistung.

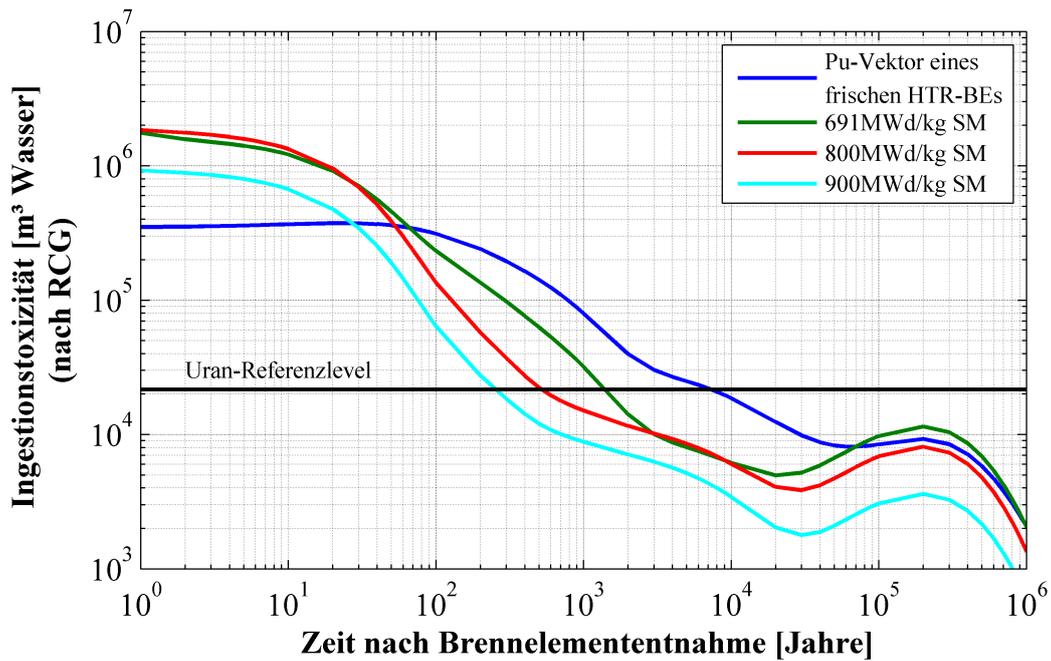


Abbildung 4.26: *Ingestionstoxizität eines frischen und eines abgebrannten Pu-Brennelements bei verschiedenen Endabbränden. Als Vergleich wird das Toxizitätsniveau der korrespondierenden Menge an Uran im Gleichgewicht mit den Tochternukliden dargestellt.*

4.5.2.1 Ingestionstoxizität

In Abb. 4.26 wird die Ingestionstoxizität eines abgebrannten Plutonium-Brennelements bei verschiedenen Endabbränden über einer Zeit von einem Jahr bis einer Million Jahre nach Brennelemententnahme dargestellt. Zusätzlich ist der Verlauf der Toxizität des Pu-Nuklidvektors eines frischen HTR-Brennelements ohne Abbrand eingezeichnet. Die schwarze Gerade bei 21.700 m^3 Wasser symbolisiert das Referenzniveau des natürlichen Urans. Die größere Toxizität ein Jahr nach Brennelemententnahme der hochabgebrannten Brennelementen im Vergleich zum frischen Brennelement liegt hauptsächlich am produzierten Curium (siehe Abb. 4.27).

Durch verschiedene Zerfälle nimmt die Ingestionstoxizität von Americium die ersten 100 Jahre zu. Isotope, die bei Zerfall α -Teilchen emittieren, wie die meisten Plutonium-, Americium- und Curium-Isotope, weisen eine besonders hohe Ingestionstoxizität auf [37]. Nach 65 Jahren ist die Ingestionstoxizität des abgebrannten Brennelements genauso groß wie die des frischen. Anschließend ist beim abgebrannten Brennelement ein stärkerer Abfall der Toxizität zu erkennen. Im weiteren Verlauf erreicht das Brennelement mit 691 MWd/kg SM das Referenzniveau des Urans nach 1.500 Jahren, während das frische Brennelement 6.500 Jahre länger dafür benötigt.

Für höhere Entladeabbrände ist kein kritischer Reaktor möglich. Einzelne Brennelemente

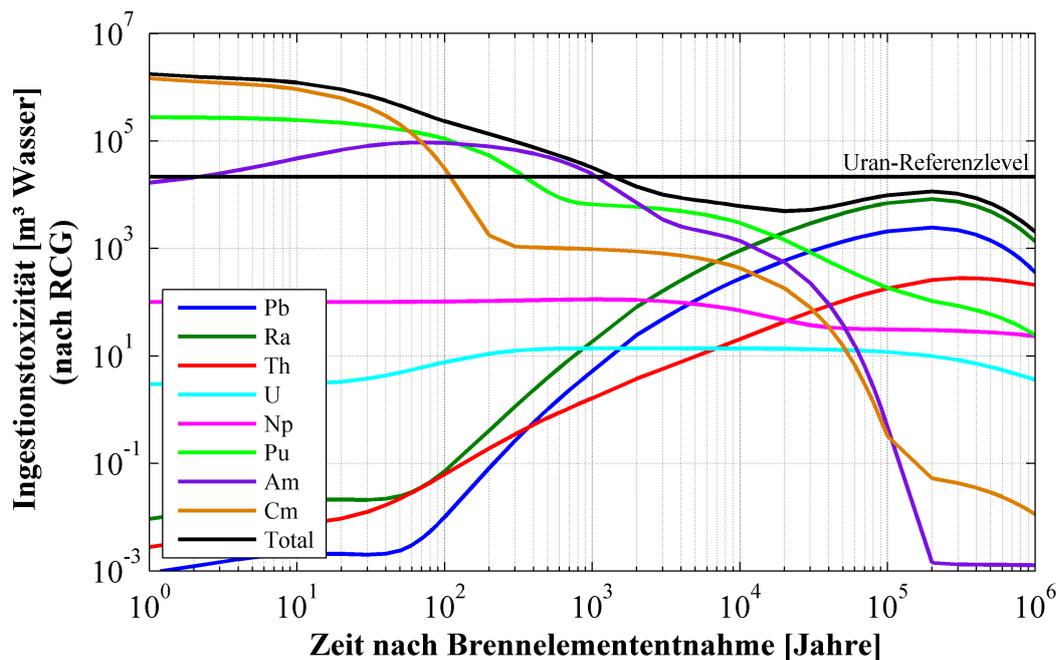


Abbildung 4.27: *Ingestionstoxizität der abbrandbedingten Elementzusammensetzung eines Pu-Brennelements mit 691 MWd/kg SM.*

könnten jedoch zu höheren Abbränden abgebrannt werden, indem sie in einen stationären Reaktor gegeben werden. Dabei bleibt der auf die Brennelemente einwirkende Neutronenfluss gleich. Die Nuklidichten für höhere Abbrände werden mittels ORIGEN 2.2 unter der Annahme eines gleichbleibenden Neutronenflusses und gleichbleibenden Wirkungsquerschnitten berechnet. Das Pu-Brennelement erreicht mit 800 MWd/kg SM bereits nach 600 Jahren und mit 900 MWd/kg SM nach 300 Jahren das Uran-Referenzniveau.

In Abb. 4.28 wird die gleiche Ingestionskurve für das MA-Brennelement dargestellt. Auch in diesem Fall ist zu Beginn das abgebrannte Brennelement zunächst toxischer als das frische. Der Schnittpunkt zwischen abgebranntem und frischem Brennelement ist bei 250 Jahren. Das Niveau des natürlichen Urans wird für das Brennelement mit 575 MWd/kg SM Abbrand bei knapp 2.000 Jahren erreicht; für das frische Brennelement sind dafür 8.000 Jahre notwendig. Für höhere Abbrände kann die Zeit bis zum Erreichen des Referenzniveaus auf 350 Jahre gesenkt werden.

Sowohl beim abgebrannten Pu- als auch beim abgebrannten MA-Brennelement tritt ein interessantes Phänomen auf. Nach ca. 10.000 Jahren wird ein Ingestionstoxizitätsminimum erreicht. Anschließend steigt die Toxizität bis ca. 200.000 Jahren an, um dann wieder abzufallen. Der Toxizitätsverlauf des Pu-Brennelements für verschiedene Elemente erklärt dieses Phänomen (Verlauf für MA analog zu Pu). Die Gesamtingestionstoxizität ist je nach Dauer der Endlagerung abhängig von verschiedenen Nukliden. Bis ca. 10.000 Jahren wird die Toxizität durch

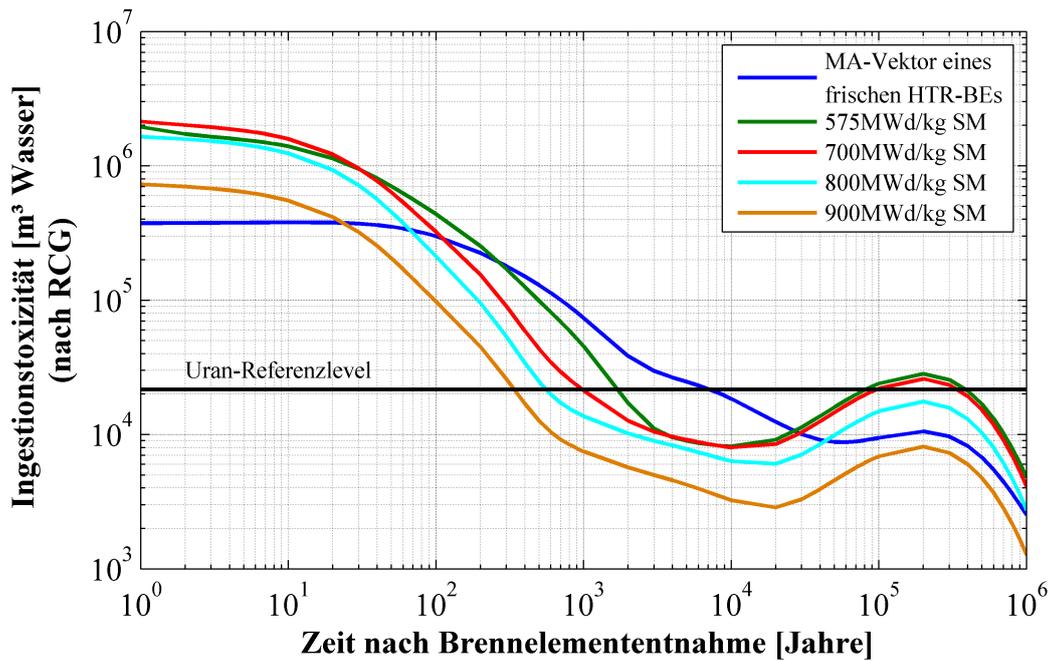


Abbildung 4.28: *Ingestionstoxizität eines frischen und eines abgebrannten MA-Brennelements bei verschiedenen Endabbränden. Als Vergleich wird das Toxizitätsniveau der korrespondierenden Menge an Uran im Gleichgewicht mit den Tochternukliden dargestellt.*

die Aktinide bestimmt. Durch Selbstspaltung der Aktinide und anderen Kernreaktionen entstehen die Elemente Blei und Radium. Diese nehmen nach 10.000 Jahren noch an Toxizität zu und verursachen ein Maximum im Toxizitätsverlauf. Im abgebrannten MA-Brennelement übersteigt die Ingestionstoxizität durch diesen Effekt nochmals das Uran-Referenzniveau.

Insgesamt kann festgestellt werden, je höher der Abbrand, desto früher kann das Referenzniveau des natürlichen Urans erreicht werden. Außerdem verringert sich mit höherem Abbrand der Einfluss der Elemente Blei und Radium bei 100.000 Jahren. In wieweit die Freigrenze für Ingestionstoxizität früher erreicht wird, kann nicht eindeutig geklärt werden. Durch die Produktion von Tochternukliden während des Abbrands kann die Toxizität wie oben gezeigt, nach einem langen Zeitrahmen noch einmal ansteigen.

4.5.2.2 Inhalationstoxizität

Der hauptsächliche Unterschied zwischen der Inhalation und der Ingestion liegt an der radioaktiven Belastung der verschiedenen Organe. Bei der Inhalation weisen vorwiegend die Atemwege höhere Gewebedosisfaktoren als bei der Ingestion auf.

In Abb. 4.29 wird der Verlauf der Inhalationstoxizität eines abgebrannten Pu-Brennelements bei verschiedenen Entladeabbränden dargestellt. Zusätzlich ist

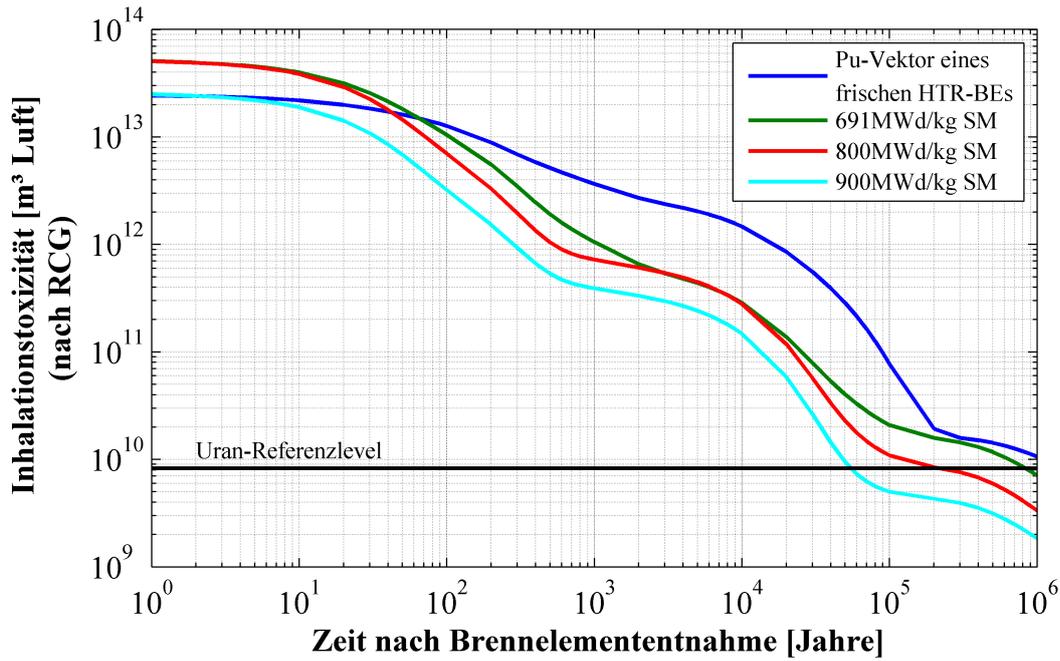


Abbildung 4.29: *Inhalationstoxizität eines frischen und eines abgebrannten Pu-Brennelements bei verschiedenen Endabbränden. Als Vergleich wird das Toxizitätsniveau der korrespondierenden Menge an Uran im Gleichgewicht mit den Tochternukliden dargestellt.*

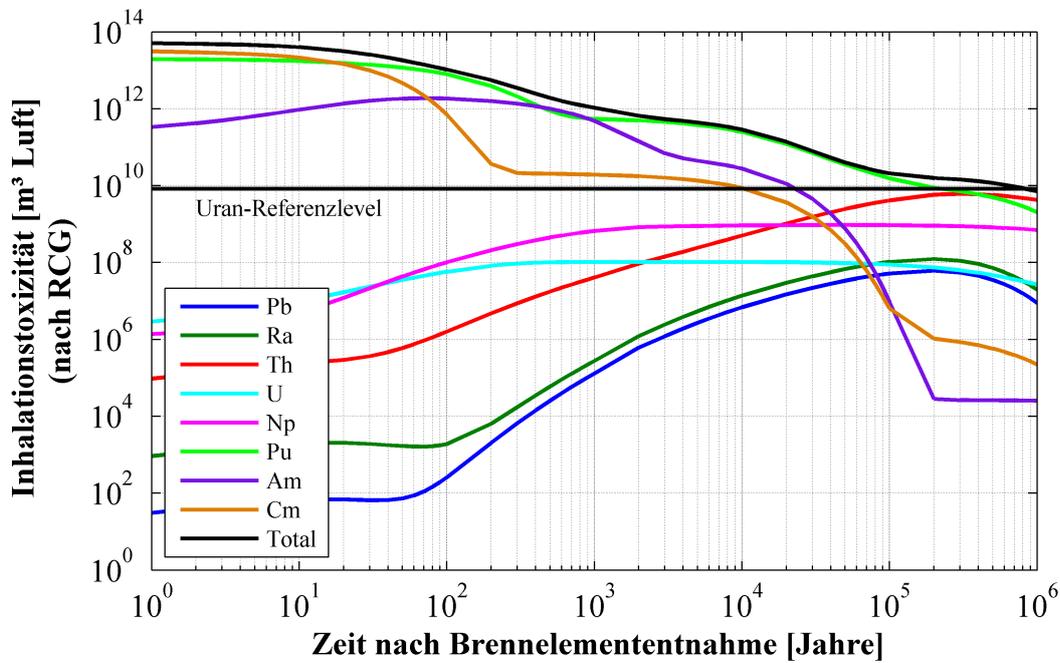


Abbildung 4.30: *Inhalationstoxizität der abbrandbedingten Elementzusammensetzung eines Pu-Brennelements mit 691 MWd/kg SM.*

der Verlauf der Toxizität eines frischen HTR-Brennelements ohne Abbrand eingezeichnet. Dabei wird das Referenzniveau durch die Inhalationstoxizität des natürlichen Urans mit $8,3 \cdot 10^9 \text{ m}^3$ Luft beschrieben. Der Verlauf der abgebrannten MA-Brennelemente ist analog zu den Pu-Brennelementen.

Ein Jahr nach Brennelemententnahme ist die Inhalationstoxizität des abgebrannten Brennelements höher als die des frischen. Nach 70 Jahren für Pu und 300 Jahren für MA haben das frische und das abgebrannte Brennelement die gleiche Toxizität. Für das Erreichen des Uranniveaus sind beim frischen Pu-Brennelement zwei Millionen Jahre und beim abgebrannten 0,8 Millionen Jahre notwendig. Beim abgebrannten MA-Brennelement wird das Referenzniveau nach 1,5 Millionen Jahre erreicht.

Die Inhalationstoxizität eines abgebrannten Pu-Brennelements mit 900 MWd/kg SM Abbrand ist ein Jahr nach Brennelemententnahme genauso groß wie die des frischen Brennelements. Das Uranreferenzniveau wird nach 50.000 Jahren erreicht.

In Abb. 4.30 ist die Inhalationstoxizität der abbrandbedingten Elementzusammensetzung eines Pu-Brennelements mit 691 MWd/kg SM Abbrand dargestellt. Dominiert wird die Toxizität durch die Aktinide; die Spaltprodukte weisen keinen nennenswerten Beitrag auf. Das Hauptelement der Inhalationstoxizität ist Plutonium. Durch höhere Abbrände, wie in Kap. 4.5.1 analysiert, fällt die Konzentration der Pu-Isotope weiter ab. Dies wäre für eine effektive Reduzierung der Inhalationstoxizität notwendig.

4.5.3 Wärmeentwicklung durch Kernzerfälle

Bei der Endlagerung muss die Wärmeentwicklung im abgebrannten Brennelement berücksichtigt werden. Je mehr Wärme ein Brennelement entwickelt, desto weniger Brennelemente können auf engem Raum zusammen gelagert werden.

In Abb. 4.31 ist die Wärmeentwicklung im Endlager eines frischen und eines abgebrannten Pu-Brennelements dargestellt. Da der betrachtete Zeitraum ein Jahr nach Brennelemententnahme beginnt, sind die kurzlebigen Spaltprodukte bereits zerfallen und haben keine Einfluss mehr auf die Gesamtwärmeentwicklung. Die Nachzerfallsleistung ein Jahr nach Brennelemententnahme ist höher als die des frischen Plutoniumvektors. Dies liegt hauptsächlich am erzeugten Curium, dessen verschiedene Isotope durch Spontanspaltung und α -Zerfälle mit Halbwertszeiten zwischen 18 und 162 Jahren zerfallen. Plutonium und Americium tragen einen weiteren großen Bestandteil zur Nachwärme bei.

Das Niveau des frischen Brennelements erreicht das Pu-Brennelement mit 691 MWd/kg SM nach 80 Jahren. Im Falle des MA-Brennelements erreicht das mit 575 MWd/kg SM abgebrannte Brennelement das Niveau des frischen MA-Nuklidvektors ohne Abbrand nach 350 Jahren. Das bedeutet, die abgebrannten Pu-Brennelemente könnten nach einer Zwischenlagerung von 80 Jahren auf gleichem Raumvolumen gelagert werden wie die frischen Brennelemente. Nach 40.000 Jahren ist das abgebrannte

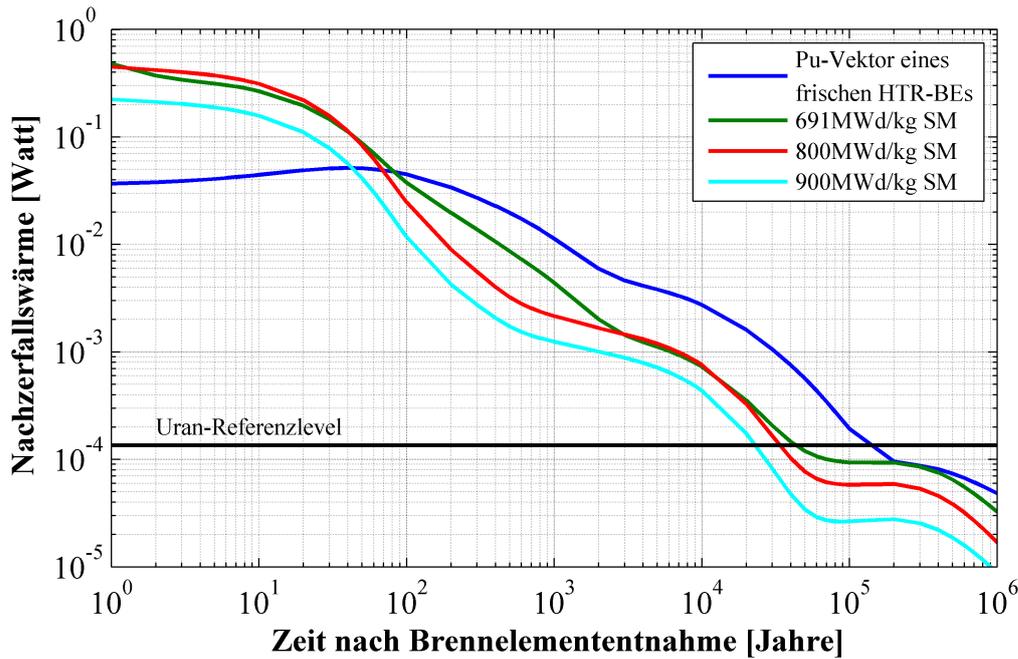


Abbildung 4.31: Wärmeentwicklung durch Nachzerfallswärme eines frischen und eines abgebrannten Pu-Brennelements bei verschiedenen Endabbränden. Als Vergleich wird die erzeugte Wärme der korrespondierenden Menge an U im Gleichgewicht mit den Tochternukliden dargestellt.

Pu-Brennelement auf dem Niveau des natürlichen Urans angelangt, wo hingegen das frische Brennelement 150.000 Jahren Lagerung benötigt.

Ein höherer Abbrand des Pu-Brennelements auf 900 MWd/kg SM verkürzt die Zeit bis zum Erreichen des Uranniveaus auf 20.000 Jahre. Anschließend erreicht die Nachwärme ein Plateau, hervorgerufen durch die Elemente Blei, Radium und Thorium. Dieses Plateau tritt für das abgebrannte MA-Brennelement noch vor dem Erreichen des Uran-Referenzniveaus ein. So wird erst nach 500.000 Jahren dieses Niveau erreicht.

Insgesamt zeigt sich eine Reduzierung in den Nachwärme, was Vorteile bei der kompakten Lagerung der Brennelemente bringt. Wie bei den Toxizitäten zeigt sich, je höher der Abbrand, desto stärker ist die Reduzierung der Nachwärme.

4.6 Zusammenfassung

In diesem Kapitel wurden die maximalen Entladeabbrände, Toxizitäten und Nachzerfallsleistungen bei der Endlagerung ermittelt. Der gewünschte Abbrand von 800 MWd/kg SM kann für die gegebene Referenz-Reaktorgeometrie und Brennelemente nicht erreicht werden.

Die Neutronenfluss-, Leistungs- und Temperaturverteilungen der mit verschiedenen Brennelementen beladenen Reaktoren wurden untersucht und das Verhalten im Störfall analysiert. Dabei sind Leistungs- und Neutronenflussverteilungen sehr heterogen und die Temperaturen im Partikel viel zu hoch. Damit muss für ein mögliches, genehmigungsfähiges Konzept die Leistung reduziert werden. Weitere Sicherheitsvorkehrungen, wie z. B. durch einen Gas-Zwischenkühlkreislauf, zum Ausschluss von Wassereintritt, werden gefordert.

Durch die Nutzung von Nukliden aus abgebrannten Brennelementen ist es möglich, die Menge an radioaktiven Abfall im LWR zu reduzieren und die Uran-Ressourcen zu schützen. Mit den in Tab. 4.3 gegebenen Werten kann eine Abschätzung über die

Tabelle 4.3: *Abschätzung, welche Menge an LWR-Brennelementen für eine komplette Beladung im HTR notwendig ist.*

Schwermetallgehalt im LWR-Brennelement [85]	530 kg
Schwermetallgehalt im HTR-Brennelement	2 g
Anteil an Schwermetall eines abgebrannten LWR-Brennelements für ein HTR-Brennelement	200 g
Anzahl Brennelemente im LWR	150 - 200
Anzahl Brennelemente im HTR	450.000

Menge an LWR-Brennelementen zur kompletten Befüllung eines HTRs durchgeführt werden. Da nur 1 % des Schwermetalls eines abgebrannten LWR-Brennelements aus den benötigten Plutoniumisotopen besteht, könnten bei effektiver Wiederaufbereitung aus einem LWR-Brennelement ca. 2650 HTR-Brennelemente produziert werden. Damit kann mit 170 LWR-Brennelementen eine komplette Beladung eines HTR erstellt werden. Bei einer durchschnittlichen Verweilzeit eines LWR-Brennelements von 5 Jahren steht alle 5 Jahre eine komplette Beladung für den HTR zur Verfügung.

Aus den abgebrannten LWR-Brennelementen wird zusätzliche Energie gewonnen. Ein Abbrand von 41,2 MWd/kg Uran des LWR-Brennelements entspricht einem Abbrand von 8,24 MWd pro 2,0 g Pu für ein HTR-Pu-Brennelement. Andererseits entspricht ein HTR-Pu-Brennelement mit einem Abbrand von 691 MWd pro kg Plutonium einem Abbrand von 1,382 MWd pro 2,0 g Pu für ein HTR-Pu-Brennelement. Damit können aus dem LWR-Brennelement nochmals zusätzlich 17 % Leistung gewonnen werden. Die

Idee dieses Projekts ist daher fortschrittlich und wäre auch wirtschaftlich sinnvoll. Nicht berücksichtigt wurde bei dieser Abschätzung die benötigte Energie zur Extraktion der Nuklide aus den LWR-Brennelementen.

Für die Endlagerbedingung zeigt sich, dass die Nachzerfallsleistung zu Beginn höher ist, als die des aus dem abgebrannten LWR-Brennelement extrahieren Plutoniums. Nach 100 Jahren jedoch sinkt die Wärmeentwicklung unter das Niveau des frischen Brennelements. Dadurch könnten nach dieser Zeit die Brennelemente kompakter gelagert werden, als es zuvor möglich gewesen wäre. Als Voraussetzung gilt, dass die Brennelemente zuvor 100 Jahre in einem Zwischenlager gelagert und gekühlt werden müssen. Die anschließende kompakte Endlagerung kann Kosten sparen, welche die Zwischenlagerung rechtfertigen. Die Ingestions- und Inhalationstoxizitäten erreichen nach kürzerer Zeit das Referenzniveau des natürlichen Urans. Mit noch größeren Abbränden könnten die Endlagerbedingungen noch weiter optimiert werden.

Der Reaktor ist jedoc in dieser Form nicht genehmigungsfähig. In Kap.6 wird versucht, durch verschiedene Änderungen des Referenzsystems einen Reaktor zu finden, der die Vorteile dieses Systems übernimmt und die Nachteile ausbessert.

5 Analyse von Sondereffekten

In diesem Kapitel werden verschiedene Effekte der im letzten Kapitel dargestellten Ergebnisse analysiert. Die hohen Partikeltemperaturen sollen über ein analytisches Verfahren verifiziert werden. Außerdem wird analysiert, wie sich das Spektrum in einem Gemisch aus Brennelementen mit stark unterschiedlichem Abbrand verhält. Ein Vergleich der Steuerstabwirksamkeit, die in Kap. 4.2.4 mittels MCNP berechnet worden ist, wird in einem Unterkapitel mit zwei- und dreidimensionaler Diffusionsrechnung verglichen. Im letzten Teil wird der maximale mögliche Abbrand in einem kritischen System abgeschätzt.

5.1 Überprüfung der Partikeltemperatur

Im Ergebniskapitel zeigte sich, dass bei gleicher Reaktorleistung die maximale Partikeltemperatur des Pu- und MA-Partikels mehr als 550 °C bzw. 300 °C höher ist als die des Uranpartikels (siehe Kap. 4.2.1). In diesem Kapitel sollen mittels der Lösung der Wärmeleitungsgleichung diese Partikeltemperaturen validiert werden.

Für die Berechnung der Temperatur im Inneren eines einzelnen Partikels wird eine konstante Leistung von 100 mW angenommen und die Wärmeleitfähigkeit für PuO₂ und UO₂ als identisch vorausgesetzt. Die genutzten Parameter werden in Tab. 5.1 wiedergegeben.

Hierfür wird die Wärmeleitungsgleichung

$$\frac{\partial T(x, t)}{\partial t} = \lambda(x) \cdot \Delta T(x, t) + q_0(x) \quad (5.1)$$

in einer eindimensionalen Berechnung mittels einem in MATLAB implementierten partiellen Differenzialgleichungslösers gelöst. In Gl. 5.1 steht $T(x, t)$ für die orts- und zeitabhängige Temperatur, $\lambda(x)$ für die Wärmeleitfähigkeit der einzelnen Materialien und $q_0(x)$ repräsentiert die ortsabhängig erzeugte Wärme.

Die Oberflächentemperatur der Brennelemente ist durch die Gastemperaturverteilung im Reaktor gegeben. Diese Verteilung ist im U-beladenen und im Pu-beladenen Reaktor nahezu gleich. Da die Wärmeübertragung im Graphit ebenfalls identisch ist, wird für beide Systeme an der Außenseite der vierten Beschichtung eine Temperatur von 950 °C als Randbedingung angenommen.

In Abb. 5.1 ist das Ergebnis für ein U-Partikel gezeigt. Da eine zeitlich konstante Leistungsabgabe angenommen worden ist, bildet sich ein stationäres Gleichgewicht.

Tabelle 5.1: Parameter zur Berechnung der Partikeltemperatur.

Radius Pu-Partikel	μm	100
Radius U-Partikel	μm	250
Wärmeleitfähigkeit λ im Partikel	W/mK	1,7
Wärmeleitfähigkeit λ in der 1. Schicht	W/mK	0,5
Wärmeleitfähigkeit λ in der 2. Schicht	W/mK	4,0
Wärmeleitfähigkeit λ in der 3. Schicht	W/mK	12,544
Wärmeleitfähigkeit λ in der 4. Schicht	W/mK	4,0
Leistung im Partikel (Pu und U)	mW	100
Temperatur an der Außenseite der 4. Beschichtung	$^{\circ}\text{C}$	950

In der Partikelmitte entsteht eine Temperatur von 978°C , das sind 28°C mehr als an der äußersten Beschichtung. Der große Unterschied des Pu-Partikels zum U-Partikel ist der weniger als halb so große Radius. Damit ist die Leistungsdichte im Pu-Partikel bei gleichbleibender produzierter Leistung acht Mal so groß wie im U-Partikel. Über die Kugeloberfläche bildet sich eine vierfach größere Temperaturdifferenz zwischen Partikelmitte und Außenseite der Beschichtung für das Pu-Partikel (siehe Abb. 5.2). Der Temperaturunterschied beträgt 102°C .

Um die gleiche Partikeltemperatur zu erhalten, darf die Leistung eines Pu-Partikels maximal ein Achtel der Leistung eines U-Partikels betragen. Zusätzlich sind in einem Pu-Brennelement mit 48.817 Partikel dreimal soviel Partikel wie im U-Brennelement mit

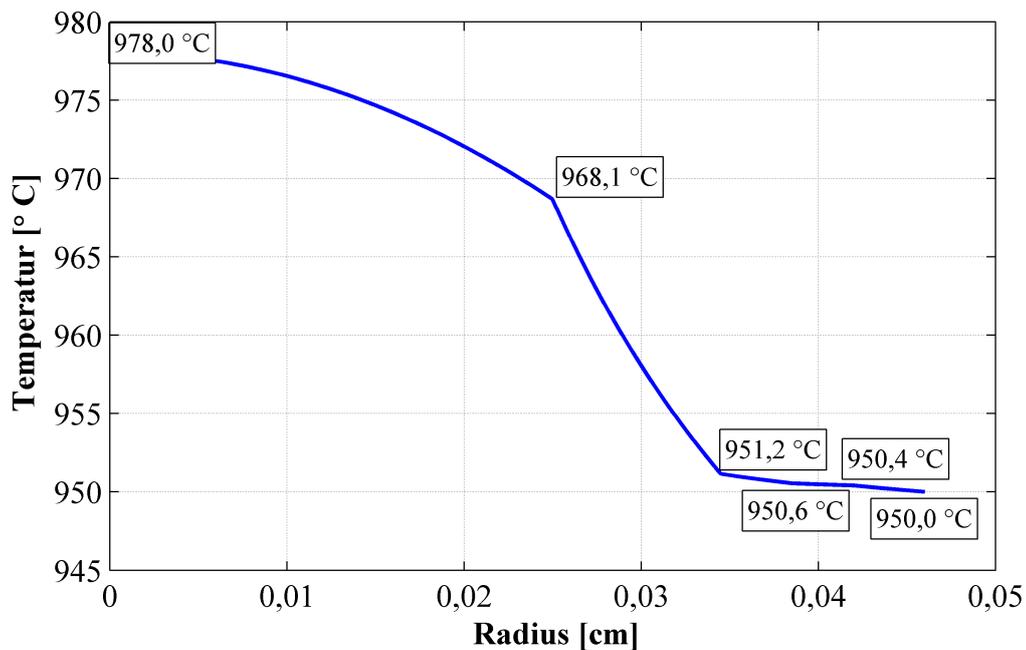


Abbildung 5.1: Temperatur eines Uranpartikels inkl. Beschichtung mit 100 mW Leistung.

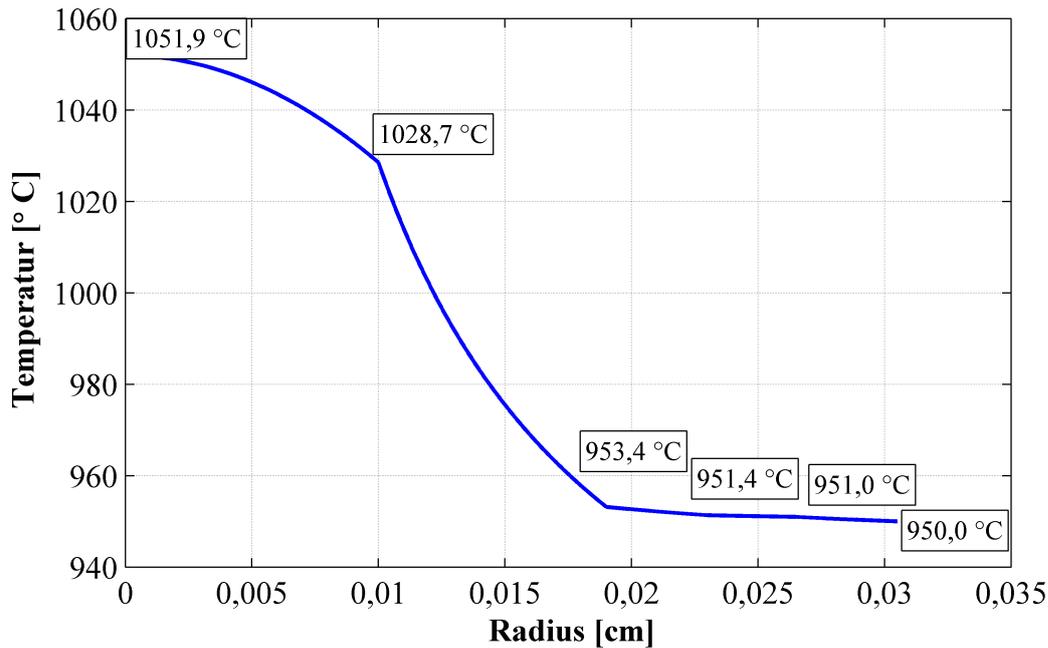


Abbildung 5.2: Temperatur eines Plutoniumpartikels inkl. Beschichtung mit 100 mW Leistung.

14.734 Partikel. Unter der Annahme, dass alle Partikel in einem Brennelement die gleiche Leistung erzeugen, darf die maximale Leistung eines Pu-Brennelements ca. 21 % der Leistung eines U-Brennelements betragen, um die gleiche Partikel-Temperaturdifferenz zu erhalten.

In den unterschiedlich beladenen Reaktor wird eine Leistung von 400 MW_{th} erzeugt. Die unterschiedlichen Leistungsverteilungen spiegeln sich auch in den Brennelementleistungen wider.

In Tab. 5.2 wird die maximale Brennelementleistung und die daraus resultierende Partikelleistung der drei unterschiedlich beladenen Reaktoren angegeben. Für die in der Tabelle angegebenen maximalen Partikelleistungen lassen sich die Temperaturunterschiede zwischen Partikelmitte und der Außenseite der 4. Beschichtung berechnen. Diese liegen für U bei 62 °C , für Pu bei 151 °C und für MA bei 110 °C . Da die Außenseite der Brennelemente nahezu gleiche Temperaturen aufweisen, steigt die

Tabelle 5.2: Maximale Brennelement- und Partikelleistung im mit Pu-, MA- und U-Brennstoff beladenen Reaktor.

	Brennelement	Partikel
U	3254 W	220 mW
Pu	7248 W	148 mW
MA	5296 W	108 mW

Partikeltemperatur im Inneren an. Die großen Temperaturdifferenzen im Pu-Partikel können damit erklärt werden.

Für eine Verminderung der maximalen Temperatur im Partikel muss die Leistung pro Brennelement verringert werden. Dafür kann entweder die Leistung des Reaktors reduziert, die Leistungsmaxima im Reaktor durch Beladestrategien verändert oder der Abbrand reduziert werden. Eine andere Möglichkeit ist, die Anzahl der Partikel im Brennelement zu erhöhen. Das bedeutet, dass der Schwermetallgehalt pro Brennelement steigt. Da dadurch das Moderator-zu-Brennstoff-Verhältnis sinkt, wird der Reaktor noch stärker untermoderiert. Dies würde negative Auswirkungen auf unterschiedliche Szenarien, u. a. dem Wassereinbruch, haben.

5.2 Cluster Berechnungen

Durch den Abbrand ändert sich die Anteile der einzelnen Nuklide im Brennelement. Dies kann, je nach Zusammensetzung, zu einer Veränderung im Neutronenspektrum führen.

Für ein U-Brennelement kann gezeigt werden, dass sich das Spektrum des einzelnen Brennelements bis zu einem Abbrand von 100 MWd/kg SM nicht ändert. Dadurch kann bei der Berechnung der Wirkungsquerschnitte das mittlere Spektrum, repräsentiert durch eine mittlere Isotopendichte, in einer Zone genutzt werden.

Durch den hohen Abbrand im Pu-Brennelement ändert sich die Zusammensetzung der Nuklide stark. Dadurch entstehen unterschiedliche Neutronenspektren, wenn das Brennelement isoliert betrachtet wird (siehe Abb. 5.3). Für diese Abbildung werden die Spektren in einem unendliches Gitter aus identischen Brennelementen betrachtet (berechnet mit MCNP 5). Dabei werden für die unterschiedlichen Umläufe im Reaktor und den damit vorliegenden Abbränden einzelne Rechnungen durchgeführt. Die genutzten Isotopendichten werden aus einer Abbrandzone im unteren Bereich des Pu-Reaktors aus der ZIRKUS-Berechnung entnommen. Im Brennelement mit dem niedrigsten Abbrand (ca. 363 MWd/kg SM) wird das Spektrum im thermischen Energiebereich durch die Resonanzen der Plutoniumisotope (siehe auch Abb. 4.3) stark reduziert. Bei 700 MWd/kg SM Abbrand existiert im Vergleich ein fünffach größeres thermisches Maximum. Dies resultiert aus der Veränderung des Moderator-zu-Spaltstoff-Verhältnisses, was sich erst bei großen Abbränden bemerkbar macht.

Im Reaktor befinden sich Brennelemente mit unterschiedlichem Abbrand nebeneinander. Um dies zu simulieren, wird ein Brennelement von fünf Brennelementen mit unterschiedlichen Abbränden umgeben. Die daraus resultierenden Spektren in den einzelnen Brennelementen werden in Abb. 5.4 dargestellt. Die Einheiten auf der y-Achse sind identisch zu Abb. 5.3.

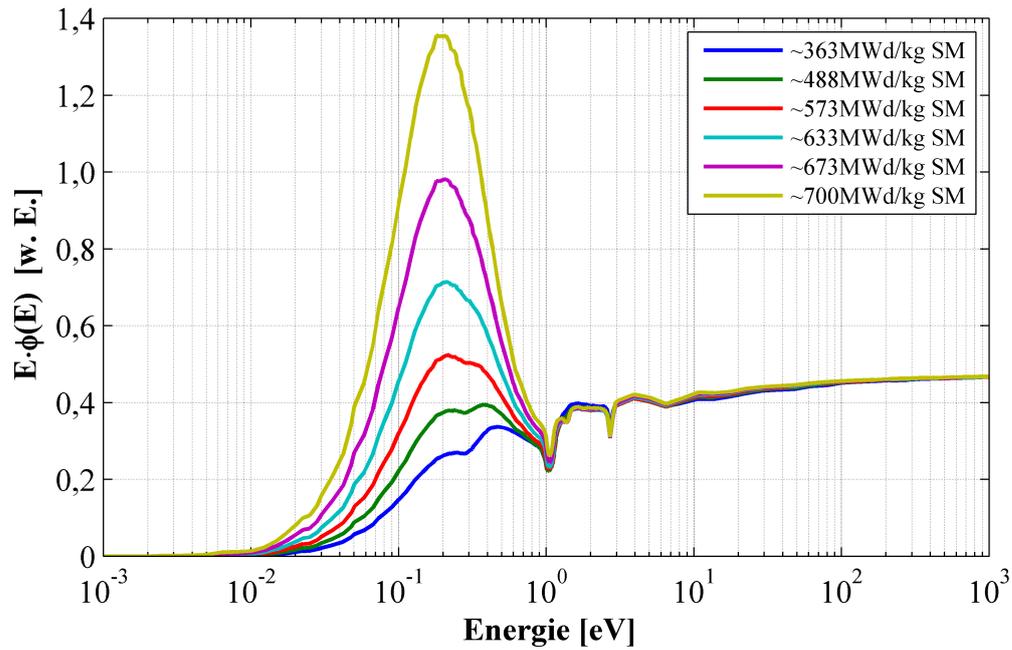


Abbildung 5.3: Neutronenspektrum in einem einzelnen Pu-Brennelement, welches sich in einem unendlichen Gitter aus Pu-Brennelementen mit identischem Abbrand befindet.

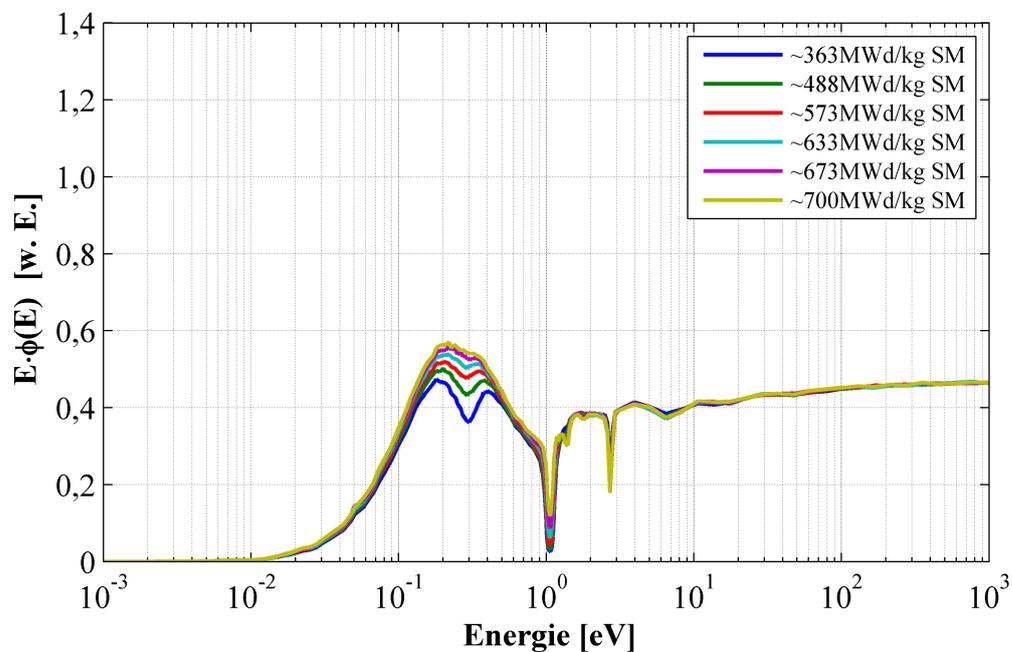


Abbildung 5.4: Neutronenspektrum in einem einzelnen Pu-Brennelement, welches sich in einem unendlichen Gitter aus Pu-Brennelementen mit unterschiedlichen Abbränden befindet.

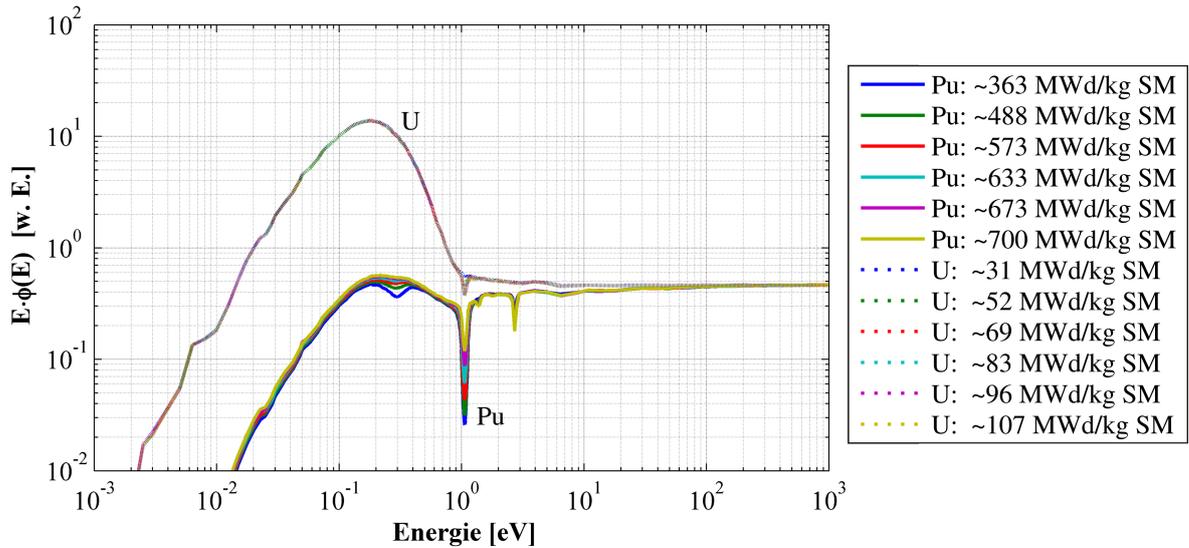


Abbildung 5.5: Vergleich der Neutronenspektren im Pu- und U-Brennelement im unendlichen Gitter aus Brennelementen mit unterschiedlichen Abbränden. Die Spektren des U-Brennelements mit unterschiedlicher Abbränden liegen aufeinander.

Die Auswirkungen der unterschiedlichen Abbrände sind geringer als bei der Analyse eines einzelnen Brennelements. Der Einfluss der umliegenden Brennelemente auf das einzelne Brennelement spielt eine entscheidende Rolle für das Spektrum im Brennelement.

Da die Diffusionslänge der Neutronen in Grafit mit 59 cm viel größer ist als bei Wasser mit 2,85 cm, haben die benachbarten Brennelemente einen großen Einfluss auf das einzelne Brennelement. Die Spektren in Abb. 5.3 sind deshalb nicht repräsentativ für ein Gemisch von Brennelementen unterschiedlichen Abbrands.

In Abb. 5.5 werden die Neutronenspektren der verschiedenen Abbrände von Pu im Vergleich zu den Spektren bei verschiedenen Abbränden von U dargestellt. Die Abbrände der U-Brennelemente liegen zwischen 30 MWd/kg SM und 107 MWd/kg SM. Es zeigt sich keine Veränderung im Spektrum von U, wodurch die Linien in Abb. 5.5 aufeinander liegen. Für Pu zeigt sich eine geringe Veränderung der Spektren bei 0,3 eV und 1 eV. Dies entspricht den Resonanzen von ^{239}Pu und ^{241}Pu bzw. ^{240}Pu , deren Menge sich durch den Abbrand verändert. Diese Abbildung zeigt, dass das Neutronenflussspektrum im thermischen Bereich für Pu eine Größenordnung kleiner ist als für U. Dies liegt an den Resonanzen der verschiedenen Plutonium-Isotope im thermischen Energiebereich, die bei Uran nur in geringem Maße vorhanden sind.

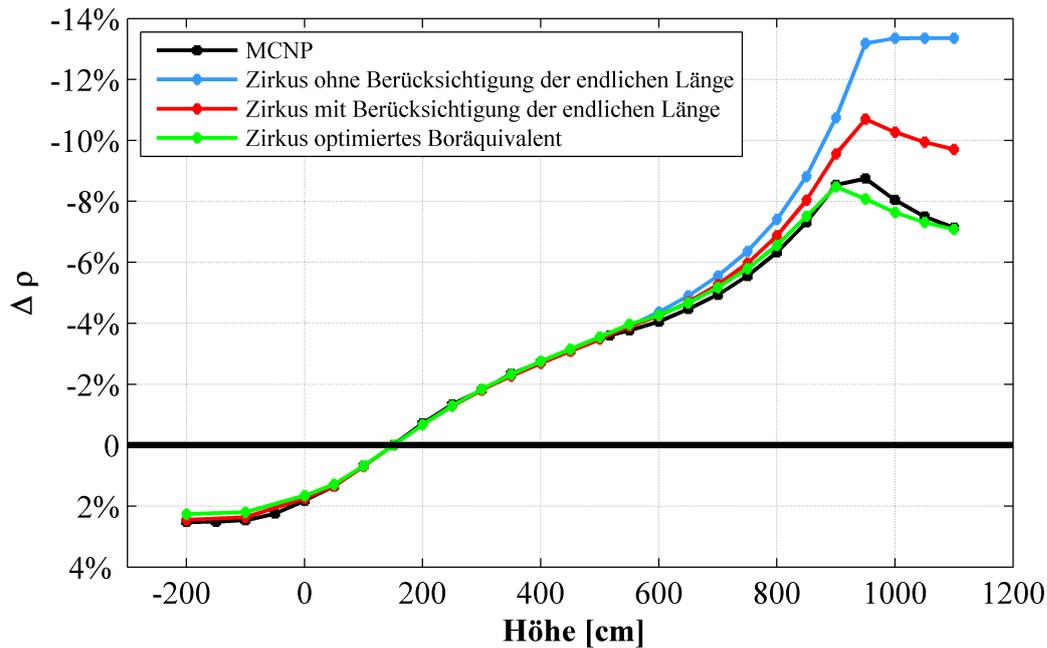


Abbildung 5.6: Steuerstabwirksamkeiten eines mit U-Brennelementen beladenen Reaktors mittels MCNP5 und ZIRKUS mit verschiedenen Boräquivalenten. Höhe = 0 cm entspricht der Oberkante der Kugelschüttung. $\Delta\rho = 0\%$ entspricht der Gleichgewichtsstellung der Steuerstäbe im stationären Volllastbetrieb.

5.3 Ermittlung der Steuerstabwirksamkeit im Zweidimensionalen

In Kap. 4.2.4 wurde die Wirksamkeit der Steuerstäbe mittels MCNP 5 ermittelt. Für eine zweidimensionale Berechnung werden die Steuerstäbe als homogene Ringzone modelliert. Hierfür muss das passende Bor-Äquivalent ermittelt werden, welches die 24 Steuerstäbe repräsentiert (siehe auch Kap. 2.1). Das für die bisherigen ZIRKUS-Rechnungen genutzte Bor-Äquivalent wird aus der mittleren Bornuklidldichte, die im PuMA-Projekt mit $6,0 \cdot 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ vorgegeben ist, bestimmt. Ein Vergleich der Steuerstabwirksamkeit zwischen der dreidimensionalen MCNP 5- und der zweidimensionalen ZIRKUS-Rechnung soll zeigen, ob dieser Wert das System realistisch wiedergibt. Zuerst wird eine Berechnung für den mit U-Brennelementen beladenen Reaktor analysiert (siehe Abb. 5.6). Dabei wird das Boräquivalent auf der kompletten Kernhöhe als konstant angenommen. Wenn die Steuerstäbe komplett eingefahren werden, sind in Bereichen des Reflektors nur 12 Steuerstäbe vorhanden und nicht wie bei der Gleichgewichtsstellung 24 Steuerstäbe. Wird dies nicht berücksichtigt, so wird die Wirksamkeit der Steuerstäbe überschätzt (siehe Abb. 5.6 - blaue Kurve „Zirkus ohne Berücksichtigung der endlichen Länge“).

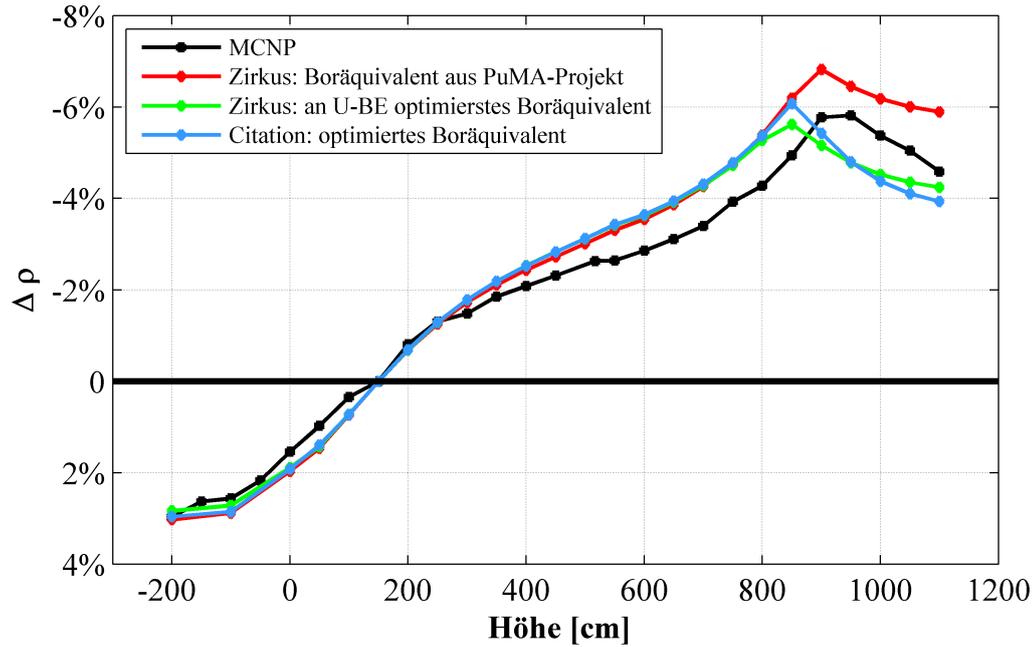


Abbildung 5.7: Steuerstabwirksamkeiten von Pu mittels MCNP5, CITATION und ZIRKUS bei verschiedenen Boräquivalenten. Höhe = 0 cm entspricht der Oberkante der Kugelschüttung. $\Delta\rho = 0\%$ entspricht der Gleichgewichtsstellung der Steuerstäbe im stationären Vollastbetrieb.

Für die Berücksichtigung der Steuerstablänge wird das Boräquivalent in den Bereichen, in denen nur 12 Steuerstäbe im Reflektor vorhanden sind, halbiert. Trotz dieser Veränderung der Modellierung wird bei komplett eingefahrenen Steuerstäben zu viel Reaktivität absorbiert (siehe Abb. 5.6 - rote Kurve). Daher muss das Boräquivalent entsprechend angepasst werden, sodass die Steuerstabkurven von der zweidimensionalen Diffusionsrechnung ZIRKUS und der dreidimensionalen Transportrechnung MCNP 5 übereinstimmen. Insgesamt wird gezeigt (siehe Abb. 5.6 - grüne Kurve), dass für den U-beladenen Reaktor ein geeignetes Boräquivalent gefunden werden kann, sodass die zwei- und die dreidimensionale Steuerstabkurve eine gleiche Wirksamkeit über den gesamten Reaktorkern aufzeigen.

In Abb. 5.7 ist die Reaktivitätsänderung bei den verschiedenen Stabstellungen für mit Pu-Brennelementen beladenen Reaktor zu erkennen. Ein mit MA-Brennelementen beladener Reaktor zeigt ähnliches Steuerstabverhalten.

Die im PuMA-Projekt vorgegebene Bor-Nuklidichte zeigt eine zu große Wirksamkeit der Steuerstäbe bereits im oberen Drittel des Reaktorkerns (siehe Abb. 5.7 - rote Kurve; endlichen Länge der Steuerstäbe wird berücksichtigt). Eine Anpassung des Boräquivalents zeigt keine Verbesserung.

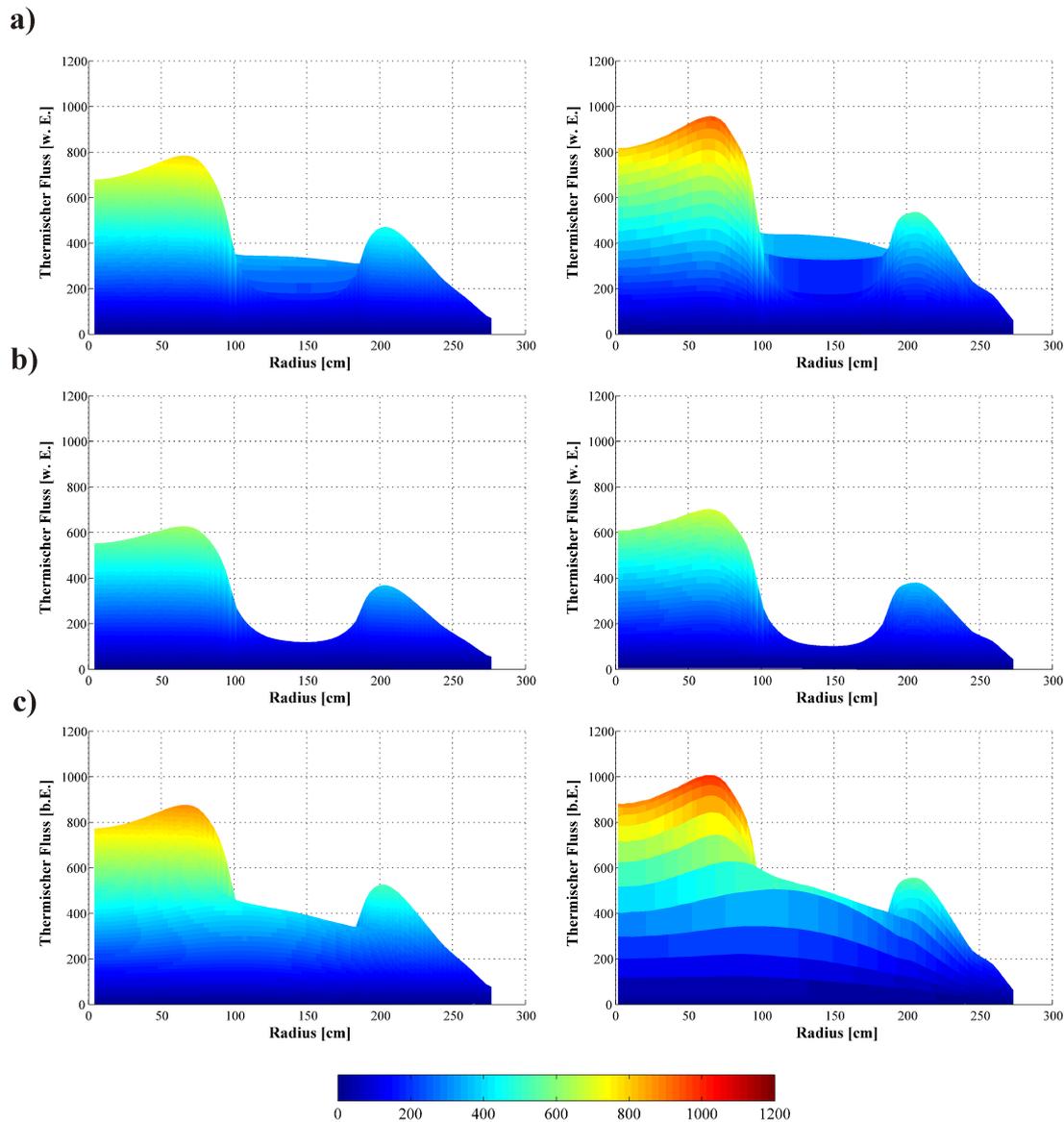


Abbildung 5.8: *Thermischer Neutronenfluss von CITATION (links) und MCNP 5 (rechts) bei verschiedenen Stabstellungen: a) komplett ausgefahrne Steuerstäbe; b) Steuerstäbe in Gleichgewichtsposition; c) Steuerstäbe bis ins untere Drittel des Reaktors eingefahren.*

Um diese unterschiedlichen Ergebnisse zwischen dem U-beladenen und dem Pu-beladenen Kern zu erklären, wird im ersten Schritt ein dreidimensionales Modell des PBMRs für das Diffusionsprogramm CITATION erstellt. Die verwendeten Wirkungsquerschnitte werden aus der ZIRKUS-Berechnung übernommen. Unter Variation des Bor-Äquivalents wird versucht, die Steigung der Reaktivitätskurve analog zu MCNP 5 zu berechnen (siehe Abb. 5.7 - blaue Kurve). Mittels des dreidimensionalen Diffusionsmodells lässt sich die zweidimensionale Steuerstabwirksamkeit des Diffusionsprogramms in ZIRKUS gut reproduzieren. Jedoch lässt sich auch hier kein einheitliches Boräquivalent finden,

dass die Ergebnisse der dreidimensionalen Transportlösung reproduzieren. Damit liegt das Problem nicht in der Reduzierung auf zwei Dimensionen, sondern vielmehr in der Lösung der Diffusionsgleichung.

Die Diffusionstheorie unterstellt ein quasihomogenes Medium mit isotroper Streuung. Für diese Annahme darf sich die Neutronenflussdichte in einem Bereich von zwei bis drei mittleren freien Weglängen nicht ändern. Der große thermische Neutronenflussgradient, der beim mit Pu- bzw. MA-Brennelementen beladenen Reaktor im Grenzbereich zum Reflektor auftritt, kann mit dieser Theorie nicht korrekt abgebildet werden. Dies zeigt auch ein Vergleich des thermischen Neutronenflusses zwischen CITATION und MCNP 5 bei verschiedenen Stabstellungen (siehe Abb. 5.8). Bei MCNP 5 wird ein gröberes Maschennetz für die Neutronenflussbestimmung verwendet. Bei gleicher Normierung zeigt MCNP 5 in allen Stabstellungen einen größeren Einfluss der Reflektoren, sodass der thermische Neutronenfluss in den Seitenreflektoren größer ist. Auch der Decken- und der Bodenreflektor zeigen einen stärkeren Effekt bei der MCNP 5-Rechnung.

Die Gradienten können nur mit Hilfe der Transportlösung richtig dargestellt werden. Die Näherung der Diffusionslösung reicht für den Pu-beladenen Reaktor nicht aus, um hinreichend gute Ergebnisse zu erzielen. Für die Steuerstabwirksamkeit ist nur die Lösung der Transportgleichung mit MCNP 5 die korrekte Lösung.

5.4 Betrachtung des maximalen Entladeabbrands

Die in Kap. 4 dargestellten maximalen Abbrände werden für ein stationäres System bei gegebener Brennelementgeometrie und Nuklidvektoren erreicht. Mittels einiger Vereinfachungen wird in diesem Kapitel der maximal mögliche Entladeabbrand bestimmt. Damit sollen die Effekte verstanden werden, wodurch die Grenze des maximalen Entladeabbrands beeinflusst wird.

Idee zur Abschätzung des maximalen Entladeabbrands

Betrachtet wird ein einzelnes Brennelement, welches in einem stationären kritischen Reaktor abgebrannt wird. Prinzipiell hat ein Reaktor eine begrenzte geometrische Ausdehnung. In dieser Überlegung wird der Reaktor jedoch als punktförmig angenommen. Bei großer Anzahl von Umläufen verändern sich die Isotopendichten von einem Zeitschritt zum nächsten nicht, sodass im stationären Gleichgewicht die mittleren Isotopendichten in allen Zonen in etwa gleich sind. Der maximale Entladeabbrand ist nicht abhängig von der Reaktorgeometrie und der Anzahl der Rezyklierungen, wie in Tab. 5.3 dargestellt.

Für die Annahme des punktförmigen Gleichgewichtssystems müssen folgende Parameter definiert werden (der Index „m“ steht im Folgenden für den Mittelwert des Parameters):

Tabelle 5.3: *Mittlerer Entladeabbrand für unterschiedliche Anzahl an Rezyklierungen in unterschiedlichen Reaktorgeometrien.*

6 Umläufe	PBMR	691 MWd/kg SM
12 Umläufe	PBMR	691 MWd/kg SM
20 Umläufe	PBMR	700 MWd/kg SM
15 Umläufe	HTR-PM	700 MWd/kg SM

1. Gesucht ist der maximale mittlere Entladeabbrand des Reaktors

Einzelne Brennelemente können prinzipiell höhere Abbrände erreichen. Dies entspricht jedoch nicht der gegebenen Fragestellung nach dem maximalen Entladeabbrand eines kritischen Systems.

⇒ Der maximale Entladeabbrand des Reaktors entspricht dem eines einzelnen Brennelements.

2. Definition eines mittleren Abbrands A_m

Das System liegt im Gleichgewichtszustand vor, d.h. Isotopendichten und Multiplikationskonstante ändern sich nicht mit der Zeit und ein mittlerer Abbrand A_m liegt vor. In Abb. 5.9 ist der Abbrandverlauf eines Plutonium-Brennelements in einem konstanten Neutronenfluss dargestellt.

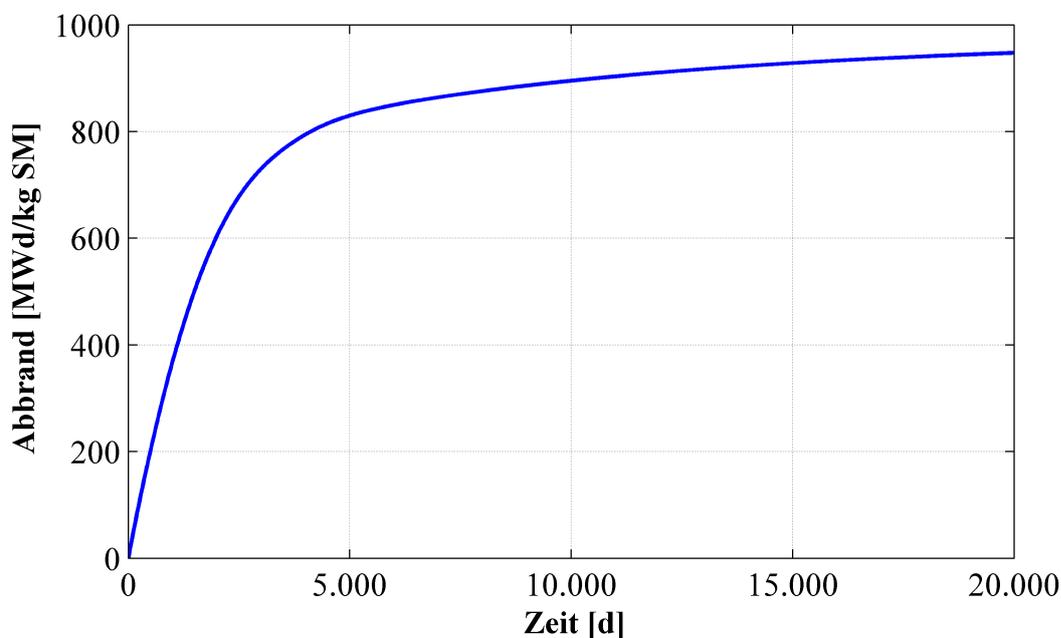


Abbildung 5.9: *Abbrand eines Pu-Brennelements mit konstantem Neutronenfluss über der Zeit (Rechnung mit ORIGEN 2.2).*

Der Abbrand zeigt keinen linearen Zuwachs. Der mittlere Abbrand wird nicht über den halben Entladeabbrand, sondern über eine mittlere Verweilzeit t_m definiert.

⇒ Der mittlere Abbrand A_m des Systems ist gegeben durch eine mittlere Verweilzeit t_m der Brennelemente im Reaktor.

3. Angabe eines Neutronenflusses

Wie in Kap. 5.2 gezeigt, ist das Neutronenspektrum in einem einzelnen Brennelement nicht durch die jeweilige Isotopendichte gegeben, vielmehr muss die Umgebung des Brennelements betrachtet werden. Daher wird ein konstanter mittlerer Neutronenfluss für die Abschätzung des maximalen Entladeabbrands verwendet. Aus der ZIRKUS-Rechnung ergibt sich folgender mittlerer Neutronenfluss ϕ_{Pu} :

$$\phi_{Pu} = 1,47 \cdot 10^{14} \frac{n}{cm^2s}$$

Dieser hat nur eine geringe Abhängigkeit vom mittleren Abbrand. Eine Fehlerabschätzung hierzu folgt am Ende des Kapitels.

⇒ Der Neutronenfluss für das System ist durch einen mittleren Neutronenfluss ϕ_m gegeben.

4. Brennstoff- und Moderatortemperatur

Da der Reaktor als punktförmig angenommen wird, muss für den Brennstoff und den Moderator eine mittlere Temperatur T_m ermittelt werden. Hierfür wird die in ZIRKUS berechnete Temperaturverteilung volumetrisch gemittelt. Eine anschließende Rechnung zeigt, dass die gemittelten Temperaturen mit den Isotopendichten im stationären Gleichgewicht einen kritischen Reaktor hinreichend gut repräsentieren.

Damit ergeben sich folgende mittleren Temperaturen für Plutonium:

Brennstofftemperatur: 777 °C

Moderatortemperatur: 742 °C

Die Wirkungsquerschnitte sind abhängig von der mittleren Temperatur. Eine Fehlerabschätzung folgt ebenfalls am Ende des Kapitels.

⇒ Für Brennstoff und Moderator wird eine mittlere Temperatur T_m angegeben.

5. Mikroskopische Wirkungsquerschnitte

Die mikroskopischen Wirkungsquerschnitte σ sind abhängig vom Abbrand A . Dies liegt an der Änderung der Nuklidichten und somit an der Veränderung des Spektrums. Im vorliegenden Fall wird von einem stationären System bei mittlerem Abbrand ausgegangen. Das Spektrum ändert sich nicht, da der mittlere Abbrand im System konstant bleibt. Daher bleiben die Wirkungsquerschnitte über dem Abbrand eines einzelnen Brennelements konstant.

Für die genauen Werte muss der mittlere Abbrand des Systems bekannt sein.

⇒ Die Wirkungsquerschnitte im einzelnen Brennelement sind durch mittlere Wirkungsquerschnitte σ_m gegeben, die vom mittleren Abbrand A_m abhängig sind.

6. Berücksichtigung der Leckage

In einem räumlich begrenzten System wird ein Teil der Neutronen außerhalb der Kugelschüttung absorbiert. Dieser Verlustterm muss bei der punktförmigen Betrachtung berücksichtigt werden, da sonst mehr Neutronen zur Verfügung stehen als im endlichen Reaktor.

Eine Abschätzung über die Menge an verlorenen Neutronen im System ist durch den Vergleich zwischen k_{inf} und k_{eff} möglich. k_{inf} beschreibt die Multiplikationskonstante eines Brennelements im unendlichen Gitter, welches mit MICROX2 bestimmt werden kann. k_{eff} betrachtet die Multiplikationskonstante des endlichen Reaktors (berechnet mit ZIRKUS). Für den Vergleich kann zum einen das k_{inf} eines frischen Brennelements, zum anderen das k_{eff} eines mit ausschließlich frischen Brennelementen beladenen Reaktors bei gleichen Temperaturen ermittelt werden.

Tabelle 5.4: *Multiplikationskonstanten für ein frisches Brennelement im unendlichen Gitter (k_{inf}) und für ein mit frischen Brennelementen beladener Reaktor (k_{eff}).*

	k_{inf}	k_{eff}	$\Delta\rho[\%]$
U (PBMR)	1,437	1,347	6,3
U (HTR-PM)	1,486	1,241	16,5
Pu (PBMR)	1,197	1,222	-2,1
Pu (HTR-PM)	1,197	1,140	4,8

In Tab.5.4 werden die k_{inf} - und k_{eff} -Werte von verschiedenen Brennelementen und Reaktorgeometrien dargestellt. Für ein U-Brennelement ist die Multiplikationskonstante des unendlichen Systems 6 - 16 % größer als die des endlichen Systems. Die verschiedenen k_{inf} für U liegen an den unterschiedlichen Anreicherungen der Brennelemente in den Definitionen der unterschiedlichen Reaktoren.

Das k_{inf} des frischen Pu-Brennelements, hat einen um 4,8 % größeren Wert als das k_{eff} des mit Pu-Brennelementen beladenen HTR-PM. Im PBMR ist die Multiplikationskonstante für das unendliche System kleiner als für das endliche. Das bedeutet, die Neutronenverluste des endlichen Systems haben einen positiven Einfluss auf das System. Um dies zu erklären werden die adjungierten Neutronenflüsse verglichen. Der adjungierte Neutronenfluss ist proportional zum Reaktivitätseinfluss eines Neutrons einer gewissen Energie an einem bestimmten Punkt im Reaktor. Dadurch ist es möglich, die Importanz der verschiedenen Neutronenflüsse auf die Reaktivität zu bestimmen.

Das Pu-Brennelement besitzt einen hohen Anteil des Isotops ^{240}Pu , welches eine starke Einfangresonanz bei 1 eV hat (siehe auch Abb. 4.3). Durch diese Resonanz werden viele Neutronen absorbiert, die von höheren Energien durch Stoßprozesse in niedrigere Energien gestreut werden. Im Randbereich der Kugelschüttung gelangen schnelle Neutronen in den Reflektor. Dort werden sie durch Stoßprozesse abgebremst und gelangen unterhalb der Einfangresonanz von ^{240}Pu wieder in den Reaktor. Unterhalb von 1 eV sind einige Spaltresonanzen anderer Pu-Isotope. Da das aus dem Reflektor zurückgestreute Neutron nun eine hohe Spaltwahrscheinlichkeit aufweist, hat dieses Neutron eine höhere Wirksamkeit als das schnelle Neutron vor der Streuung im Reflektor. Dieser Aspekt kann mithilfe des adjungierten Neutronenflusses verifiziert werden. Die Berechnung wird mit dem Diffusionsprogramm CITATION durchgeführt. In Tab. 5.5 werden die Energiegrenzen für die einzelnen Energiegruppen dargestellt.

Tabelle 5.5: *Energiegruppeneinteilung in eV für die Berechnung der adjungierten Neutronenflüsse.*

1. Energiegruppe	$20,0 \cdot 10^6$	- $1,1109 \cdot 10^5$
2. Energiegruppe	$1,1109 \cdot 10^5$	- $7,10174 \cdot 10^3$
3. Energiegruppe	$7,10174 \cdot 10^3$	- $1,2341 \cdot 10^3$
4. Energiegruppe	$1,2341 \cdot 10^3$	- 101,301
5. Energiegruppe	101,301	- 29,0232
6. Energiegruppe	29,0232	- 2,38237
7. Energiegruppe	2,38237	- 1,00375
8. Energiegruppe	1,00375	- 0,407
9. Energiegruppe	0,407	- 0,12
10. Energiegruppe	0,12	- 0,020075
11. Energiegruppe	0,020075	- 0,00

Die siebte Energiegruppe beinhaltet die Absorptionsresonanz des ^{240}Pu -Isotops. Für die Analyse werden alle adjungierten Neutronenflüsse auf das Maximum des adjungierten Neutronenflusses der siebten Energiegruppe normiert. Dadurch kann die Wirksamkeit der Neutronen oberhalb und unterhalb der Resonanz betrachtet werden.

In Abb. 5.10 sind die adjungierten axialen Neutronenflüsse der einzelnen Energiegruppen für Pu und U im Gleichgewichtskern an der Grenze zwischen Kugelschüttung und Außenreflektor dargestellt. Die adjungierten Neutronenflüsse acht bis elf sind für den U-beladenen Reaktor gleich wirksam und sind im Maximum 5% höher als der Neutronenfluss der siebten Energiegruppe. Da ^{240}Pu im Reaktor nur in geringen Mengen vorkommt, ist der Einfluss der Absorptionsresonanz klein. Die adjungierten Neutronenflüsse der achten bis elften Energiegruppe zeigen für den Pu-beladenen Reaktor eine bis zu 20% höhere Wirksamkeit als der normierte Neutronenfluss der siebten Energiegruppe.

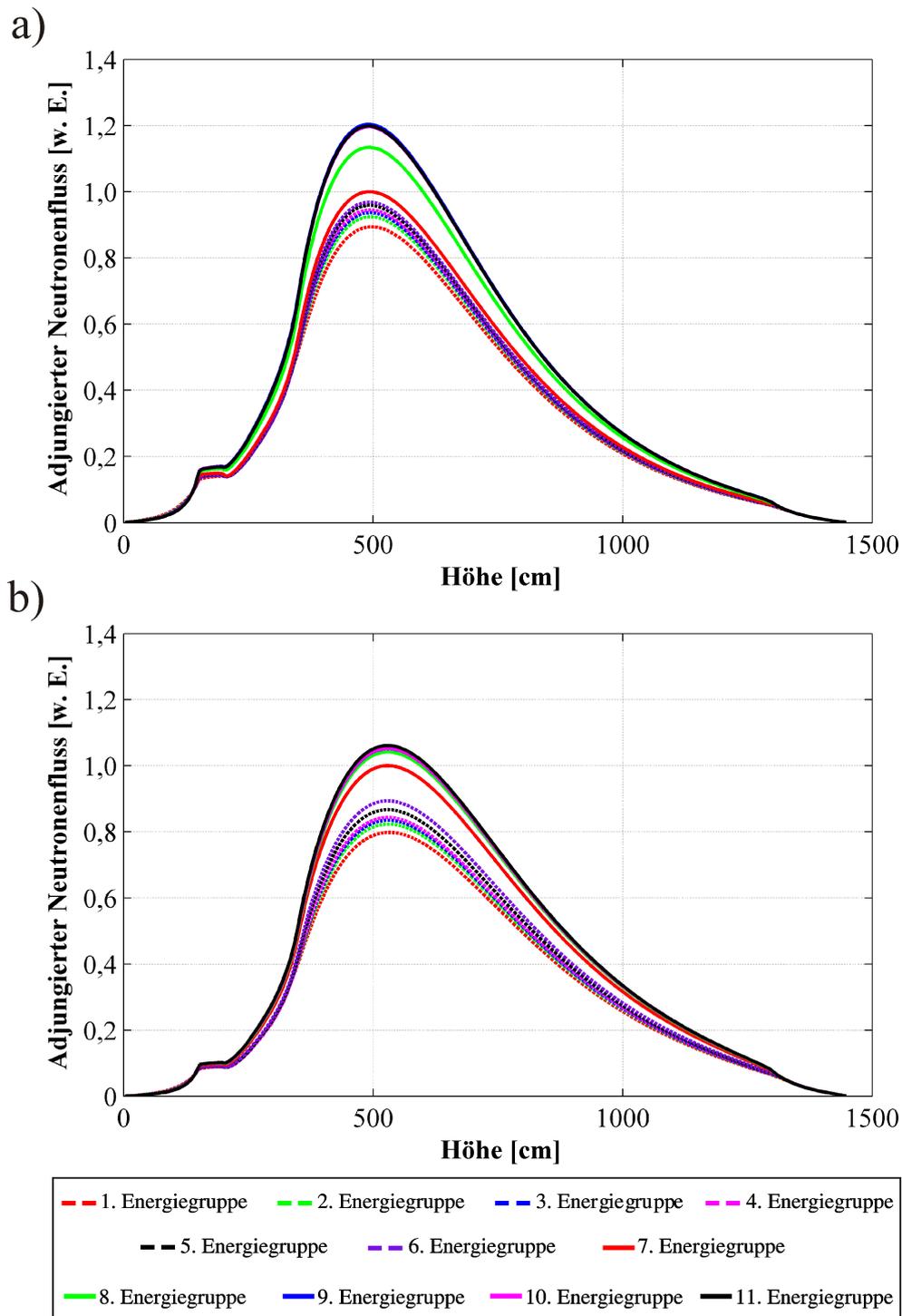


Abbildung 5.10: *Adjungierter axialer Neutronenfluss an der Grenze zwischen Kugelschüttung und Außenreflektor für den mit a) Pu-Brennelementen und b) U-Brennelementen beladenen Reaktor im stationären Gleichgewicht.*

Damit zeigt sich, dass die in den Reaktor zurückgestreuten Neutronen für den mit Pu-Brennelementen beladenen Reaktor einen großen Einfluss haben. Die aus dem Reflektor in den Reaktor zurückgestreuten Neutronen können durch ihre hohe Wirksamkeit die Leckage im Kern kompensieren.

⇒ Es ist keine Berücksichtigung der Leckage notwendig.

Lösungsansatz:

Zeit bis zur Entladung = 2 x Verweilzeit bis zum mittleren Abbrand

Um eine Aussage über den maximalen Entladeabbrand A_e zu erhalten, wird ein frisches Brennelement mit den oben gegebenen Parametern abgebrannt. Der Index „e“ steht für den Zeitpunkt der Brennelement-Entnahme. Der Neutronenfluss und die Wirkungsquerschnitte des einzelnen Brennelements verändern sich nicht über der Zeit, da sich das System im stationären Gleichgewicht befindet. Das Brennelement ist doppelt so lange im Reaktor, wie ein Brennelement, das den mittleren Abbrand des Reaktors symbolisiert.

Das bedeutet:

$$t_e = 2 \cdot t_m$$

Um nun den maximalen Entladeabbrand zu erhalten, wird der Abbrand benötigt, der zum Entladezeitpunkt vorliegt. Die Entladezeit ist gegeben durch die doppelte mittlere Verweilzeit im Reaktorkern. Damit gilt:

$$A_e(t_e) = A(2 \cdot t_m)$$

Lösung mittels dem gekoppelten System ORIGEN 2.2 + MICROX 2

Mittels dieser Annahmen kann eine Abschätzung zum maximal möglichen Entladeabbrand durchgeführt werden. Hierfür wird im gekoppelten System aus ORIGEN 2.2 und MICROX 2 eine Abbrandberechnung mit konstantem Neutronenfluss durchgeführt. Die in MICROX 2 jedes Mal neu berechneten Wirkungsquerschnitte sind abbrandabhängig und werden im Folgenden verwendet.

Um nun ein Brennelement in einem System mit mittlerem Abbrand abbrennen zu lassen, muss die Kopplung verändert werden. Es werden konstante Wirkungsquerschnitte für die Abbrandrechnung verwendet. Daher ist ein Aufruf des Spektralprogramms MICROX 2 nicht notwendig. Für die passenden Wirkungsquerschnitte sind mehrere Iterationen notwendig. Folgende Bedingung muss erfüllt sein:

Der Reaktor mit Wirkungsquerschnitten zu einem bestimmten Zeitpunkt t' muss zu diesem Zeitpunkt t' kritisch sein.

In Abb. 5.11 ist die Multiplikationskonstante $k_{\text{Reaktorkern}}$ (blau; linke Ordinatenachse) und der Abbrand (grün; rechte Ordinatenachse) dargestellt. In diesem Fall sind die

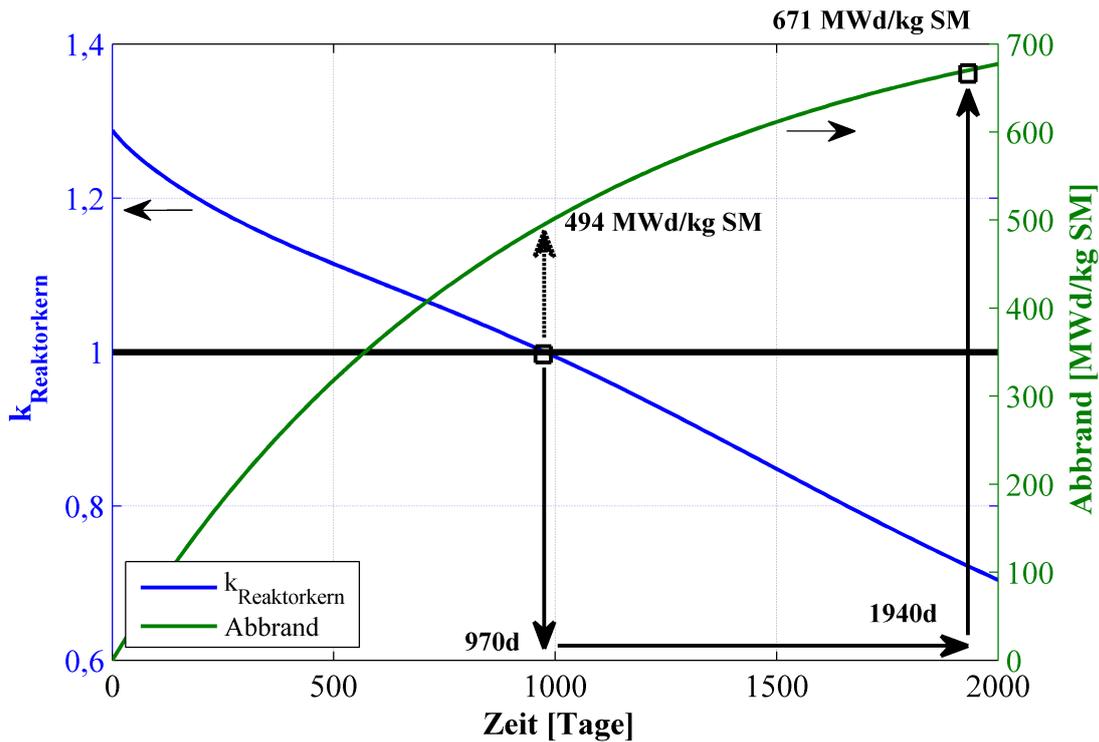


Abbildung 5.11: Verlauf der Multiplikationskonstante $k_{\text{Reaktorkern}}$ und des Abbrands bei konstantem Neutronenfluss und konstanten Wirkungsquerschnitten zum Zeitpunkt $t = 970$ Tage über der Zeit.

mittleren Wirkungsquerschnitte für den Zeitpunkt gewählt wurden, an dem das System kritisch ist. Dies ist zum Zeitpunkt $t_m = 970$ Tage erreicht. Der mittlere Abbrand beträgt $A_m = 464$ MWd/kg SM.

Wirkungsquerschnitte mit $t > 970$ Tage repräsentieren einen höheren mittleren Abbrand. Dies bedeutet ein weiches Spektrum. Daher erzeugen sie einen schnelleren Abbrand und das System ist zu einem Zeitpunkt $t < 970$ Tage kritisch.

Um den Entladeabbrand zu bestimmen, wird der Abbrand bis zum Zeitpunkt $t_e = 2 \cdot t_m = 1940$ Tage berechnet. Der Abbrand zu diesem Zeitpunkt symbolisiert den maximalen Entladeabbrand des Systems und liegt bei 671 MWd/kg SM.

Dieser Wert liegt etwas niedriger als der berechnete maximale Abbrand aus der ZIRKUS-Berechnung. Einige Faktoren können diesen Wert beeinflussen. Diese werden im nächsten Abschnitt diskutiert.

Fehlerbetrachtung

Die Betrachtung des Reaktors als Punkt ist nur in gewissem Maße möglich. Durch die sehr heterogene Leistungs- und Temperaturverteilung im Reaktor können lokal Effekte auftreten, die in dieser Abschätzung nicht berücksichtigt werden.

Eine Veränderung im Neutronenfluss hat für den Abbrand keinen nennenswerten Einfluss.

Eine Variation um $\pm 5\%$ liefert eine Abweichung von $\pm 0,5\%$ im Abbrand. Für einen gewünschten Abbrand von 800 MWd/kg SM wäre daher eine Abweichung von knapp 200% im Neutronenfluss notwendig. Dieser Wert kann ausgeschlossen werden.

Eine Veränderung in der Temperatur liefert veränderte Wirkungsquerschnitte. Um die Auswirkung der Veränderung der Wirkungsquerschnitte insgesamt zu betrachten, wird die Abbrandberechnung bei verschiedenen Temperaturen durchgeführt und die berechnete Reaktivität ausgewertet. Eine Veränderung in der Brennstoff- oder in der Moderatortemperatur von $\pm 50\text{ K}$ liefert eine Veränderung im Multiplikationskonstante von $\pm 0,12\%$. Dies entspricht einer Änderung von $\pm 0,26\%$ im Abbrand. Damit beeinflusst eine kleine Veränderung der Temperatur nicht den maximalen Entladeabbrand.

Im oben berechneten Fall wurde keine Leckage berücksichtigt. Da aber bei der Abschätzung der Leckage bei Pu das endliche System kritischer ist wie im unendlichen, müsste ein weiterer Produktionsterm berücksichtigt werden.

Der ermittelte maximale Entladeabbrand gibt nur eine Abschätzung und nicht den Absolutwert wieder. Es zeigt sich, dass der im EU-Projekt geforderte maximale Abbrand von 800 MWd/kg SM bis 1000 MWd/kg SM für ein kritisches System nicht realisierbar ist.

6 Analyse von Varianten

Einige in Kap. 4 vorgestellten Ergebnisse machen eine Änderung des Reaktorkonzepts notwendig.

Die Brennelementleistung muss reduziert werden, um die Temperatur im Partikel abzusenken. Dies könnte durch eine Verringerung der Reaktorleistung erfolgen. Alternativ könnte eine Geometrieänderung die Leistungsmaxima an den Reflektorgrenzen reduzieren und somit auch die Temperaturen. Ein weiteres Problem ist der positive Temperaturkoeffizient bei niedrigen Temperaturen. Für ein stabiles Anfahren des Reaktors ist ein negativer Temperaturkoeffizient notwendig. Der Störfall mit Wassereinbruch verursacht eine sehr hohe Reaktivitätszufuhr. Hierfür muss das Verhältnis zwischen Moderator und Brennstoff-Masse im Kern verändert werden.

Mit verschiedenen Variationen wird in diesem Kapitel versucht, Einfluss auf diese Parameter zu haben. Verglichen werden die Varianten mit dem Pu-Brennstoff beladenen Reaktor mit 400 MW_{th} bzgl. dem maximalen Entladeabbrand, der Leistungs- und Neutronenflussverteilungen, der Partikel-Temperaturen und der Temperaturkoeffizienten. Teilweise wird außerdem das Verhalten bei Wassereinbruch analysiert.

6.1 Reduzierung der Leistung

Für niedrigere Temperaturen im Partikel muss die Leistung pro Brennelement reduziert werden. Deshalb wird in der ersten Variation die Leistung des Reaktors auf 200 MW_{th} verringert. Im stationären, kritischen Gleichgewicht ist der mittlere Entladeabbrand identisch zu 400 MW_{th} Leistung. Das Leistungsmaximum und der Leistungsverlauf sind identisch. Die Maximalwerte haben sich halbiert. Die Partikeltemperatur sinkt von $1690 \text{ }^\circ\text{C}$ auf $1276 \text{ }^\circ\text{C}$. Für Partikeltemperaturen unterhalb der stationären Grenztemperatur von $1200 \text{ }^\circ\text{C}$ muss die Leistung auf 150 MW_{th} reduziert werden.

Der Reaktivitätszuwachs durch Wassereinbruch ändert sich aufgrund der gleichbleibenden Schwermetall- und Moderator Masse nicht. Der Moderator koeffizient ist im Bereich von $50 \text{ }^\circ\text{C}$ bis $300 \text{ }^\circ\text{C}$ positiv.

6.2 Reduzierung des Schwermetallgehalts

Durch das relativ niedrige Verhältnis von Moderator- zu Brennstoffmasse reagiert das System mit starker Reaktivitätszunahme bei Wassereinbruch. In dieser Variation wird die Schwermetallmasse im Brennelement auf 1,0 g verringert und somit der Anteil an Brennstoffmasse im Reaktor halbiert. Ein ähnlicher Effekt wird erzielt, wenn reine Grafitkugeln in den Reaktor gegeben werden, wodurch die Moderatormenge im Reaktor erhöht wird.

Im stationären Gleichgewicht erreicht dieses System einen maximalen Entladeabbrand von 675 MWd/kg SM. Im Vergleich zum stationären Fall mit 2,0 g Schwermetall pro Brennelement ist das Leistungsprofil homogener ausgeprägt. Das Leistungsmaximum sinkt von $17,7 \text{ MW/m}^3$ auf $15,9 \text{ MW/m}^3$ am Kernrand und in der Mitte der Kugelschüttung steigt die Leistung von 8 MW/m^3 auf 10 MW/m^3 an. Durch die halbe Masse an Schwermetall ist auch nur die halbe Masse an stark absorbierenden Isotopen im Reaktor. Damit wird der thermische Neutronenfluss in der Reaktormitte höher.

Der gewünschte Effekt, eine verminderte Reaktivitätsfreisetzung bei Wassereinbruch wird erfüllt. Bei einem Druck von 90 bar wird statt 4,5 % nur 2,25 % (5,5 \$) Reaktivität freigesetzt. Für eine noch geringere Reaktivitätsfreisetzung muss das Verhältnis aus

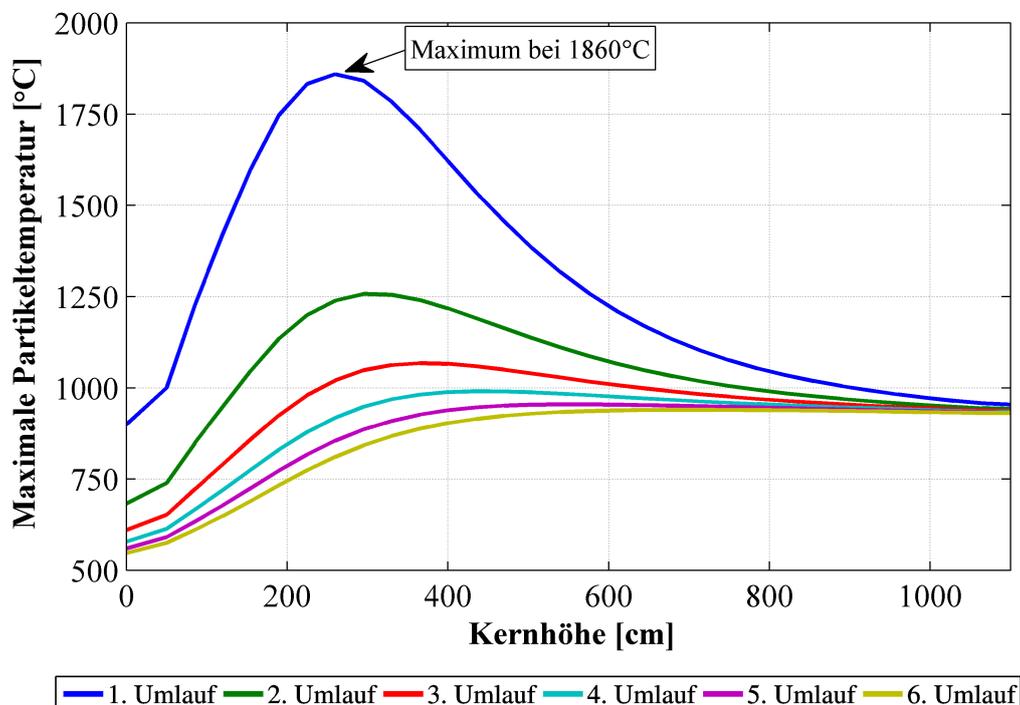


Abbildung 6.1: Maximale Partikeltemperaturen in einem Reaktor mit Pu-Brennelementen mit 1,0 g Schwermetall bei 400 MW_{th} Leistung. Höhe = 0 cm entspricht Oberkante Kugelschüttung.

Moderator-zu-Brennstoffmasse stärker verändert werden.

Durch die Reduzierung der Schwermetallmasse auf die Hälfte steigt bei gleichbleibender Reaktorleistung die Leistung pro Partikel an. Die Temperaturen im Partikel nehmen stark zu (siehe Abb. 6.1), obwohl die Leistungsverteilung durch den erhöhten Moderatoranteil im Reaktor homogener verläuft. Im ersten Umlauf werden bei 400 MW_{th} Reaktorleistung über 1800 °C erreicht. Für Temperaturen unter 1200 °C müsste die Reaktorleistung stark abgesenkt werden.

Ein weiterer Nachteil dieser Variation ist der Temperaturkoeffizient. Die Verminderung des Schwermetalls hat nur sehr geringen Einfluss auf den Brennstoffkoeffizienten. Unterhalb von 650 °C ist der Moderatorkoeffizient positiv, mit einem Maximum bei $+1,2 \cdot 10^{-4} \text{ °C}^{-1}$. Der Betrag ist größer als im Falle mit 2,0 g Schwermetall. Dies resultiert aus der größeren Menge an Moderator im System. Die Verschiebung des Spektrums durch die verschiedenen Temperaturen erhält einen größeren Einfluss.

Diese Variation des Referenzsystems weist zwar Verbesserungen im Bereich der Leistungsverteilung und des Wassereintruchs auf, jedoch werden die Nachteile - die zu hohen Temperaturen und der positive Temperaturkoeffizient - noch verstärkt. Daher stellt eine Reduzierung des Schwermetallgehalts keine Verbesserung dar.

6.3 Variation des Partikelradius

Die U-Partikel haben einen Radius von 250 μm, während für das Pu-Partikel nur ein Radius von 100 μm vorgesehen ist. Eine Vergrößerung der Partikel auf den Radius eines U-Brennelements weist einige Probleme auf. So befinden sich statt 48.817 nur noch 3.124 Partikel in einem Brennelement. Bei gleichbleibender Brennelementleistung steigt die Leistung und damit die Temperatur im Partikel stark an.

Eine Reduzierung des Partikelradius zu noch kleineren Radien ist technisch nicht realisierbar.

Damit kann eine Variation des Partikelradius für ein verbessertes Resultat ausgeschlossen werden.

6.4 Einbringen von Neutronengiften in die Brennelemente

Ein Problem des Referenzfalls ist die Partikeltemperatur, die durch die hohen Brennelement-Leistungen im ersten Umlauf entsteht. Die höchste Temperatur haben die frischen Brennelemente, die direkt an der Reflektorgrenze liegen.

Eine Lösungsmöglichkeit, analog zum LWR, ist es, in die frischen Brennelemente abbrennbare Neutronengifte einzubringen. Die Idee dabei ist, dass das Spektrum im ersten

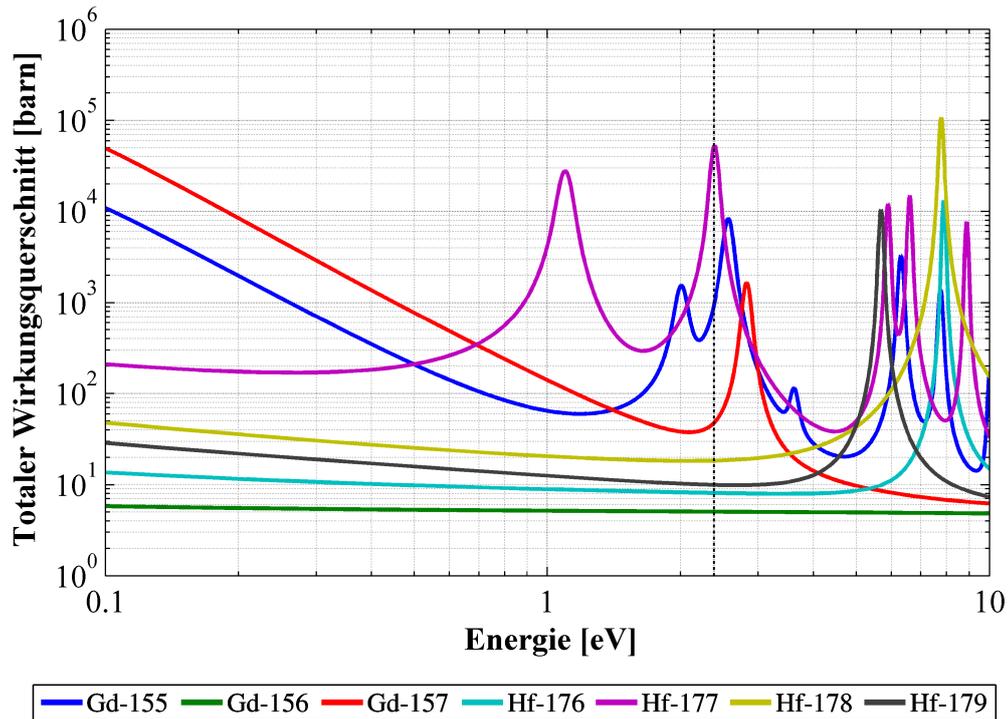


Abbildung 6.2: *Totaler Wirkungsquerschnitt für Gadolinium und Hafnium-Isotope bis 10 eV.*

Umlauf abnimmt und somit das Brennelement weniger Leistung erzeugen. Im zweiten Umlauf wären die Gifte zum großen Teil umgewandelt, sodass insgesamt der gleiche Brennelementabbrand erzielt werden kann.

Mögliche abbrennbare Gifte im thermischen und epithermischen Bereich sind Gadolinium oder Hafnium. In Abb. 6.2 sind die Absorptionswirkungsquerschnitte für diese beiden Nuklide bis 10 eV aufgetragen. Beide Elemente weisen große Resonanzen bei 1 eV bis 3 eV auf.

Für eine Abschätzung wird entweder Gadolinium oder Hafnium mit einem Gewichtsprozent in ihrer natürlicher Isotopenzusammensetzung in das Partikel eingebracht.

Wie in Kap. 5.2 gezeigt, ist die Umgebung der Brennelemente ausschlaggebend für das Spektrum im Inneren des Brennelements. Dies zeigt sich bei der Berechnung mit abbrennbaren Giften. Durch den großen Diffusionskoeffizienten ist der Neutronenfluss der umgebenden Brennelemente so wesentlich, dass ein lokales Neutronengift die Leistungsverteilung und die Partikeltemperaturen kaum verändert.

6.5 Einbringen von Neutronengiften in den Reflektor

Um eine radial homogene Leistungsverteilung zu erhalten, muss die Wirksamkeit der Reflektoren reduziert werden. In einer Berechnung werden im Innen- und Außenreflektor Neutronenabsorber hinzugegeben. Dazu werden in die Abschalt- und Steuerstabkanäle 50 % des ^{10}B -Gehalts eines Steuerstabs gegeben.

Diese Variation des Referenzsystems bringt keine Vorteile. Bei einer thermischen Leistung von 400 MW_{th} liegt das Leistungsmaximum bei $13,6 \text{ MW/cm}^3$ und die Leistungsverteilung sinkt im ganzen Reaktor analog ab. Die Partikeltemperaturen sinken ebenfalls auf $1122 \text{ }^\circ\text{C}$ im Maximum. Durch die Anreicherung an Neutronenabsorber werden viele thermische Neutronen im Reflektor absorbiert. Dies resultiert in einem geringeren Neutronenfluss im Kern, wodurch der Entladeabbrand auf weniger als 200 MWd/kg SM absinkt.

Durch die Vergiftung des Reflektors die Abschaltwirksamkeit verringert wird. Das Ziel viel Leistung bei hohem Abbrand mit homogener Leistungsverteilung und niedrigen Temperaturen zu erzielen, kann mit dieser Variation nicht erreicht werden.

6.6 HTR-PM Geometrie

Es zeigt sich, dass der Innenreflektor einen großen Einfluss auf den Reaktor hat. Die Leistung erreicht an der Kugelschüttungsgrenze zur inneren Reflektor ihren Maximalwert. Daher soll in der folgenden Variation eine neue Reaktorgeometrie ohne Innenreflektor analysiert werden.

Ein vorhandenes Konzept ist der HTR-PM aus China. Dies ist ähnlich zum HTR-MODUL-Konzept von Interatom [52]. Die Zonenaufteilung und die Modellierung des HTR-PMs in ZIRKUS wird in Abb. 6.3 dargestellt.

Die zylindrische Kugelschüttung besteht aus einer mittleren Höhe von elf Metern und einem Radius von 1,5 Metern. An der Oberkante der Kugelschüttung symbolisiert ein Konus das Zufüllen der Brennelemente über ein zentrales Beladerohr. Am Boden der Kugelschüttung werden das Kugelabzugsrohr und ein unterer Konus betrachtet. Die erzeugte Leistung von 250 MW_{th} ist so ausgelegt, dass bei der Nutzung von U-Brennelementen die Nachwärme im Störfall passiv abgeführt werden kann. Die Pu-Brennelemente und ihre Isotopenzusammensetzung sind in Kap. 3.1 beschrieben. Betrachtet werden 15 Brennelementumläufe im Reaktor, wobei die einzelnen axialen Kanäle unterschiedliche Fließgeschwindigkeiten aufweisen.

Im stationären Gleichgewicht wird ein mittlerer Entladeabbrand von 700 MWd/kg SM erreicht. In Abb. 6.4 ist die Leistungsverteilung des mit Pu-Brennstoff beladenen HTR-PMs zu sehen. Da kein Innenreflektor vorhanden ist, ist die Leistungsverteilung radial über den gesamten Reaktorbereich homogen verteilt. Durch die aus dem Außenreflektor zurückreflektierten thermischen Neutronen erreicht die

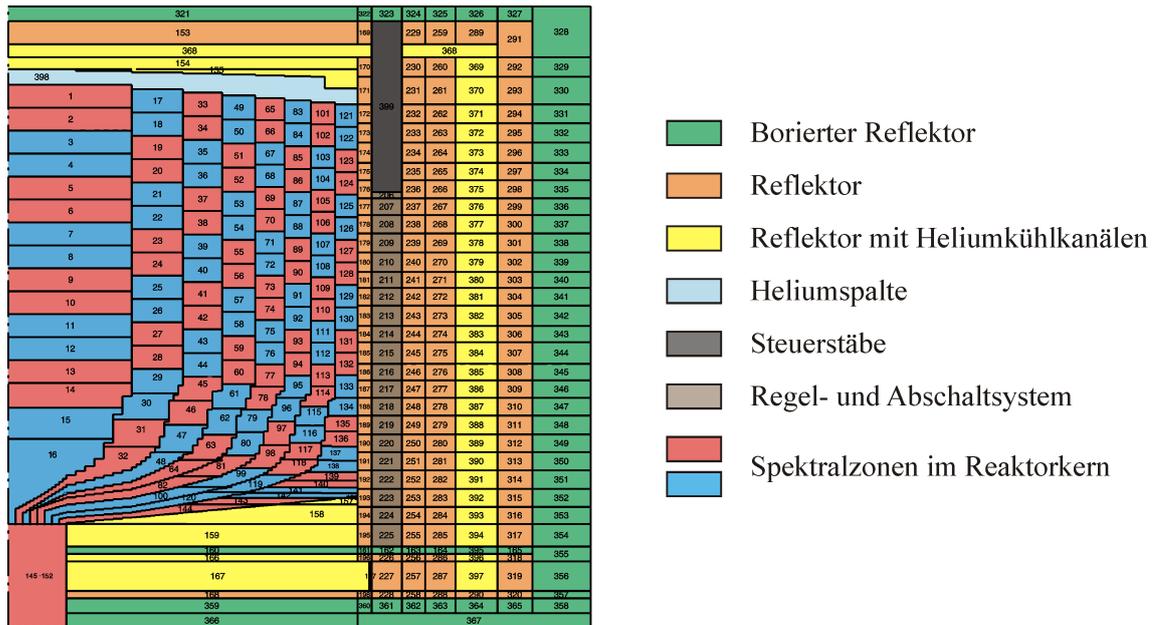


Abbildung 6.3: Zoneneinteilung des HTR-PMs mit ZIRKUS.

Leistungsverteilung dort ihr Maximum von $8,7 \text{ MW/m}^3$. Dies kann aufgrund der geringeren Gesamtleistung des Reaktors nicht direkt mit dem Maximum des PBMRs verglichen werden.

Die maximalen Partikeltemperaturen über der Kernhöhe sind in Abb. 6.5 für einige Brennelementdurchläufe dargestellt. Die Temperaturen werden im radialen Maximum dargestellt, welches sich an der Grenze zum Außenreflektor befindet. Durch die Konen werden die Brennelemente nicht an allen radialen Stellen bis zur maximalen Höhe beladen. Daher sind oberhalb von 50 cm und unterhalb von 1110 cm keine Brennstofftemperaturen vorhanden. Bei einer Reaktorleistung von 250 MW_{th} wird die Grenztemperatur von $1200 \text{ }^\circ\text{C}$ um $66 \text{ }^\circ\text{C}$ überschritten.

Der Brennstoffkoeffizient ist nahezu identisch zum PBMR-Fall. Der Moderator-koeffizient ist unterhalb von $350 \text{ }^\circ\text{C}$ positiv mit einem Maximum bei $250 \text{ }^\circ\text{C}$ von $+2,0 \cdot 10^{-5} \text{ }^\circ\text{C}^{-1}$. Die Summe aus Moderator- und Brennstoffkoeffizient ist über den gesamten Temperaturbereich negativ.

Durch den fehlenden Innenreflektor ist das System stärker untermoderiert als beim PBMR. Im Falle eines Wassereintruchs bei 90 bar Wasserdampfdruck wird mehr Reaktivität frei als beim Referenzreaktor.

Durch die homogenere Leistungsverteilung ist das Konzept des Reaktors ohne Innenreflektor prinzipiell besser geeignet. Jedoch der positive Moderator-koeffizient und ein verstärkter Reaktivitätszuwachs bei Wassereintruch zeigen weiterhin Probleme im Pu-beladenen HTR auf. Weitere Analysen wie z. B. die passive Wärmeabfuhr wurden nicht untersucht und lassen daher auch keine Rückschlüsse auf eventuelle Verbesserungen zu.

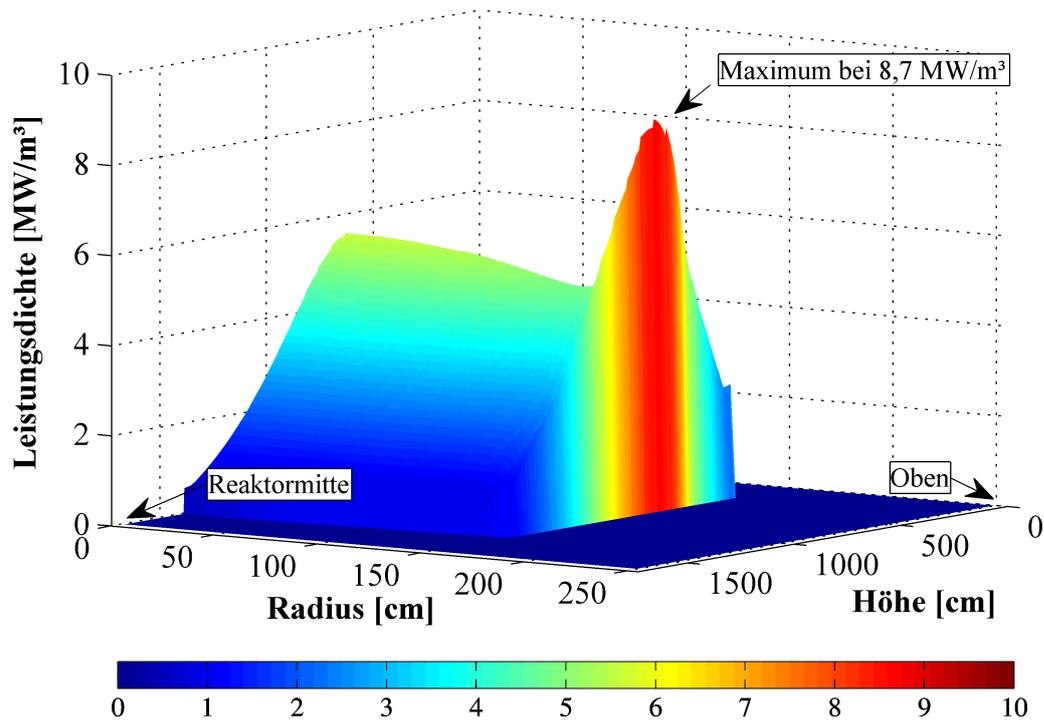


Abbildung 6.4: Leistungsverteilung eines mit Pu-Brennelementen beladenen HTR-PMs mit 250 MW_{th} Leistung.

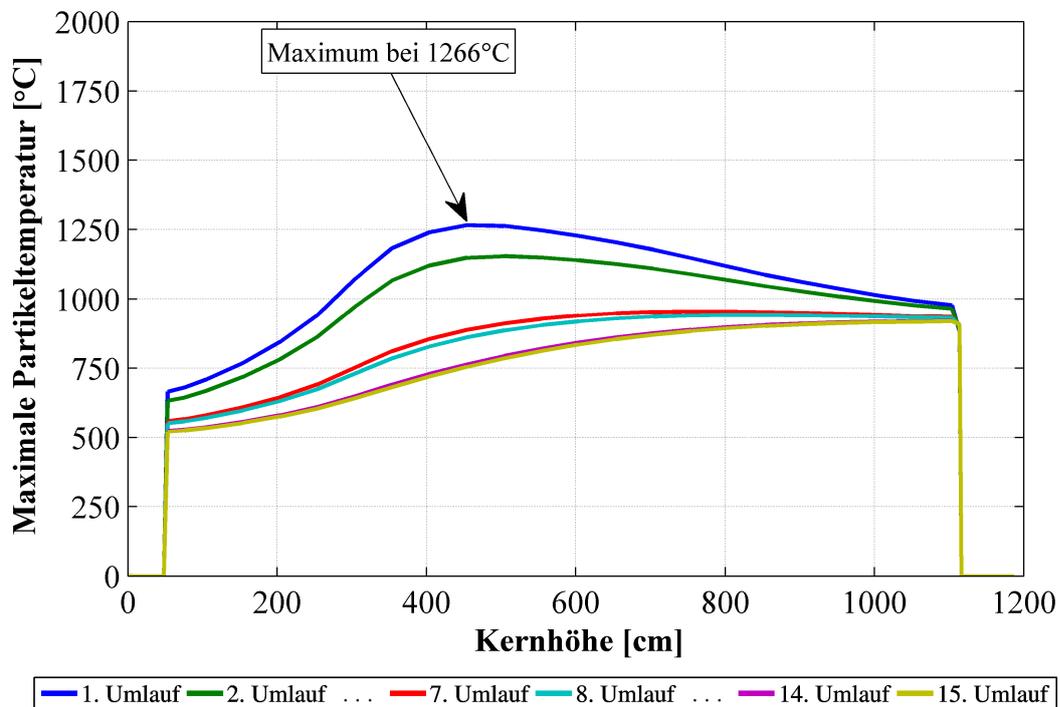


Abbildung 6.5: Maximale Partikeltemperaturen eines mit Pu-Brennelementen beladenen HTR-PMs mit 250 MW_{zh} Leistung als Funktion der Kernhöhe im radialen Temperaturmaximum ($H = 0 \text{ cm}$ entspricht Oberkante Konus in der Mitte der Kugelschüttung).

6.7 Zwei-Zonen-Geometrie

Das vorherige Unterkapitel zeigt durch die Veränderung der Geometrie ein verbessertes Ergebnis. Der Einfluss des Außenreflektors auf die Leistungsdichteverteilung ist bei den frischen Brennelementen größer als bei den abgebrannten. Daher könnte eine veränderte Beladestrategie eine weitere Verbesserung bringen.

Dafür wird die Kugelschüttung in zwei radiale, abbrandabhängige Bereiche aufgeteilt. Es wird zwischen „innen“, d. h. zylinderförmig um die Reaktormitte, und „außen“, als Zylinderschale zwischen „innen“ und Reflektor, unterschieden. In der Realität müssen dafür mehrere Brennelementenzuläufe und -abzugsrohre vorgesehen werden.

Für diese Idee wird die Zoneneinteilung eines vorhandenen Zwei-Zonen-Inputs verwendet (siehe Abb. 6.6). Der Input wurde bereits in der Studienarbeit von T. Schwarz [86] verwendet. Dabei wurde gezeigt, dass in diesem mit U-Brennelementen beladene Zwei-Zonen-Reaktor bei 300 MW_{th} die Nachwärme passiv abgeführt werden kann, ohne die Grenztemperatur zu erreichen.

Der Reaktor besteht aus einer elf Meter hohen zylindrischen Kugelschüttung mit 1,85 m im Radius. Konen an Ober- und Unterkante der Kugelschüttung und die Kugelabzugsrohre sind in diesem Modell nicht berücksichtigt. In der äußersten radialen Zone wird eine verminderte Fließgeschwindigkeit der Brennelemente angenommen. Die Beladung erfolgt mit den in Kap. 3.1 beschriebenen Pu-Brennelementen.

Die Grenze zwischen dem Bereich „innen“ und „außen“ variiert. Sie ist abhängig von der Anzahl der Umläufe der Brennelemente in den einzelnen Bereichen. Bei 5 Durchläufen „innen“ und 7 Durchläufen „außen“, muss 1/7 der Brennelemente von „außen“ 1/5 der Brennelemente von „innen“ entsprechen.

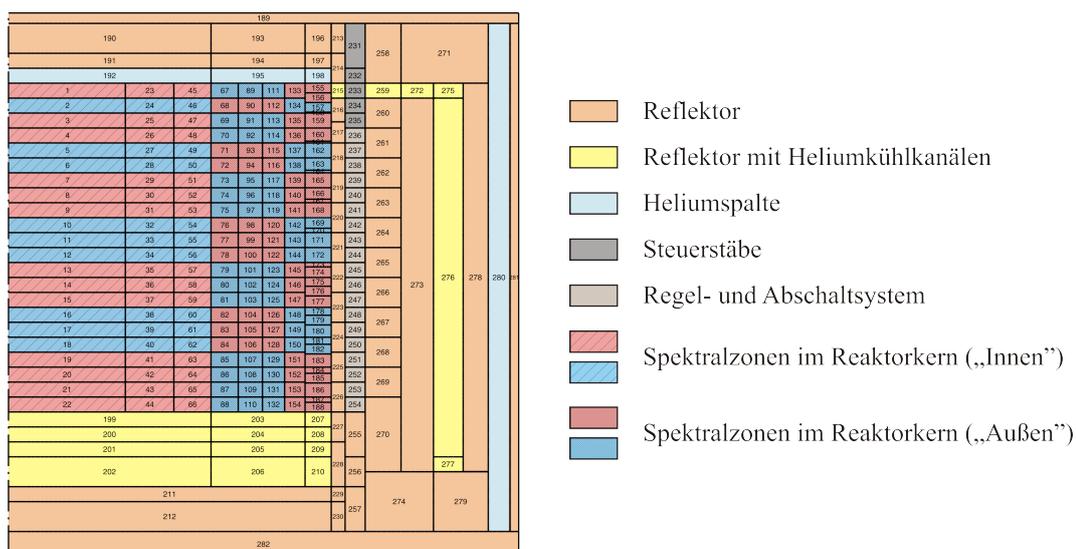


Abbildung 6.6: Zoneneinteilung eines Reaktors mit zwei Brennelementbeladezonen in ZIRKUS.

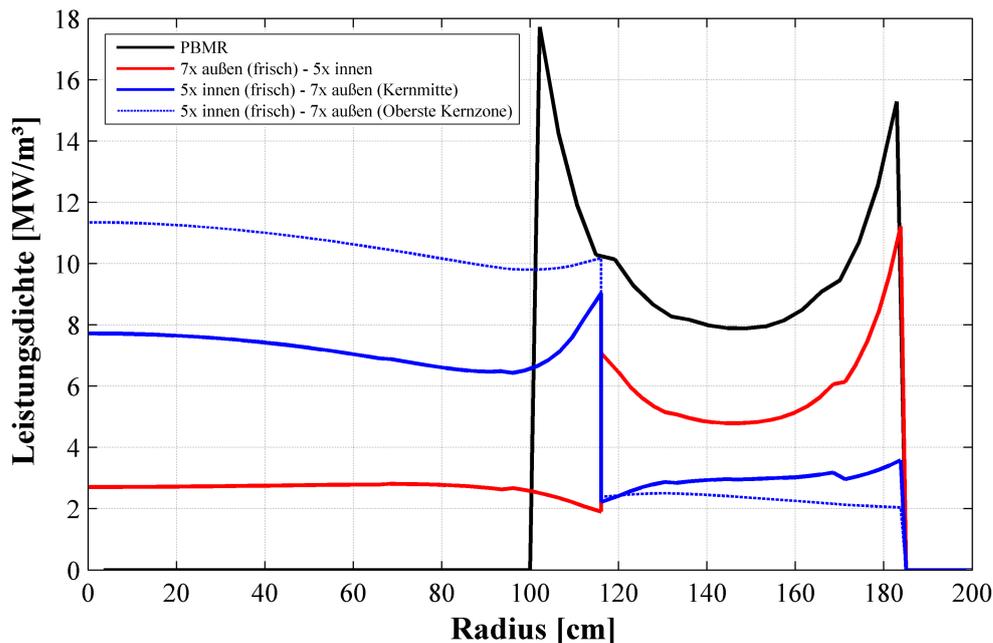


Abbildung 6.7: Radiales Leistungsprofil eines mit Pu-Brennstoff beladenen Zweizonenkerns im axialen Leistungsmaximum mit der Beladestrategie 5x innen (frische Brennelemente) und 7x außen bzw. 7x außen (frische Brennelemente) und 5x innen. Für die Beladung 5x innen - 7x außen wird zusätzlich der radiale Schnitt durch das Leistungsmaximum in der Reaktormitte dargestellt. Die schwarze Kurve zeigt das radiale Leistungsdichteprofil des PBMRs mit 400 MW_{th} .

Zur Berechnung eines solchen Reaktors werden feste Grenzen mit festen Umlaufzahlen angenommen. In der Realität werden sich die Brennelemente im Reaktor mischen und keine exakte Grenze bilden. Es wird der Abbrand der entladenen Brennelemente gemessen und je nach Abbrand werden sie in einen weiter innen liegenden oder in einen weiter außen liegenden Brennelementenzulauf dem Reaktor zugeführt.

In einem ersten Versuch wird eine Einteilung unternommen, in der die Brennelemente „innen“ fünf Mal und „außen“ sieben Mal rezykliert werden. In Abb.6.7 ist die radiale Leistungsverteilung im axialen Maximum dargestellt. Die schwarze Kurve ist die Leistungsverteilung des PBMR bei 400 MW_{th} .

Die rote Kurve gibt die radiale Leistungsverteilung für den Zweizonenkern mit 300 MW_{th} wieder, in dem die frischen Brennelemente zuerst „außen“ und anschließend „innen“ abgebrannt werden (im Folgenden mit „außen - innen“ bezeichnet). Der Abbrand erreicht 727 MWd/kg SM ; die maximale Partikeltemperatur liegt bei 1212 °C . An der Reflektorgrenze zeigt sich analog zum PBMR ein Leistungsmaximum. Zusätzlich entsteht an den Grenzen der beiden Zonen eine Leistungserhöhung. Diese wird durch die unterschiedlichen Nuklidverteilungen erzeugt.

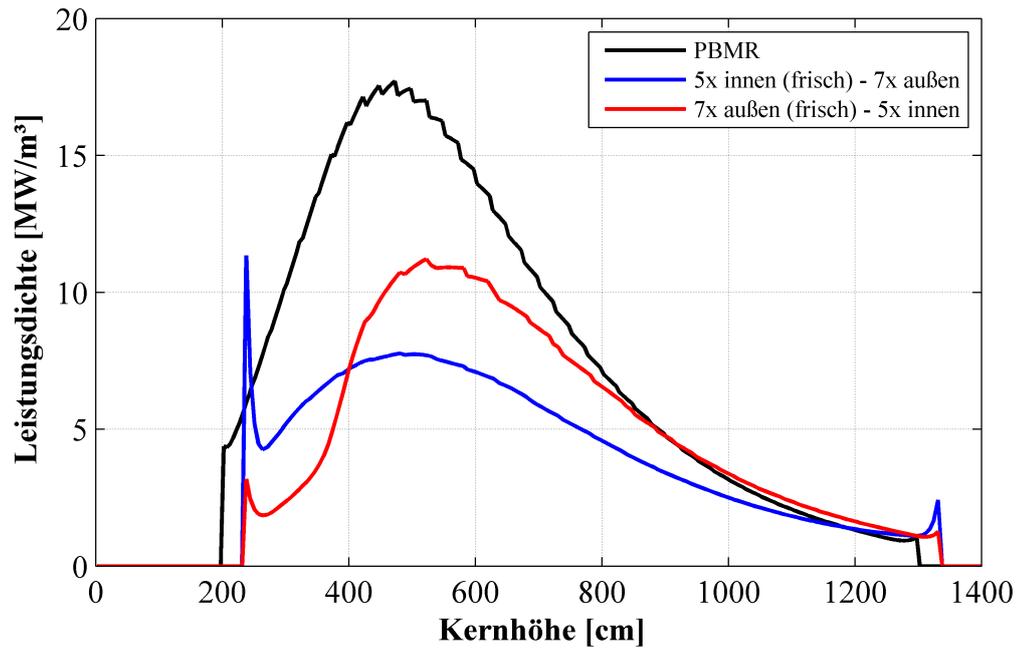


Abbildung 6.8: *Axiales Leistungsprofil eines mit Pu-Brennstoff beladenen Zweizonenkerns im radialen Maximum mit der Beladestrategie 5x innen (frische Brennelemente) und 7x außen bzw. 7x außen (frische Brennelemente) und 5x innen. Die schwarze Kurve zeigt das radiale Leistungsdichteprofil des PBMRs mit 400 MW_{th} . Die Kugelschüttung beginnt beim PBMR bei $h = 200\text{ cm}$, in den beiden anderen Fällen bei $h = 235\text{ cm}$.*

Bei der Beladung „außen - innen“ sind die Temperaturen niedriger als im PBMR. Dies erfolgt durch das radial sehr lokal begrenzte Leistungsmaximum. Die Temperatur eines Brennelements kann sowohl in die leistungsschwächere Kernmitte als auch an den Reflektor abgegeben werden.

Die blauen Kurven zeigen das Ergebnis für einen Zweizonenkern mit 300 MW_{th} Leistung, in dem die frischen Brennelemente zuerst „innen“ und anschließend „außen“ rezykliert werden (im Folgenden mit „innen - außen“ bezeichnet). Der Abbrand liegt bei 740 MWd/kg SM mit einer maximalen Partikeltemperatur von 1315 °C . Im Kerninneren zeigen sich analoge Leistungserhöhungen wie im vorherigen Fall. Im äußeren Bereich liegt durch den hohen Abbrand kaum mehr ^{239}Pu vor. Die Leistungsüberhöhung am Reflektor fällt dadurch geringer aus. Die durch die Berechnung resultierende scharfe Grenze zwischen den frischeren und den abgebrannteren Brennelementen führt zu einem Leistungsabfall von 9 MW/cm^3 .

Im Vergleich zur Beladung „außen - innen“ ist die Leckage im Fall „innen - außen“ geringer. Dadurch zeigt sich das axiale Maximum nicht in der Kernmitte, sondern in der obersten Kernzone (gestrichelte blaue Linie).

Dies wird auch im axialen Leistungsdichteprofil in Abb. 6.8 sichtbar. Insgesamt zeigt die

axiale Leistungsverteilung im Zweizonenkern kein großes Maximum und verläuft axial gesehen homogener als beim PBMR. Der Höhenunterschied der Leistungen zwischen dem PBMR und dem Zwei-Zonen-Reaktor liegt an der unterschiedlichen Höhe des Topreflektors.

Es zeigt sich, dass nur die Variation „innen - außen“ durch die geringeren Leistungsdichtemaxima im Reaktor eine Alternative zu den bisher untersuchten Reaktordesigns ist. Veränderungen, wie Vergiften des oberen Reflektors, um das Leistungsdichtemaximum in der obersten Zone bei „innen - außen“ zu reduzieren oder die Variation der Umlaufzahlen für „innen - außen“, zeigen keinen nennenswerten Erfolg. Da durch dieses strenge Abbrandkriterium die Grenze sehr scharf verläuft, müsste in weiteren Versuchen, eine geringe Anzahl an frischen oder nur geringer abgebrannten Brennelementen im äußeren Bereich eingebracht werden.

Des Weiteren bleiben jedoch die Probleme des Wassereintruchs, da sich auch in diesem Design das Verhältnis zwischen Moderator-zu-Spaltmaterial nicht verbessert hat. Die Steuerstabwirksamkeit wurde nicht untersucht. Jedoch ist davon auszugehen, dass durch die Anhäufung der frischen Brennelemente in der Reaktormitte, die Wirksamkeit der Steuerstäbe geringer ist. Damit müsste detailliert untersucht werden, ob die Abschaltwirksamkeit noch gewährleistet ist. Außerdem wird der Reaktor auch bei den weiteren Störfällen, wie z. B. DLOCA ein verändertes Verhalten aufweisen.

6.8 Zusammenfassung

In diesem Kapitel wurden in verschiedenen Variationen untersucht, die Temperaturen, die Temperaturkoeffizienten und das Verhalten bei Wassereintruch in einem mit Pu-Brennelementen beladenen Reaktor zu verbessern. Dabei sollte möglichst viel Leistung verbunden mit einem möglichst hohen Abbrand erreicht werden.

Eine reine Variation verschiedener Parameter unter Beibehaltung der PBMR-Geometrie zeigt nicht den gewünschten Erfolg. Hierbei zeigen sich die Probleme der Untermoderation bei Wassereintruch und der positive Temperaturkoeffizient.

Eine Veränderung der Geometrie, d.h. ohne Reflektorrinnensäule, zeigt leichte Verbesserungen bei der Berechnung. Dabei wurden auch unterschiedliche Beladestrategien untersucht, wobei der Zweizonenkern keine grundlegenden Verbesserungen bringt. Allerdings muss auch die thermische Leistung des Reaktors im Vergleich zum PBMR reduziert werden, damit die Nachzerfallswärme im Störfall passiv abgeführt werden kann. Auf diesen Störfall wurde in diesem Kapitel nicht eingegangen und müsste für den Reaktor ohne Innenreflektor mit Ein- oder Zweizonenbeladung analysiert werden.

Zusammenfassend muss festgestellt werden, dass ein mit Plutonium beladener HTR mit hohem Abbrand nicht die Sicherheiten bietet, wie sie ein Uran beladener HTR hat.

Zusammenfassung

Die in einem Kernkraftwerk entstehenden Radionuklide weisen große Radiotoxizitäten mit langen Halbwertszeiten auf. Diese radioaktiven Nuklide müssen lange gelagert werden. Durch Transmutation dieser Nuklide könnte die Menge und Radiotoxizität an endzulagerndem Material stark vermindert werden.

In dieser Arbeit wurde untersucht, ob Plutonium und Minore Aktinide aus abgebrannten Leichtwasserreaktor-Brennelementen im Hochtemperaturreaktor (HTR) bei gleichzeitiger Energiegewinnung effektiv transmutiert werden können. Durch die Veränderung des Brennstoffs wurde außerdem überprüft ob die inhärente Sicherheit des HTR weiterhin gegeben ist.

Für eine effektive Transmutation ist ein hoher Abbrand erforderlich. Mit der in Kap. 3 gegebenen Referenzgeometrie kann für ein kritisches System ein maximaler mittlerer Endladeabbrand von 691 MWd/kg SM für einen Plutonium- und 575 MWd/kg SM für einen Minore Aktinide-Brennelemente beladenen Reaktor erreicht werden. In ergänzenden Berechnungen zeigte sich, dass die geometrische Form der Kugelschüttung und die Durchlaufgeschwindigkeit der Brennelemente keinen wesentlichen Einfluss auf den maximalen Entladeabbrand aufweisen.

Bei der Betrachtung der im frischen Plutonium- bzw. Minoren Aktiniden-Brennelement vorhandenen Nuklide ist eine Reduzierung um 79% bzw. 64% erreicht worden. Andererseits wurden weitere langlebige Nuklide, wie z.B. Americium und Curium, erzeugt. Die Ingestionstoxizität bei Brennelemententnahme ist in beiden Fällen höher als die des frischen HTR-Brennelements. Die als Vergleich betrachtete natürliche Urantoxizität erreicht das abgebrannte Brennelement nach kürzerer Zeit als das frische Brennelement. Höhere Abbrände benötigen noch geringere Endlagerzeiten um auf das Ingestionstoxizitätslevel des Urans abzufallen. Sowohl die Inhalationstoxizität als auch die Nachzerfallsleistung der abgebrannten Brennelemente sind höher als die der frischen. Zudem ist die Abnahme über der Endlagerzeit kaum stärker ausgeprägt als beim frischen Brennelement. Die Toxizität wird hauptsächlich durch die Plutonium-, Americium- und Curiumisotope erzeugt. Diese werden teilweise durch Neutroneneinfang an Isotopen mit hohem Einfangquerschnitt erzeugt. Daher findet nicht nur eine Vernichtung der langlebigen, toxischen Isotope, sondern auch eine Erzeugung im Reaktor statt. Für eine verbesserte Reduzierung dieser Isotope, müssten diese separat extrahiert und transmutiert werden.

Für den sicheren Einschluss der Spaltprodukte darf das Schwermetalloxid im Brennelement eine gewisse Temperatur nicht überschreiten. Die Temperaturen in den Plutonium- und Minoren Aktiniden-Brennelementen überschreiten die Grenztemperatur des Urans um ein Vielfaches. Dies führt zu einer inakzeptablen Spaltnuklidfreisetzung. Hervorgerufen werden diese hohen Temperaturen durch die heterogene Leistungsverteilung, die ihr Maximum an der Grenze zum Innen- und Außenreflektor erreicht. Die absorbierenden Isotopen im Brennelement, wie z. B. ^{240}Pu und ^{241}Am beeinflussen die Leistungsverteilung. Durch diese Isotope erhalten die aus dem Reflektor in den Reaktor zurück gestreuten Neutronen mit Energien unterhalb der Absorptionsresonanzen einen großen Einfluss auf die Leistungsverteilung. Die Leistungsdichte nimmt in den Randgebieten der Kugelschüttung ihren Maximalwert an. Die aus der heterogenen Leistungsverteilung resultierenden hohen Temperaturen können durch eine Veränderung der Partikelgröße oder der Schwermetallmasse im Brennelement nicht reduziert werden. Daher muss die Leistung für den Plutonium- bzw. Minoren Aktiniden beladenen Reaktor soweit reduziert werden, dass die maximalen Temperaturen die Grenztemperatur nicht überschreiten. Bei einer Reduzierung auf 150 MW_{th} sinkt die Brennstofftemperatur unter die Grenztemperatur von 1200 °C .

Weitere Probleme sind der positive Temperaturkoeffizient bei niedrigen Temperaturen und das geringe Verhältnis von Moderatormasse zu Spaltmaterial. Durch den positiven Temperaturkoeffizienten wird bei Temperaturzunahme, z. B. bei Anfahren des Reaktors, die Reaktivität im Reaktor erhöht. Durch den geringen Anteil an Moderatormasse erhöht sich die Reaktivität bei Zugabe von Moderator, z. B. Wasser, ebenfalls. Durch diese Eigenschaften gibt es Situationen, in denen die Regelbarkeit der Reaktors in Frage gestellt werden muss. Deshalb ist auch eine Lizenzierung des Reaktors fragwürdig.

Eine Variation der Reaktorgeometrie ohne Innensäule (HTR-PM) mit 250 MW_{th} Leistung zeigt eine homogenere Leistungsverteilung. Die dadurch stark reduzierten Temperaturen sind nur noch knapp über der Grenztemperatur. Da sich die Brennelementdefinition nicht ändert, bleiben die Probleme des positiven Temperaturkoeffizienten und des starken Reaktivitätszuwachses bei Wassereinbruch.

Unabhängig von diesen Schwierigkeiten sind Unterschiede zwischen der Lösung mittels Diffusionsgleichung (ZIRKUS) die der Transportgleichung (MCNP 5) zu erkennen. Analysen zeigen, dass dies durch den starken Gradienten in der Leistungsverteilung hervorgerufen wird. Da die Transportgleichung diesen Effekt besser berücksichtigen kann, ist für zukünftige Berechnungen in jeden Fall die Lösung der Transportgleichung der Lösung der Diffusionsgleichung vorzuziehen.

Insgesamt kann festgestellt werden, dass aus den abgebrannten LWR-Brennelementen nach Aufbereitung nochmals Energie gewonnen werden kann. Jedoch ist es nicht möglich einen kritischen, inhärent sicheren HTR mit ausschließlich Plutonium- und Minoren Aktiniden-Brennelementen zu betreiben. Prinzipiell kann mit hohen Abbränden

von mindestens 700 MWd/kg SM eine Reduzierung der Radiotoxizität und der Nachzerfallsleistung im Endlager erreicht werden. Dadurch kann die Größe des Endlagers reduziert und die Gesamtkosten gesenkt werden. Es ist jedoch ein Zwischenlager notwendig, in dem die anfänglich höheren Toxizitäten und Nachzerfallsleistung abklingen kann.

Ausblick

Für die möglichst vollständige Transmutation von langlebigen Isotopen müssen diese über lange Zeit hinweg in einem konstanten Neutronenfluss abgebrannt werden. In einem mit Uran-Brennstoff betriebenen HTR könnten einzelne Transmutations-Brennelemente mit langlebigen Nukliden eingebracht werden. Diese Brennelemente würden länger als üblich im Reaktor rezyklieren und erreichen damit einen hohen Abbrand. Welche Menge an Transmutations-Brennelementen über welchen Zeitraum im Reaktor abgebrannt wird, und welcher maximale Abbrand in einem noch überschaubaren Zeitrahmen erreicht werden kann, müsste untersucht werden. Außerdem muss die inhärente Sicherheit des HTRs weiterhin gewährleistet sein. Die großen Unterschiede zwischen Plutonium und Uran haben in dieser Arbeit gezeigt, dass detaillierte Analysen für die Betrachtung von Brennelementen mit Plutonium berücksichtigt werden müssen.

Literaturverzeichnis

- [1] *BWK: Das Energie-Fachmagazin - Kernenergie: Sonderdruck zur Jahresausgabe 2010*. Springer/VDI-Verlag, Mai 2010.
- [2] *Kernenergie - Bilanz 2009*. Deutsches Atomforum e.V., April 2010.
- [3] *Zukunfts!Fragen*, 6. 6. 2010.
- [4] Informationskreis KernEnergie: *Wissensportal Kernenergie*.
<http://www.kernfragen.de> (01. 08. 2010).
- [5] J. L. Kloosterman und E. E. Bende: *Plutonium recycling in pressurized water reactors: Influence of the moderator-to-fuel ratio*. Nuclear Technology, 130:227–241, 2000.
- [6] J. Blomgren et al. (Herausgeber): *Partitioning and transmutation Current developments - 2010*. Svensk Kärnbränslehantering AB, Januar 2010. Technical Report TR-10-35.
- [7] R. J. M. Konings und J. L. Kloosterman: *A view of strategies for transmutation of actinides*. Progress in Nuclear Energy, 38/Nr.3-4:331–334, 2001.
- [8] K. Monato, T. Ikegamie und T. Inoue: *Recent research and development activities on partitioning and transmutation of radioactive nuclides in japan*. Proceedings of the 8th exchange Meeting in Actinide and Fission Product Partitioning and Transmutation, Las Vegas, Nevada, USA, 9. - 11. November 2004.
- [9] H. Akie: *Core Burnup Calculation of Plutonium Burning Inert-Matrix Fueled High Temperature Gas Cooled Reactor*. Journal of Nuclear Science and Technology, 44/Nr.6:853–861, 2007.
- [10] A. Vasile et al.: *Advanced fuels for plutonium management in pressurized water reactors*. Journal of Nuclear Materials, 319:173–179, 2003.
- [11] B. Bonin et al.: *Prospective studies of HTR fuel cycles involving plutonium*. Proceedings of the Conference on High Temperature Reactors, HTR 2002, Petten, Niederlande, 22. - 24. April 2002.

- [12] U.S. DOE Nuclear Energy Research Advisory Committee und the Generation IV International Forum: *A Technology Roadmap for Generation IV Nuclear Energy Systems*, December 2002.
- [13] T. A. Lennox, D. N. Millington und R. E. Sunderland: *Plutonium management and Generation IV systems*. *Progress in Nuclear Energy*, 49:589–596, 2007.
- [14] D. Haas und D. J. Hamilton: *Fuel cycle strategies and plutonium management in Europe*. *Progress in Nuclear Energy*, 49:574–582, 2007.
- [15] J. L. Kloosterman und P. M. G. Damen: *Reactor physics aspects of plutonium burning in inert matrix fuels*. *Journal of Nuclear Materials*, 274:112–119, 1999.
- [16] J. L. Kloosterman: *Application of boron and gadolinium burnable poison particles in UO_2 and PuO_2 fuels in HTRs*. *Annals of Nuclear Energy*, 30:1807–1819, 2003.
- [17] U.S. Department of Energy: *Homepage des U.S. Departments of Energy*. <http://www.nuclear.energy.gov> (01. 08. 2010).
- [18] R. M. Versluis et al.: *Project Deep-Burn: Development of Transuranic Fuel for High-Temperature Helium-Cooled Reactors*. Proceedings of the 4th International Topical Meeting on High Temperature Reactor Technology, HTR 2008, Washington DC, USA, 28. September - 1. Oktober 2008.
- [19] Department of Nuclear Engineering, University of California, Berkely: *Poster of DeepBurn Project*. [http://www.nuc.berkeley.edu/PB-AHTR/Poster\\$_DeepBurn.pdf](http://www.nuc.berkeley.edu/PB-AHTR/Poster$_DeepBurn.pdf) (01. 08. 2010).
- [20] C. Rodriguez et al.: *Deep-Burn: making nuclear waste transmutation practical*. *Nuclear Engineering and Design*, 222:299–317, 2003.
- [21] V. Bhatnagar: *EU Strategy in Partitioning & Transmutation and its Implementation within the EURATOM Framework Programmes*. 10th International Exchange Meeting on Partitioning and Transmutation, Mito, Japan, 6. - 10. Oktober 2008.
- [22] *RED-IMPACT Impact of Partitioning, Transmutation and Waste Reduction Technologies on the Final Nuclear Waste Diposal*, September 2007. Volume 15.
- [23] J. C. Kuijper: *PuMA - Plutonium and Minor Actinides Management in Thermal High-Temperature Reactors*. Proceedings of the International Congress on Advances in Nuclear Power Plants, ICAPP 2007, Nizza, Frankreich, 13. - 18. Mai 2007.
- [24] EU-Projekt PuMA: *Homepage des EU-Projekts PuMA*. <http://www.puma-project.eu/> (01. 08. 2010).

- [25] W. von Lensa et al.: *European Programme on High Temperature Reactor Nuclear Physics, Waste and Fuel Cycle Studies*. Proceedings of the International Congress on Advances in Nuclear Power Plants, ICAPP 2003, Cordoba, Spanien, 4. - 7. Mai 2003.
- [26] J. Kuijper et al.: *Definition of common parameters and reference HTR designs for HTR-N*, 2004. HTR-N-02/09D3.1.1.
- [27] J. C. Kuijper et al.: *HTR-N plutonium cell burnup benchmark: definition, results and intercomparison*. Proceedings of the International Conference on the Physics of Reactors, PHYSOR 2004, Chicago, USA, 25 - 29. April 2004.
- [28] J. B. M. de Haas und J. C. Kuijper: *Feasibility of burning first and second generation plutonium in pebble bed HTRs*. Proceedings of the Advances in Nuclear Fuel Management III, ANFM 2003, Hilton Head Island, South Carolina, USA, 5. - 8. Oktober 2003.
- [29] J. B. M. de Haas, J. C. Kuijper und J. Oppe: *Burnup and transient analysis of a HTR-400 design loaded with PuO₂*. Proceedings of the 3rd International Topical Meeting on High Temperature Reactor Technology, HTR 2006, Johannesburg, Südafrika, 1. - 4. Oktober 2006.
- [30] E. Mulder und E. Teuchert: *Characteristics of a different fuel cycle in a PBMR-400 for burning reactor grade plutonium*. Nuclear Engineering and Design, 238:2893–2897, 2008.
- [31] K. Kugeler et al.: *Use of Plutonium in Pebble Bed HTGRs*. IAEA Tecdoc, 1210:229–236, 1998.
- [32] M. Khorochev: *Nutzung von Plutonium im Kugelhaufen-Hochtemperaturreaktor*. Doktorarbeit, Technische Hochschule Aachen, 1997.
- [33] C. Pistner: *Neutronenphysikalische Untersuchungen zu uranfreien Brennstoffen*. Doktorarbeit, Technische Universität Darmstadt, 2006.
- [34] D. Albright und K. Kramer: *Plutonium Watch - Tracking Plutonium Inventories*. Institute for Science and International Security (ISIS), August 2005.
- [35] S. Y. F. Chu and V. S. Shirley: *Table of Isotopes CD-ROM*, März 1996.
- [36] J. L. Kloosterman et al.: *Strategies for the transmutation of americium*. Proceedings of Global 1997, Yokohama, Japan, Seiten 338–343, 1997.
- [37] H. Smith (Herausgeber): *Annals of the ICRP: Radiation Protection, ICRP Publication 72, Age-dependent Doses to Members of the Public from Intake of*

- Radionuclides: Part 5 Complation of Ingestion and Inhalation Dose Coefficients.* International Commission on Radiological Protection, 1995.
- [38] J. H. Bultman: *Actinide Transmutation in Nuclear Reactors.* Doktorarbeit, Technische Universität Delft, 1995.
- [39] Paul Scherer Institut: *Proteus Project Web Home.*
<http://proteus.web.psi.ch/> (20. 08. 2010).
- [40] H. Büker: *Das deutsche Hochtemperaturreaktor-Konzept.* Naturwissenschaften, 56 / Nr.3:112–120, 1969.
- [41] Z. Wu, D. Lin und D. Zhong: *The design features of the HTR-10.* Nuclear Engineering and Design, 218:25–32, 2002.
- [42] *Special Issue on HTR-10.* Nuclear Engineering and Design, 2002.
- [43] *Special Issue on HTTR.* Nuclear Engineering and Design, 2004.
- [44] Japan Atomic Energy Agency: *HTTR Homepage.*
http://httr.jaea.go.jp/eng/index_top_eng.html (11. 08. 2010).
- [45] J. L. Everett und E. J. Kohler: *Peach bottom unit no.1: A high performance helium cooled nuclear power plant.* Annals of Nuclear Energy, 5 / Nr. 8-10:321–335, 1978.
- [46] R. Simon: *The primary circuit of the dragon high temperature reactor experiment.* Proceedings of the International Conference on Strutural Mechanics in Reactor Technology, SMiRT 2005, Beijing, China, 7. - 12. August 2005.
- [47] FSVFolks: *Fort St. Vrain Homepage.*
http://www.fsvfolks.org/FSVHistory_2.html (19. 08. 2010).
- [48] Z. Zhang et al.: *Design of chinese modular high-temperature gas-cooled reactor HTR-PM.* Proceedings of the 2nd International Topical Meeting on High Temperature Reactor Technology, HTR 2004, Beijing, China, 22. - 24. September 2004.
- [49] Z. Zhang et al.: *Current status and technical description of Chinese 2 x 250MW_{th} HTR-PM demonstration plant.* Nuclear Engineering and Design, 239:1212–1219, 2009.
- [50] A. Koster, H.D. Matzner und D. R. Nicholisi: *PBMR design for the future.* Nuclear Engineering and Design, 222:231–245, 2003.
- [51] H. Reutler und G. H. Lohnert: *Advantages of going modular in HTRs.* Nuclear Engineering and Design, 78:129–136, 1984.

- [52] G. H. Lohnert: *Technical design features and essential safety-related properties of the HTR-Module*. Nuclear Engineering and Design, 121:259–275, 1990.
- [53] H. Nickel et al.: *Long time experience with the development of HTR fuel elements in Germany*. Nuclear Engineering and Design, 217:141–151, 2002.
- [54] E. Bende: *Plutonium Burning in a Pebble-Bed Type High Temperature Nuclear Reactor*. Doktorarbeit, Technische Universität Delft, 1999.
- [55] W. Bernnat und W. Feltes: *Models for reactor physics calculations for HTR pebble bed modular reactors*. Nuclear Engineering and Design, 222:331–347, 2003.
- [56] S. M. Dancoff und M. Ginsburg: *Surface Resonance Absorption in Close Packed Lattices*. Manhattan Project Report, CP-2157, 1944.
- [57] D. Mathews: *An Improved Version of the Microx-2 Code*. Paul Scherer Institut, PSI Bericht Nr. 97-11, November 1997.
- [58] P. Wälti und P. Koch: *Microx - A two-region flux spectrum code for the efficient calculation of a group cross-sections*. GULF GA-A10827, 1972.
- [59] A. Koning et al.: *JEFF Report 21: The JEFF-3.1 Nuclear Data Library*. NEA/OECD: Nuclear Energy Agency, Organisation for Economic Co-operation and Development, 2006. NEA No. 6190.
- [60] D. J. Behrens: *The Effect of Holes in a Reacting Material on the Passage of Neutrons*. Proceedings of the Physical Society, 62A:607, 1949.
- [61] J. Lieberoth und A. Stojadinovic: *Neutron streaming in pebble beds*. Nuclear Science and Engineering, 76:336–344, 1980.
- [62] J. Lieberoth: *An approximation of finite-difference methods for diffusion problems by a coarse-mesh method*. Atomkernenergie, 30, 1977.
- [63] H. Gerwin und W. Scherer: *Treatment of the Upper Cavity in a Pebble-Bed High-Temperature Gas-Cooled Reactor by Diffusion Theory*. Nuclear Science and Engineering, 97:9–19, 1987.
- [64] K. Petersen: *Zur Sicherheitskonzeption des Hochtemperaturreaktors mit natürlicher Wärmeableitung aus dem Kern im Störfall*. Doktorarbeit, Technische Hochschule Aachen, 1983.
- [65] K. Hossain, A. Meier, M. Buck, W. Bernnat und G. Lohnert: *Implementation of a heterogeneous fuel model and a neutron dose model in thermal hydraulic codes for HTRs and its significance in design and safety calculations*. Jahrestagung Kerntechnik, 12. - 14. Mai 2009. Dresden.

- [66] General Atomic: *Division of General Dynamics: Experimental and theoretical neutron spectra*, 22.5.1964. GA-5319.
- [67] J. C. Kuijper et al.: *HTR-N reactor physics and fuel cycle studies*. Proceedings of the 2nd International Topical Meeting on High Temperature Reactor Technology, HTR 2004, Beijing, China, 22 - 24. September 2004.
- [68] M. D. DeHart und A. P. Ulses: *Benchmark Specification for HTGR Fuel Element Depletion*. NEA/NSC/DOC 13, 2009.
- [69] A. Meier et al.: *Burnup calculations for HTR kernels and lattices of pebbles and compacts*. Jahrestagung Kerntechnik, 3. - 6. Mai 2010. Berlin.
- [70] A. G. Croff: *RSICC Computer Code Collection - Origen 2.2*. Oak Ridge National Laboratory, CCC-371, June 2002.
- [71] A. Meier, W. Bernnat und G. Lohnert: *Methods for the calculation of pebble bed HTRs with high burnup Pu/MA based fuel*. International Youth Nuclear Congress, Paper No. 181, 20. - 26. September 2008. Interlaken.
- [72] T.B. Fowler, D.R. Vondly und G.W. Gunningam: *Nuclear Reactor Code Analysis Code: CITATION*. Oak Ridge National Laboratory, CCC-643, 1971.
- [73] K. Hossain, M. Buck, N. Ben Said, W. Bernnat und G. Lohnert: *Development of a fast 3D thermal-hydraulic tool for design and safety studies for HTRs*. Nuclear Engineering and Design, 238:2976–2984, 2008.
- [74] X 5 Monte Carlo Team: *MCNP - A general Monte Carlo N-Particle Transport Code, Version 5*. Version5, LA-UR-03-1987, April 2003.
- [75] H. Wohland und R. Rühle: *Abbrand, ein Modul für Abbrandrechnungen in RSYST-1*. Technischer Bericht, Berichtnr. 4-10, Oktober 1972.
- [76] Pebble Bed Modular Reaktor Limited: *Homepage der PBMR*. <http://www.pbmr.com> (11. 08. 2010).
- [77] J. C. Kuijper: *Pu and MA Management in thermal HTGRs - Impact at fuel, reactor and fuel cycle levels*. Proceedings of the 4th International Topical Meeting on High Temperature Reactor Technology, HTR 2008, Washington DC, USA, 28. September - 1. Oktober 2008.
- [78] F. Reitsma et al.: *The PBMR steady state and coupled kinetics core thermal-hydraulics benchmark test problems*. Nuclear Engineering and Design, 236:657–668, 2006.

- [79] W. Schenk, D. Pitzer und H. Nabielek: *Spaltproduktfreisetzungsverlauf von Kugelbrennelementen bei Störfalltemperaturen*. Jülich Report 2091, 1986.
- [80] T. Dudley et al.: *The Thermal-Hydraulic model for the pebble bed modular reactor (PBMR) plant operator training simulator system*. Nuclear Engineering and Design, 238:3102–3113, 2008.
- [81] Korea Atomic Energy Research Institute: *Table of Nuclides*.
<http://atom.kaeri.re.kr/> (11. 08. 2001).
- [82] A. Walter, A. Schulz und G. Lohnert: *Comparison of Two Models for a Pebble Bed Modular Reactor Core Coupled to a Brayton Cycle*. Proceedings of the 2nd International Topical Meeting on High Temperature Reactor Technology, HTR 2004, Beijing, China, 22 - 24. September 2004.
- [83] *United States Code of Federal Regulations, Part 10, Title 20*.
<http://www.nrc.gov/reading-rm/doc-collections/cfr/part020/full-text.html> (20.09.2010).
- [84] J. Magill et al.: *Impact limits of partitioning and transmutation scenarios on the radiotoxicity of actinides in radioactive waste*. Nuclear Technology, 42/5:263–277, 2003.
- [85] W. Koelzer: *Lexikon zur Kernenergie*.
http://www.kernenergie.de/kernenergie/documentpool/Service/021lexikon2010_10.pdf, Oktober 2010.
- [86] T. Schwarz: *Mehrzonen-beladungsstrategien für modulare Hochtemperaturreaktoren*. Studienarbeit, Institut für Kernenergetik und Energiesysteme, Universität Stuttgart, 2007.

Danksagung

An dieser Stelle möchte ich allen danken, die zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen haben.

In besonderer Weise möchte ich mich bedanken bei:

- Herrn Prof. G. Lohnert, für die Möglichkeit, in einem zukunftssträchtigen Projekt zu promovieren, für die Betreuung auch nach Beendigung seiner Arbeit am IKE und für die immer offen stehende Tür.
- Herrn Prof. Dr. V. Heinzl, für die Bereiterklärung der Zweitkorrektur meiner Arbeit und der damit verbundenen interessanten und lehrreichen Gespräche.
- Herrn Dr. W. Bernnat, für die ausgezeichnete Betreuung, die immer neuen Ideen und die zahlreichen fruchtbaren Diskussionen.
- Allen Kollegen des Instituts IKE und der Gruppe Reaktorphysik für die angenehme Zeit.
- Herrn Prof. Dr. E. Laurien und Herrn Prof. Dr. J. Starflinger, dass ich meine Arbeit während ihrer Institutsleiterzeit weiter fortsetzen durfte.
- Der EnBW Energie Baden-Württemberg AG, für die finanzielle Unterstützung durch das EnBW-Doktorandenprogramm und der Möglichkeit schon während der Forschungszeit am Institut einen Einblick in die Welt der Kernenergie zu erhalten. Im besonderen möchte ich mich hierbei bei Frau Schölch, Frau Lübben und Herrn Heil, Herrn König und Herrn Lamprecht bedanken.
- Allen beteiligten Personen am Projekt PuMA sowie dem Projektleiter Herrn Jim Kuijper für die vielen interessanten und hilfreichen Fachgespräche.
- Meinem Verlobten Andreas, für das Verständnis und die Unterstützung in dieser arbeitsreichen Zeit.
- Meinen Eltern, die mir das Studium ermöglicht haben, ohne das diese Disseration nicht möglich gewesen wäre und mir auch während der Promotionszeit immer unterstützend zur Seite gestanden sind.

Institut für Kernenergetik und
Energiesysteme

Universität Stuttgart

Pfaffenwaldring 31

D-70550 Stuttgart

