

KONZEPTION EINES URANFREIEN LWR-KERNS ZUR PLUTONIUMVERBRENNUNG

THÈSE N° 1757 (1998)

PRÉSENTÉE AU DÉPARTEMENT DE PHYSIQUE

ÉCOLE POLYTECHNIQUE FÉDÉRALE DE LAUSANNE

POUR L'OBTENTION DU GRADE DE DOCTEUR ÈS SCIENCES TECHNIQUES

PAR

Uwe KASEMEYER

Diplom-Ingenieur Maschinenbau, Technische Universität Braunschweig, Allemagne
de nationalité allemande

acceptée sur proposition du jury:

Prof. R. Chawla, directeur de thèse
Dr C. Maeder, corapporteur
Prof. W. Oldekop, corapporteur
J.M. Paratte, corapporteur
Prof. G. Sarlos, corapporteur

Lausanne, EPFL
1998

Kurzfassung

Ökonomische Gründe und fehlende Akzeptanz sprechen heute gegen eine effektive Schließung des Brennstoffkreislaufs. Somit nehmen auch weiterhin mit Uran betriebene Leichtwasserreaktoren (LWR) eine dominierende Stellung bei der nuklearen Energieerzeugung ein. Hierdurch ergibt sich eine relativ neue Situation von weltweit wachsenden Plutoniuminventaren, die hinsichtlich ihres Proliferationsrisikos ein Problem darstellen. Mit dem zum Teil stattfindenden Einsatz von bis zu 40 % Plutonium-Uran-Mischoxidbrennstoff (MOX-Brennstoff) in LWR kann auf Grund des Plutoniumaufbaus aus dem Uran nur eine ausgeglichene Plutoniumbilanz erreicht werden. Erst mit dem Einsatz von 100 % MOX-Kernen wäre es möglich, das eingesetzte Plutonium um rund 30 % zu reduzieren. Eine effizientere Reduktion der Plutoniummengen in LWR wäre nur mit uranfreien Brennstoffen möglich.

Für die Erstellung eines uranfreien Plutoniumbrennstoffs muß das Uran im herkömmlichen MOX sowohl neutronisch als auch materialtechnisch ersetzt werden. Dies erscheint mit einer Brennstoffzusammensetzung aus $1.02 \text{ g/cm}^3 \text{ PuO}_2$ mit $0.343 \text{ g/cm}^3 \text{ Er}_2\text{O}_3$ als abbrennbares Neutronengift in einer neutronisch inerten Matrix aus ZrO_2 möglich. Durch das ausgewählte abbrennbare Neutronengift wird nicht nur die anfängliche hohe Überschußreaktivität dieses uranfreien Brennstoffs reduziert, sondern auch ein günstiges Abbrandverhalten sowie adequate Reaktivitätskoeffizienten erzielt. ZrO_2 als inerte Matrix hat den Vorteil, im verwendeten Temperaturbereich leicht durch Y_2O_3 in eine einphasige kubisch feste Lösung stabilisiert zu werden, welche Er_2O_3 und PuO_2 sowie einen Großteil der Spaltprodukte und Actinide gleichermaßen aufnehmen kann und durch sie zusätzlich stabilisiert wird. Der kritische Punkt bezüglich der Einsetzbarkeit dieser Brennstoffzusammensetzung ist die niedrige Wärmeleitfähigkeit des ZrO_2 . Allerdings erscheint es möglich, durch die Zugabe von weiteren neutronisch inerten Stoffen wie Al_2O_3 oder Zr-Metall die Wärmeleitfähigkeit anzuheben, so daß dieser Brennstoff ohne Leistungsabsenkung in LWR eingesetzt werden kann.

Mit diesem Inert-Matrix-Brennstoff (IMF) wurden zwei uranfreie Gleichgewichtskerne entworfen und mit zwei MOX-Gleichgewichtskernen sowie einem existierenden UO_2 -Kern verglichen (IMF und MOX jeweils mit Reaktor- und mit Waffen-Plutonium¹). Dabei erschienen sowohl der IMF-Kern mit Reaktor-Plutonium als auch der MOX-Kern mit Waffen-Plutonium einsetzbar zu sein. Dagegen traten beim MOX-Kern mit Reaktor-Plutonium Probleme mit der Kontrollierbarkeit am Zyklusende auf, und beim IMF-Kern

¹Die Konzentrationen des Waffen-Plutoniums im Brennstoff sind kleiner als die des Reaktor-Plutoniums

mit Waffen-Plutonium ergab sich nur ein geringfügig negativer Dopplerkoeffizient. Die Plutoniumreduktion in den IMF-Kernen war rund 2.4 bis 3.3 mal so groß wie die in den MOX-Kernen, so daß in dem IMF-Kern mit Reaktor-Plutonium die Plutoniummenge entsprechend der Plutoniumproduktion aus 4.4 UO_2 -Kernen gleicher Leistung vernichtet werden kann.

Für den Übergang von Uran- zu IMF-Kernen ist es erforderlich, Mischkerne zu berücksichtigen. Um Leistungsspitzen in solchen heterogenen Anordnungen zu vermeiden, wurden IMF-Brennelemente für den Einsatz in solchen heterogenen Anordnungen ausgelegt. An Hand von Ganzreaktorrechnungen für Mischkerne aus UO_2 -Brennelementen mit diesen optimierten IMF-Brennelementen konnte gezeigt werden, daß der Einsatz von Teilbeladungen zu keinen Problemen führt, wie z. B. unzulässig hohe Leistungsspitzen in den IMF-Brennelementen.

Mittels Nachrechnungen von MOX-Experimenten im Forschungsreaktor PROTEUS des Paul Scherrer Instituts und von dieser Arbeit initiierten Reaktivitätsexperimenten mit abbrennbaren Giften in der kritischen Anlage CROCUS der EPFL konnten die zur Brennstoffauslegung sowie zur Konzeption der Kerne mit Plutoniumbrennstoffen eingesetzten Methoden und Daten für kalte Reaktorzustände ohne Abbrand partiell validiert werden. Die Richtigkeit der verwendeten Programme für Vollastzustände mit Abbrand wurde anhand eines international durchgeführten numerischen Benchmarks teilweise belegt. Die Übereinstimmung der meisten Resultate der verschiedenen Teilnehmer war zufriedenstellend. Allerdings zeigten sich signifikante Unterschiede bei der Berechnung des Übergangs von 0 zu 100 % Void. Diese Diskrepanzen sind hauptsächlich auf Unsicherheiten in den Querschnittsdaten von Zirkonium und Erbium im schnellen Energiebereich zurückzuführen. Es konnte gezeigt werden, daß der in dieser Arbeit verwendete Datensatz von genügend guter Qualität ist, und daß selbst unter pessimistischen Annahme der Voidkoeffizient für den Übergang von 0 zu 100 % Void eines IMF-Gleichgewichtskerns mit Reaktor-Plutonium stets negativ bleibt. Endgültigen Aufschluß darüber, welche Daten in diesem Zusammenhang die besten sind, können letztendlich nur kritische Experimente mit uranfreien Brennstoffen liefern.

Abstract

Due to economical reasons and lack of public acceptance, the nuclear fuel cycle is not effectively closed today. Consequently, UO_2 -fuelled light water reactors (LWRs) continue to dominate the nuclear energy scene. Thus, a relatively novel situation is currently emerging, with plutonium stocks increasing far beyond projected needs and becoming of considerable concern from a non-proliferation viewpoint. The “self-generated” mode of plutonium recycle in LWRs, involving the use of PuO_2/UO_2 (mixed oxide, or MOX) assemblies for 30 to 40 % of the core loading, does not offer a real solution in this context. The reason is that in such cores nearly the same amount of new plutonium is generated as is consumed. Designs for 100 % MOX cores are being investigated, with which reduction factors of approximately 30 % of the initial plutonium mass would be achievable. A more effective way to incinerate plutonium would be to use uranium-free fuel, thus avoiding the production of any new plutonium.

For obtaining a uranium-free plutonium fuel, one needs to find a substitute for the uranium in MOX - from both neutronics and material-technological viewpoints. A mixture of $1.02 \text{ g/cm}^3 \text{ PuO}_2$ and $0.343 \text{ g/cm}^3 \text{ Er}_2\text{O}_3$ as burnable poison in a neutronically inert matrix of ZrO_2 seems to provide a suitable candidate for such a fuel. The burnable poison chosen not only serves to reduce the reactivity excess at beginning of life, but also provides a favourable burnup behaviour and adequate reactivity coefficient values. Zirconium oxide is a promising material as inert matrix because it can be stabilised in the temperature range of interest with the help of Y_2O_3 into a single-phase solid solution with a stable cubic structure. Er_2O_3 , fission products as well as actinides like plutonium can be easily introduced into the solid solution, further enhancing the material's chemical stability. Its thermal conductivity is, however, lower than that of UO_2 or MOX. Additional design measures might therefore be necessary to limit the maximum fuel temperature. Adding Al_2O_3 or Zr-metal, for example, would increase the thermal conductivity and allow the use of such a fuel in LWRs without incurring power reduction penalties.

Two different types of plutonium-burning PWR cores have currently been compared, viz. those employing 100 % MOX and 100 % inert-matrix fuel (IMF), respectively. In each case, reactor-grade (RG) and weapons-grade (WG) plutonium² were considered separately. The characteristics of the four different cores have been studied on the basis of 3D-calculations for an equilibrium cycle, a real-life UO_2 -fuelled core being considered as reference for comparison purposes. From the viewpoint of safety characteristics, it seems quite feasible to employ a 100 % IMF core with RG-Pu or a 100 % MOX core with WG-Pu in a standard PWR. The reactivity balance in going from hot-full power conditions to

²The plutonium concentrations in the fuels are lower for WG-Pu than for RG-Pu

hot-zero power conditions indicates that the 100 % MOX core with RG-Pu would need more effective control rods. In the case of IMF with WG-Pu, it seems that the small Doppler coefficient could lead to problems. The plutonium reduction factors for the IMF cores are about 2.4 to 3.3 times larger than those for the MOX cores. Thus, it would be possible to incinerate an amount of plutonium equivalent to that produced by ~ 4.4 UO₂-fuelled LWRs in a single IMF-RG reactor of the same power.

A further step has been the consideration of real-life situations corresponding to transition configurations with mixed UO₂ and IMF loadings. An IMF fuel assembly has been designed for being employed in such heterogeneous PWR cores. Full-core calculations indicate that mixed UO₂ and IMF loadings are indeed possible with fuel management schemes compatible with current operational practice and requirements.

A validation basis for the currently employed calculational methods/data has been provided by MOX experiments performed earlier in the research reactor PROTEUS at the Paul Scherrer Institute, a series of reactivity worth measurements for burnable poisons carried out in the reference LWR-lattice configuration of the CROCUS reactor at EPFL, as well as results obtained in the course of an international numerical benchmark exercise. Although satisfactory agreement was obtained for most of the results reported by the different participants in the latter exercise, significant differences have been noted between calculated values of the void coefficient for large void-fractions. These discrepancies result largely from differences in the fast neutron data employed for zirconium and erbium. It has been shown that the data library used for the current analyses is of sufficiently high quality and that, even under pessimistic assumptions, the void coefficient for large void-fractions would always remain negative during the equilibrium cycle of a 100 % IMF core with RG-Pu. Ultimately, it is only through integral experiments employing uranium-free fuel that one can resolve uncertainties linked to the basic data.

Inhaltsverzeichnis

0	Zeichenerklärung	V
1	Einleitung	1
2	Plutoniumverbrennung in Leichtwasserreaktoren	5
2.1	Einsatz von Mischoxidbrennstoff zur Plutoniumverbrennung	6
2.2	Uranfreie Plutoniumbrennstoffe	10
2.2.1	Verwendung von „Plutonium Rock-Like Fuel“ in LWR	10
2.2.2	Verwendung von heterogenen Brennelementen	11
2.2.3	Teilbeladungen mit uranfreien Brennelementen in Urankernen	11
2.2.4	Uranfreie Brennstoffe in zukünftigen Reaktoren	12
2.3	Resümee zur Plutoniumverbrennung in LWR	12
3	Verwendete Methoden und Daten	15
3.1	Der Prozessiercode ETOBOX	16
3.2	Der Zell- und 2D-Transportcode BOXER	18
3.2.1	Resonanzrechnung mit Punktdaten	20
3.2.1.1	Erstellung der verwendeten Punktdaten	20
3.2.1.2	Berechnung des Wichtungsspektrums im Resonanzgebiet	21
3.2.2	Abbrandrechnung	23
3.2.2.1	Lösung der Abbrandgleichung	24
3.3	Darstellung der Gruppenkonstanten mit CORCOD	26
3.4	Der dreidimensionale LWR-Simulationscode SILWER	27

4	Brennstoffauslegung	31
4.1	Neutronenphysikalische Brennstoffauslegung	31
4.1.1	Geometrie und Material der Zell- und Brennelementrechnungen . .	31
4.1.2	Abbrandverhalten uranfreier Pu-Brennstoffe	34
4.1.3	Reaktivitätskoeffizienten uranfreier Pu-Brennstoffe	35
4.1.4	Regel- und Kontrollparameter uranfreier Brennstoffe	38
4.2	Materialtechnische Aspekte	43
4.2.1	Matrixwahl bezüglich neutronischer Inertheit	44
4.2.2	Matrixwahl bezüglich chemischer Inertheit und Bestrahlungsstabilität	45
4.2.3	Aspekte zur Wärmeleitfähigkeit	47
4.2.4	Endlagerfähigkeit	50
4.3	Resümee der Brennstoffauslegung	52
5	Konzeption eines uranfreien Pu-Gleichgewichtskerns	55
5.1	Geometrie und Material	55
5.2	Berechnung der Gleichgewichtskerne	58
5.2.1	Berechnung der Gruppenkonstanten	58
5.2.2	Beladeplan-Optimierung	60
5.3	Vergleich von Pu-Kernen mit einem existierenden LWR-Kern	64
5.3.1	Abbrandverhalten und Pu-Abbau	64
5.3.2	Toxizitätsvergleich	67
5.3.3	Leistungsverteilungen	69
5.3.4	Reaktivitätskoeffizienten	70
5.3.4.1	Brennstoff-Temperatur-Rückkopplung	71

5.3.4.2	Moderatortemperaturkoeffizient	73
5.3.5	Abschaltmarge	75
5.3.6	Statische Betrachtung von Transientenverhalten	76
5.3.6.1	Kontrollstabauswurf	77
5.3.6.2	Frischdampfleitungsbruch	78
5.4	Resümee der Untersuchung von Pu-Vollkernen in LWR	79
6	Heterogene Kernanordnungen	83
6.1	Brennelementauslegung	83
6.2	UO ₂ -Kern mit optimierten IMF-Brennelementen	86
6.2.1	Bereitstellung der Gruppenkonstanten	87
6.2.2	Teilbeladungen mit IMF-Brennelementen	87
7	Programmvalidierung	91
7.1	BOXER-Validierung für Plutoniumsysteme	91
7.1.1	Aufbau der PROTEUS-FDWR Experimente	92
7.1.2	Übertragbarkeit der PROTEUS-Messungen auf IMF-Systeme	93
7.1.3	Korrekturen für die PROTEUS-Nachrechnungen	97
7.1.3.1	Single-Zone-Faktoren	98
7.1.3.2	Heterogenitätseffekte in Kern 18	99
7.1.4	Ergebnisse der PROTEUS-Nachrechnungen	99
7.2	Reaktivitäts-Messungen im CROCUS-Reaktor	101
7.2.1	Übertragbarkeit der CROCUS-Messungen auf IMF-Systeme	102
7.2.2	Herstellung von Absorberpellets	105
7.2.3	Ergebnisse der Reaktivitätsmessungen	107

7.3	Inert-Matrix-Brennstoff-Benchmark	110
7.3.1	Benchmark-Beschreibung und Ergebnisse	110
7.3.2	Zerlegung der Koeffizienten	114
7.3.3	Datenstudien am Beispiel von Voidkoeffizienten	116
7.4	Resümee der Validierung	123
8	Zusammenfassung	127
9	Ausblick	133
10	Literaturverzeichnis	135
A	Danksagung	151
B	Lebenslauf	153

0 Zeichenerklärung

Häufig verwendete Abkürzungen

Abkürzung	Bedeutung	Ursprung
BE	Brennelement	—
BOC	Zyklusanfang	Beginning of Cycle
BOL	Abbrandbeginn	Beginning of Life
BP	abbrennbares Neutronengift	Burnable Poison
BTK	Brennstofftemperaturkoeffizient	—
CEA	Commissariat à l'Énergie Atomique	—
DK	Dopplerkoeffizient	—
DNB	Sicherheit gegen Filmsieden	Departure from Nucleate Boiling
DWR	Druckwasserreaktor	—
ECN	Energieonderzoek Centrum Nederland	—
EOC	Zyklusende	End of Cycle
EOL	Abbrandende	End of Life
EPFL	Eidg. Tech. Hochschule Lausanne	École Polytech. Féd. de Lausanne
HA	höhere Actinide	—
HFP	heiße Vollastbedingungen	Hot Full Power
HZP	heiße Nullastbedingungen	Hot Zero Power
IM	inerte Matrix	—
IMF	Inert-Matrix-Brennstoff	Inert Matrix Fuel
JAERI	Japan Atomic Energy Research Institute	—
KE	Kontrollelement	—
KSW	Kontrollstabwerte	—
LWR	Leichtwasserreaktor	—
MOL	Abbrandmitte	Middle of Life
MTK	Moderator temperaturkoeffizient	—
MOX	Mischoxid	—
pcm	10^{-5}	pour cent mille
POLIMI	Politechnische Hochschule von Mailand	—
PSI	Paul Scherrer Institut	—

Häufig verwendete Abkürzungen

Abkürzung	Bedeutung	Ursprung
RGP _u	Reaktorplutonium	Reactor Grade Plutonium
SWR	Siedewasserreaktor	—
SZF	Single-Zone-Faktor	—
UDK	uniformer Dopplerkoeffizient	—
VDK	verteilter Dopplerkoeffizient	—
VK	Voidkoeffizient	—
VLT	Vollasttage	—
WGP _u	Waffenplutonium	Weapon Grade Plutonium

Formelzeichen

Zeichen	Bedeutung	Einheit
A	Absorptionsrate	cm ⁻³ · s ⁻¹
C ^x	Reaktivitätskoeffizient	pcm/Δx
F	Streuquelle	s ⁻¹
GP	Anteil	w%
M	Molgewicht	g·Mol ⁻¹
N	Teilchendichte	n·cm ⁻³
P	Produktionsrate	cm ⁻³ · s ⁻¹
P ^{i,j}	Stoßwahrscheinlichkeit	—
Q	Wärmemenge	J
Q ⁱ	Quellstärke der Zone i	s ⁻¹
T	Temperatur	°C oder K
V	Volumen	cm ³
Y	Spaltausbeute	—
c _p	spezifische Wärme bei konstantem Druck	J·cm ⁻³ ·K ⁻¹
k _∞	Multiplikationsfaktor des unendlichen Gitters	—
k _{eff}	effektiver Multiplikationsfaktor	—
u	Lethargie	—

Formelzeichen

Zeichen	Bedeutung	Einheit
Δ	Differenz	—
Δx	Void- oder Temperaturänderung	% Void oder $^{\circ}\text{C}$
λ^k	Zerfallskonstante des Nuklids k	s^{-1}
Φ	Neutronenflußdichte	$\text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$
ψ	Quelldichte	$\text{cm}^{-3} \cdot \text{s}^{-1}$
ρ	Reaktivität	—
ρ	Dichte	$\text{g} \cdot \text{cm}^{-3}$
Σ	makroskopischer Wirkungsquerschnitt	cm^{-1}
σ	mikroskopischer Wirkungsquerschnitt	cm^2
τ_x^k	Rate des Nuklids k bezüglich der Reaktion x	$\text{cm}^{-3} \cdot \text{s}^{-1}$

Indizes

Index	Bedeutung
abs	absolut
<i>BP</i>	abbrennbares Gift
d	Verdünnungsquerschnitt
eq	äquivalenter Querschnitt
f	Spaltung
g	Energiegruppe
i,j	Materialzonen
n	Lethargiepunkt
<i>Pellet</i>	bezüglich des Pellets
SM	Schwermetall
s	Streuung
t	total
th	thermisch
x	Void oder Temperatur
xy	radial
z	axial

1 Einleitung

Nicht nur in Europa, sondern auch in anderen Teilen der Welt, wie in den USA und in Asien [1], nimmt die Kernenergie einen wichtigen Platz in der Energieversorgung ein bzw. wächst ihr Anteil an der Stromproduktion [2, 3]. So beträgt z. B. der Anteil der Stromproduktion aus Kernkraftwerken in Frankreich 76%, in Japan 31% und in der Schweiz rund 38%, [2, 4, 5]. Allerdings verstärkt sich insbesondere in Europa seit Jahren der emotionale Widerstand gegen eine weitergehende Nutzung der nuklearen Energieressourcen. Reaktorunfälle in Harrisburg und Tschernobyl haben wesentlich zu dieser Skepsis gegenüber der Kernenergie beigetragen. Auf Grund dieser Situation aber auch aus wirtschaftlichen Gegebenheiten verzögert sich eine effektive Schließung des Brennstoffkreislaufes mit dem für die Energieversorgung langfristig notwendigen kommerziellen Einsatz von Brutreaktoren. So wurden in den letzten Jahren Vorhaben, wie z. B. in Deutschland der Schnelle Brüter in Kalkar oder die Wiederaufbereitungsanlage bei Wackersdorf, gestoppt und mußten aufgegeben werden.

Leichtwasserreaktoren (LWR) nehmen somit auch weiterhin eine dominierende Stellung bei der nuklearen Energieerzeugung ein. Allerdings produzieren LWR, welche zum überwiegenden Teil mit angereichertem Uran betrieben werden, laufend Plutonium. Hieraus resultiert eine zunehmend große Menge an Plutonium, die nicht, wie ursprünglich geplant, zum Einsatz in Brutreaktoren kommt. Bis dieser letzte, für die langfristige Nutzung der Kernenergie unerläßliche Schritt durchgeführt werden kann, bildet die weitere Kumulation von Plutonium ein ernsthaftes weltweites Problem aus Sicht der Kontrolle und Regulierung von Spaltstoffinventaren.

Studien, wie die des Stockholm International Peace Research Instituts [6] und des Uraniuminstituts in London [7], geben an, daß Ende 1990 die weltweit vorhandene Menge an Plutonium 910 ± 140 Tonnen betrug. Davon kamen rund 653 t Plutonium in abgebranntem Brennstoff und ca. 257 t in Kernwaffen vor. Die Entwicklung des Plutonium-Inventars aus zivil genutzten Anlagen bis zum Jahr 2010 ist in Tabelle 1.1 angegeben.

Tabelle 1.1: Weltweites Inventar von abgebranntem Uran-Brennstoff und damit erzeugtes Plutonium bis zum Jahr 2010

	Ende 1990 [t]	Ende 2000 [t]	Ende 2010 [t]
Abgebrannter Brennstoff	114800	222000	320000
entladenes Plutonium	653	1390	2100
davon separiert	122	≤ 310	≤ 550

Mit der Ratifizierung von START I und II, Strategic Arms Reduction Treaties, fallen sowohl in Rußland als auch in den USA jeweils 50 bis 100 t Waffenplutonium zur Vernichtung an [8]. Neben dem Waffenplutonium werden zusätzlich rund 1500 bis 2000 t hochangereichertes Uran überflüssig. Allein mit diesem Spaltmaterial könnten alle Kernkraftwerke der Welt für fünf bis sieben Jahre versorgt werden [9]. Durch die Vernichtung dieser Brennstoffe wäre eine erneute militärische Verwendung durch die Supermächte, die Gefährdung der Umwelt sowie die Verbreitung und der Mißbrauch durch terroristische Gruppen oder andere Staaten auszuschließen. Neben der Verglasung oder der Vitrifikation des waffengrädigen Plutoniums (WGPu) zusammen mit Spaltprodukten, wie es die USA bevorzugen, wird in [9, 10] vorgeschlagen, dieses Plutonium in Reaktoren einzusetzen, um die darin enthaltene Energie zu nutzen. Neben dem Energiegewinn würden hierdurch auch die langfristigen Proliferationsrisiken gesenkt, da die Spaltung den einzigen Weg der Vernichtung des Plutoniums darstellt. Für das hochangereicherte Uran bietet dagegen die „Abreicherung“ mit ^{238}U zu Reaktoruran eine wirksame Abbaumöglichkeit. Ähnlich wie beim WGPu, besteht auch für Plutonium aus abgebranntem Brennstoff aus Kernreaktoren, hier als RGPu bezeichnet, die Gefahr der Proliferation und somit des Mißbrauchs als Waffenmaterial. Zudem stellt Plutonium - RGPu wie auch WGPu - einen Großteil der Radiotoxizität kerntechnischer Abfälle dar [11]. Die Motivation, Plutonium in Reaktoren einzusetzen, begründet sich somit in der Nutzung des Energieinhalts des Plutoniums, der Verminderung von radiotoxischen Abfällen und der Reduktion des Proliferationsrisikos.

Die Schweiz verfügt über fünf KKW mit einer elektrischen Leistung von rund drei GWe. Sie trägt damit zur Abfallerzeugung jährlich rund 81 Tonnen abgebranntem Brennstoff - darin ca. 0.8 Tonnen Plutonium - bei. Die schweizerischen Energieversorgungsunternehmen (EVU) verfolgen die Strategie, das Plutoniums in den KKW wiederzuverwenden. Hierfür wurden mit British Nuclear Fuels plc. (BNFL) und der Compagnie Générale des Matières Nucléaires (COGEMA) Aufarbeitungsverträge abgeschlossen. Die Gründe für die Wiederverwendung des Plutoniums sind in erster Linie wirtschaftlicher Natur, da sich unter anderem durch die Rezyklierung das Abfallvolumen stark reduzieren läßt und somit weniger Volumen für Zwischen- und Endlagerung zur Verfügung gestellt werden muß [12].

Die Plutoniumrückführung in Druckwasser- (DWR) wie auch in Siedewasserreaktoren (SWR), erfolgt in Form von Mischoxid- (MOX-) Brennelementen. Der Anteil der MOX-Brennelemente an der Gesamtbeladung der LWR ist dabei aus Gründen der Reaktorsicherheit auf 30 bis 40% beschränkt. Hiermit wird im Kern ein Plutoniumgleichgewicht

erreicht, da über Neutroneneinfänge im vorhandenen ^{238}U und anschließende β^- -Zerfälle ungefähr so viel neues Plutonium erzeugt wie in den MOX-Brennelementen vernichtet wird. Somit trägt diese Vorgehensweise nur zu einer Stabilisierung, nicht aber zu einer Reduktion der Plutoniumüberschüsse bei.

Ein weiterer Schritt in Richtung Plutoniumabbau wäre der Einsatz von 100% MOX-Kernen, wie z. B. in [13, 14, 15, 16] beschrieben. Die Verringerung der Plutoniummenge ist hierbei allerdings relativ gering. Über den gesamten Abbrandzeitraum beträgt sie rund 1/3 des eingesetzten Plutoniums. Der Grund liegt, wie schon erwähnt, in der Pu-Produktion mittels Neutroneneinfang in ^{238}U , welches rund 90% der MOX-Brennstoffmasse ausmacht. Eine größere Plutoniumreduktion wäre nur mittels mehrfacher Wiederaufarbeitung möglich. Eine mehrfache Rezyklierung mit anschließend erneutem Einsatz des Plutoniums in LWR ist allerdings aus technologischen und reaktorphysikalischen Gründen schwierig.

Wesentlich effizienter wäre es dagegen, die Plutoniumverbrennung mit Hilfe von uranfreien Brennstoffen durchzuführen. Um eine Alternative gegenüber dem heute verwendeten MOX darstellen zu können, sind folgende Anforderungen zu berücksichtigen:

- Maximierung des Plutoniumabbaus
- Einsatzzeiten, die nach dem Stand der Technik mit Uran- oder MOX-Brennstoff in heutigen Reaktoren erreicht werden
- keine Modifikation der Reaktoranlage
- Einhaltung der vorgeschriebenen Sicherheitsanforderungen
- Möglichkeit der direkten Endlagerung

Die Intention der vorliegenden Arbeit ist die Konzeption eines uranfreien Reaktorkerns für einen bestehenden DWR. In einem ersten Schritt werden Ersatzmaterialien zur Substitution des Urans gesucht, um damit einen in LWR einsetzbaren Plutoniumbrennstoff zu konzipieren. Mit diesem Brennstoff ist ein Gleichgewichtskern für ein existierendes Kernkraftwerk zu entwerfen, der den gängigen Sicherheitskriterien entspricht. Realistischerweise wird nicht als erstes ein kompletter Kern mit einem solchen neuen Brennstoff zum Einsatz kommen. Aus diesem Grund werden auch heterogene Kernanordnungen, bestehend aus Uran- und uranfreien Pu-Brennelementen, betrachtet. Hierfür müssen die

uranfreien Pu-Brennelemente so optimiert werden, daß ein problemloser Einsatz in einer Uranumgebung gewährleistet werden kann.

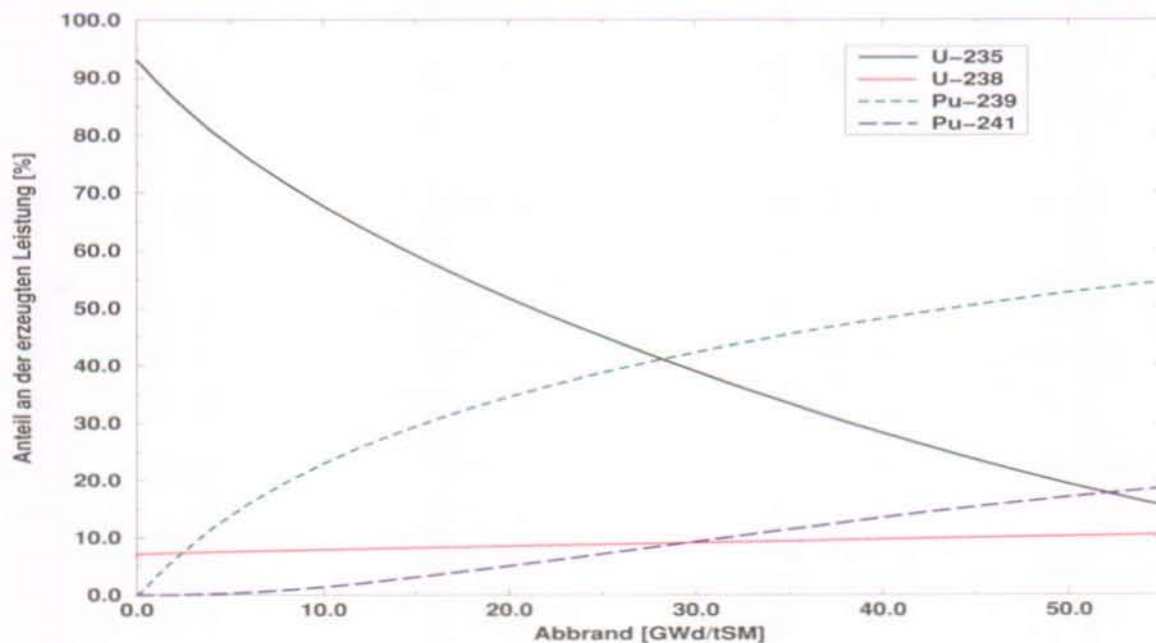
Neben den neutronenphysikalischen Aspekten sind bei der Brennstoffauslegung auch materialtechnische Gesichtspunkte zu berücksichtigen. Dies erfolgte durch eine Zusammenarbeit mit dem Labor für Werkstoffe und Verfahren am Paul Scherrer Institut (PSI). Im Rahmen dieser Kooperation wurde sichergestellt, daß der gemäß den neutronenphysikalischen Kriterien ausgelegte Brennstoff auch herstellbar sowie im Reaktor materialtechnisch einsetzbar und endlagerfähig ist. Hierdurch wurde die Vorarbeit geleistet, um den neuentwickelten Brennstoff im Anschluß an diese theoretischen Betrachtungen in Bestrahlungsexperimenten einsetzen und testen zu können.

Für die reaktorphysikalischen Analysen wurde das am PSI entwickelte und für die Berechnung von LWR getestete Programmsystem ELCOS, EIR-LWR-Codesystem, verwendet [18]. Da in der vorliegenden Arbeit ausschließlich LWR betrachtet werden, wäre grundsätzlich von der Richtigkeit der Ergebnisse auszugehen [16]. Allerdings kommen teilweise völlig neue Materialien bzw. Materialzusammensetzungen zum Einsatz. Um die Richtigkeit der Rechenergebnisse zu gewährleisten, war es somit im Rahmen der vorliegenden Arbeit erforderlich, die verwendeten Daten und Methoden, soweit dies möglich ist, anhand von Experimenten und numerischen Benchmarks für diese neuen Brennstoffe zu validieren.

2 Plutoniumverbrennung in Leichtwasserreaktoren

Von den verschiedenen Reaktortypen, die seit der Entdeckung der Kernspaltung entworfen wurden, haben sich die LWR in Form von Druck- und Siedewasserreaktoren, DWR und SWR, durchgesetzt und dominieren heute in der nuklearen Energieszene. Fast allen Reaktoren gemeinsam ist die Verwendung von Uran mit einem auf 3 bis 4% erhöhten Anteil an dem Isotop ^{235}U , welches von den in LWR vorherrschenden thermischen Neutronen leicht gespalten werden kann. Der restliche Brennstoffanteil besteht aus ^{238}U , das nicht von thermischen Neutronen gespalten werden kann. Allerdings entsteht aus ^{238}U über Neutroneneinfang und β^- -Zerfälle ^{239}Pu , welches wiederum von thermischen Neutronen sehr gut spaltbar ist. Bedingt durch diese Prozesse wird ein Großteil der Energie, auch in einem anfänglich reinem Uranbrennstoff, durch Plutonium erzeugt, so wie in Abbildung 2.1, als Funktion des Abbrandes dargestellt.

Abbildung 2.1: Zeitliche Entwicklung der Leistungsbeiträge verschiedener Isotope in einem reinen Uran-Brennstoff mit einer Anreicherung von 3.5 w% ^{235}U



Innerhalb der gesamten Einsatzzeit wird zwar der größte Teil des spaltbaren Urans, nicht aber des erbrüteten Plutoniums, gespalten. Somit enthält der aus einem Reaktor entladene Brennstoff, je nach Abbrand, rund 0.8 bis 1.2 w% Plutonium mit einem Anteil an spaltbaren Plutonium-Isotopen von ca. 75 bis 60 w%. Trotz dieser Tatsache nutzt ein

im offenen Brennstoffkreislauf betriebener LWR nur etwa 0.6% des eingesetzten Natururans. Bei einem durch Wiederaufbereitung und Rezyklierung geschlossenen Kreislauf würde sich dieser Wert auf rund 1.0 bis 1.2% erhöhen. Eine wesentlich effizientere Ausnutzung des Primärenergieträgers Uran kann nur durch eine Erhöhung der Konversionsrate C , dem Verhältnis von Spaltstoffherzeugung zu Spaltstoffverbrauch, erzielt werden. Naturgemäß sind Konversionsraten $C > 1$ mit schnellen Brutreaktoren zu erzielen, wobei die Uranausnutzung, durch Umwandlung von ^{238}U in Plutonium, allein durch die Verluste im Brennstoffkreislauf auf rund 80 % begrenzt ist [19]. Aus diesem Grund wurde relativ früh an die Nutzung des Plutoniums zur Energieerzeugung gedacht. Allerdings verzögert sich, wie eingangs schon erwähnt, aus politischen aber z. Z. auch aus wirtschaftlichen Gründen der langfristig notwendige Einsatz der Brütertechnologie und die damit verbundene effektive Schließung des Brennstoffkreislaufs. Damit kommt es z. Z. zu einer weltweiten und unerwünschten Kumulation von Plutonium.

Innerhalb der folgenden Kapitel werden die im Augenblick gängigen Methoden des Plutoniumsinsatzes in LWR der Verwendung von uranfreien Brennstoffen gegenüber gestellt. Es sei erwähnt, daß hier die in verschiedenen Ländern vorgenommenen Untersuchungen zur Plutonium- und Actinidenverbrennung in schnellen Reaktoren [20] oder mit Beschleunigern getriebenen Systemen [21] nicht diskutiert werden, da der Anteil dieser Systeme an der nuklearen Stromerzeugung im Augenblick verschwindend klein ist bzw. nicht existiert.

2.1 Einsatz von Mischoxidbrennstoff zur Plutoniumverbrennung

Der erste Mischoxid(MOX)-Einsatz in LWR reicht auf das Jahr 1966 zurück, als erstmalig Pu-haltige Brennelemente (BE) im Versuchsaatomkraftwerk Kahl eingesetzt wurden. Seit diesem Zeitpunkt kamen MOX-BE bereits in einer Vielzahl von Siede- und Druckwasserreaktoren zum Einsatz. Auf Grund von sicherheitstechnischen Aspekten wurden allerdings bisher nur MOX-Teilbeladungen eingesetzt. Ursache hierfür sind die großen thermischen Absorptionsquerschnitte des Plutoniums. Hierdurch kommt es zu einer Verhärtung des Neutronenspektrums mit steigendem Plutoniumgehalt im Brennstoff, so wie in Abbildung 2.2 dargestellt.

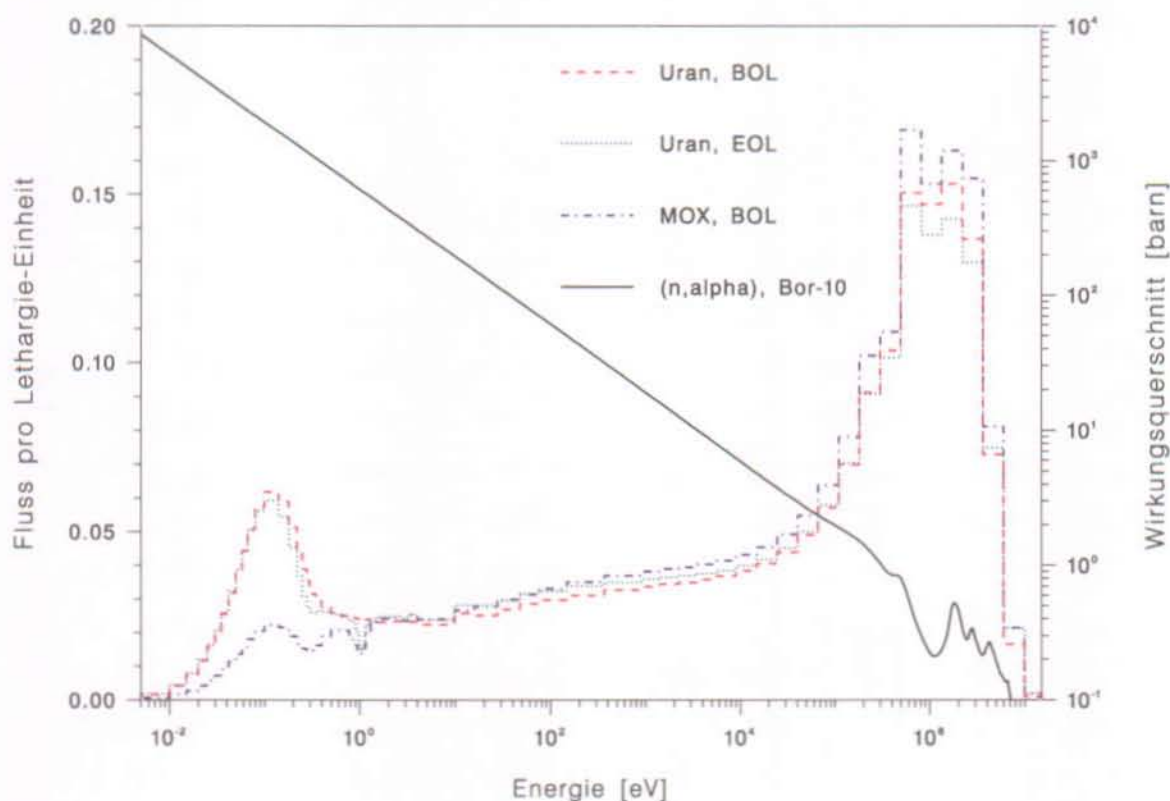
Der Einfluß der großen Einfangsresonanz von ^{240}Pu bei einer Energie von 1.0 eV ist deutlich zu erkennen; er macht sich schon in einem Uranbrennstoff zum Abbrandende (EOL) stark bemerkbar. Die eigentliche Verhärtung des Neutronenspektrums mit Auswirkungen auf die neutronenphysikalischen Eigenschaften des Reaktors ergibt sich durch den erhöhten Pu-Gehalt im MOX und den damit verbundenen höheren Anteil von ^{239}Pu am

Brennstoff. Hierdurch wird der thermische Neutronenfluß, im Bereich zwischen 0.01 und 0.5 eV, um mehr als einen Faktor drei verkleinert. Damit reduziert sich die Wirksamkeit der in Reaktoren eingesetzten Neutronengifte, für die der Wirkungsquerschnittsverlauf am Beispiel von ^{10}B in Abbildung 2.2 dargestellt ist.

Abbildung 2.2: Energieabhängige Neutronenflußverteilungen, linke Ordinate, in einem typischen LWR für Brennstoffe mit verschiedenen Plutoniumdichten:

- frischer Uranbrennstoff mit 0 w% Pu,
- abgebrannter Uranbrennstoff mit ~ 1.2 w% Pu und
- frischer MOX-Brennstoff mit 6.1 w% Pu.

Der (n,α) -Querschnitt von ^{10}B , rechte Ordinate, ist aufgetragen zur Veranschaulichung der niedrigeren Wirksamkeit thermischer Absorber beim Einsatz von Plutonium



Neben der geringeren Wirksamkeit der Kontrollstäbe und des Bors werden auch die Reaktivitäts-Koeffizienten durch den Einsatz von MOX beeinflusst. Durch das härtere Neutronspektrum ist der Brennstoff beim Einsatz in herkömmlichen LWR stärker untermoderiert. Als Folge davon sind Void- und Moderator-Temperaturkoeffizienten negativer. Die

geraden Plutoniumisotope mit ihren großen Resonanzen bei 1.0 eV für ^{240}Pu und 2.7 eV für ^{242}Pu erhöhen zusätzlich den Dopplerkoeffizienten. Dies sind z. T. die Gründe dafür, daß bis jetzt nur MOX-Teilbeladungen und keine 100%-MOX-Kerne eingesetzt werden konnten, da z.B. die Abschaltbarkeit eines DWR-Kernes am Zyklusende nicht gewährleistet, oder die anfängliche Borkonzentration in einem solchen Kern zu groß wäre.

Allerdings gibt es Bestrebungen, diese Nachteile durch Änderungen des BE-Designs oder Umbauten am Reaktor zu beseitigen bzw. zu kompensieren. So wird in [14, 15] vorgeschlagen, das Moderationsverhältnis durch den Einsatz von dünneren Brennstäben zu erhöhen, wodurch die spektralen Effekte reduziert bzw. kompensiert würden. Hierdurch ergibt sich eine Vergrößerung der Wärmestromdichte q'' bei konstanter Stabileistung q' und vorgegebenem Brennstabradius r , da laut Definition $q' = 2\pi r q''$ ist. Die Wärmestromdichte ist aber begrenzt, um Sicherheit gegen Filmsieden zu gewährleisten, siehe hierzu auch [17]. Um dennoch eine äquivalente Sicherheitsmarge gegen Filmsieden zu erhalten, ist der Einbau von weiteren Abstandshaltern mit Mischfahnen vorgesehen. Diese Maßnahmen alleine reichen allerdings nicht aus, um einen sicheren Reaktorbetrieb garantieren zu können. So müßte die Leistung auf 90% abgesenkt werden, um eine genügend große Sicherheit gegen Filmsieden zu gewährleisten.

Ein anderer Weg wurde in [16] besprochen. Hier ist die zusätzliche Verwendung von Kontrollstäben vorgesehen. Damit wäre es möglich, einen Reaktor auch mit einer 100% MOX-Beladung am Zyklusende (EOC) mit genügend großen Sicherheitsreserven abzuschalten. Eine ähnliche Strategie wird mit dem System 80^{TM} -Reaktor verfolgt [22]. Dieser Reaktor stellt wohl weltweit das einzige System dar, das für den Einsatz von 100% MOX-Kernen ausgelegt wurde. Allerdings ist bis heute, wohl auch auf Grund der seit der Carter-Ära negativen Einstellung der USA gegenüber einer Pu-Verwendung in KKW [9], im System 80^{TM} -Reaktor noch kein MOX-Brennstoff zum Einsatz gekommen. Beide Konzepte, [16] und [22], werden in [2] verglichen. Gleichzeitig werden in dieser Arbeit weitere Punkte aufgelistet, welche einen Einfluß beim Übergang zu 100% MOX-Kernen haben, die jedoch hier nicht weiter erläutert werden sollen. Allgemein kann gesagt werden, daß der Einsatz von 100% MOX-Kernen in heute bestehenden Reaktoren, mit Ausnahme des System 80^{TM} -Reaktors, nicht ohne größere Änderungen am jeweiligen Reaktor und/oder Leistungsabsenkungen und damit in der Regel auch nicht ohne neue Genehmigungsverfahren möglich ist.

Im Augenblick werden in einer Reihe von SWR und DWR MOX-Teilbeladungen eingesetzt [24]. Dabei weisen die Betreiberwünsche den Trend zu höherem Pu-Gehalt im MOX-Brennelement, der Erhöhung des MOX-Anteils im Reaktor und die Vergrößerung des

Pu-Verbrauchs durch erhöhten Abbrand auf. Soweit dies möglich ist, sollte auch der Einsatz von waffentauglichem Plutonium, welches als Folge der Abrüstungsverträge anfällt, ermöglicht werden [25].

Offene Fragen im Zusammenhang mit MOX-Teilbeladungen ergeben sich auf Grund eines härteren Neutronenspektrums in MOX- als in UOX-BE. Somit können MOX-BE nicht ohne weiteres neben UOX-BE eingesetzt werden. Dies würde auf Grund des größeren thermischen Flußes in den UOX-BE zu Leistungsspitzen in benachbarten MOX-BE führen. Demzufolge und um größere MOX-Mengen einsetzen zu können, wird die BE-Auslegung sowohl bezüglich der Leistungsverteilung durch verschiedene Anreicherungs-zonen innerhalb des Brennelements, als auch der Sicherheitsparameter, z.B. über eine Verbesserung der Moderation durch Wasserkanäle, optimiert [24, 26]. Einsatzstudien solch optimierter Brennelemente zeigen, daß bis zu einem MOX-BE-Anteil von 54% keine signifikanten Verschlechterungen der sicherheitsrelevanten Parameter auftreten.

Ein weiterer wichtiger Punkt beim Reaktorbetrieb sind die Brennstoffkosten. Durch Abbrandsteigerungen lassen sich diese Ausgaben senken, insbesondere wegen der geringeren Beiträge zur Entsorgung [12, 27]. Aus diesem Grund geht die Entwicklung hin zu höheren Abbränden, wodurch sich die Pu-Qualität im abgebrannten Brennstoff verschlechtert. Durch den längeren Einsatz im Reaktor erniedrigt sich der Anteil der spaltbaren Plutoniumisotope, so daß die Plutoniummenge in den MOX-BE erhöht werden muß, um gleiche Standzeiten zu erreichen. Wie in [12] beschrieben, nimmt der Kostenvorteil beim Einsatz von MOX mit steigendem Abbrand stärker zu als bei Uran, so daß ab Abbränden von 40 bis 45 MWd/kgU der Einsatz von MOX kostengünstiger ist als der von Uran-Brennstoff. Damit dürften auch in Zukunft die Bestrebungen der KKW-Betreiber in die Richtung gehen, aufgearbeitetes Plutonium in ihren Reaktoren einzusetzen, wobei die Einsetzbarkeit über die Optimierung des Brennelementdesigns und des Kernmanagements erfolgt.

Zum Einsatz von Plutonium als MOX-Brennstoff wird es wohl in nächster Zukunft vermehrt mit Teilbeladungen in LWR, nicht aber in Form von 100% Beladungen kommen. Die Aufwendungen bezüglich Umbauten und Genehmigungsverfahren, um MOX-Vollkerne einsetzen zu können, wären zu groß. Solche Investitionen würden sich bei den z. Z. angebotenen Mengen an billigem Uran [3, 28] nicht rechnen.

Dies bedeutet aber, daß es im Augenblick keine Möglichkeit gibt, die Plutoniummengen effektiv und kostengünstig in LWR zu reduzieren. Durch den Aufbau von Plutonium im UOX-Brennstoff beim Einsatz von Teil-MOX-Beladungen stellt sich in diesen Kernen ein

Plutoniumgleichgewicht ein. Erst mit dem Einsatz von 100% MOX-Kernen würde sich eine ca. 30%-Reduktion des Plutoniuminventars ergeben. Allerdings würden die restlichen 70% Plutonium noch über 50% spaltbares Plutonium enthalten, so daß mindestens eine weitere Rezyklierung notwendig wäre, um eine effektivere Nutzung erzielen zu können.

Aus vorgenannten Gründen gibt es seit Anfang der 90-er Jahre Bestrebungen, uranfreie Plutoniumbrennstoffe zu entwickeln, mit denen Plutonium effizienter genutzt werden kann.

2.2 Uranfreie Plutoniumbrennstoffe

Die Verwendung von uranfreien Plutoniumbrennstoffen in LWR bietet die Möglichkeit, in den heute bestehenden Reaktoren, die vorhandenen Plutoniummengen effektiv zu reduzieren. Da es nicht möglich ist, reines Plutonium oder dessen Oxid als Brennstoff zu verwenden, werden z. Z. uranfreie Mischoxidbrennstoffe erforscht. Hierbei wird das Uran durch eine neutronenphysikalisch inerte Trägermatrix ersetzt. Der Brennstoff wird in allen gängigen Konzepten als ein Einweg-Brennstoff betrachtet, der nach seinem Einsatz im Reaktor ohne weitere Bearbeitung direkt endgelagert wird. Aus diesem Grund haben sich steinähnliche inerte Matrizen (IM) für diese neuen Brennstoffe etabliert, welche hier als Inert-Matrix-Brennstoffe bezeichnet werden. Die wichtigsten anderen IM-Konzepte zur uranfreien Plutoniumverbrennung in LWR sind im folgenden dargestellt.

2.2.1 Verwendung von „Plutonium Rock-Like Fuel“ in LWR

In den Arbeiten [29] bis [32] ist sowohl der Einsatz von WGPu als auch von RGPu in Form von steinähnlichen Inert-Matrix-Brennstoffen vorgesehen. Angestrebt werden Vollkernbeladungen mit homogenen Brennelementen aus uranfreiem Pu-Brennstoff. Da der Einsatz in Leichtwasserreaktoren und eine sichere Endlagerung zu gewährleisten sind, werden nachstehende Ziele angestrebt:

- Das Plutonium soll homogen im Brennstoff verteilt sein.
- Der Brennstoff soll gute physikalisch-chemische Eigenschaften aufweisen, z. B. genügend hohe Wärmeleitfähigkeit, chemische Stabilität im Reaktor und beständig gegen HNO_3 , d. h. gegenüber einer Abtrennung des Plutoniums aus dem bestrahlten Brennstoff sein.
- Der abgebrannte Brennstoff sollte ohne weitere Bearbeitung direkt endlagerfähig sein.

Um eine genügend große Wärmeleitfähigkeit des Brennstoffs zu gewährleisten, kommen hier Zwei-Phasen-Systeme zum Einsatz. Hierfür werden Zusammensetzungen aus PuO_2 in ZrO_2 , Spinel und Al_2O_3 betrachtet. Aus Gründen der Reaktorsicherheit werden dem Brennstoff kleine Mengen von Thorium oder Uran zugegeben. Der Grund hierfür ist, insbesondere bei der Verwendung von WGPu, der relativ kleine Dopplerkoeffizient bei gleichzeitig kleinem Anteil verzögerter Neutronen β_{eff} . Durch die Verwendung von Thorium oder Uran würde der Dopplerkoeffizient des Brennstoffs vergrößert, damit die Rückkopplung während eines Reaktivitätsunfalls verbessert und die im Brennstoff deponierte Energiemenge verkleinert, siehe hierzu auch [32]. Die erwartete Reduktion der eingesetzten Plutoniummengen soll bei Verwendung von 100% uranfreien Kernen über 80% des eingesetzten Plutoniums betragen.

2.2.2 Verwendung von heterogenen Brennelementen

Im Gegensatz zu der eben vorgestellten Strategie werden in [33, 34] heterogene Brennelemente für Ganzkernbeladungen vorgesehen. Der betrachtete DWR vom Typ AP600 weist außerdem eine rund 40% niedrigere Stableistung auf als andere Reaktoren gleicher Größe. Hieraus resultiert auch eine dementsprechend niedrigere Brennstofftemperatur, wodurch sich größere Margen bezüglich lokaler Leistungsvariationen im Reaktor ergeben. Als uranfreier Brennstoff fand hier eine Mischung aus PuO_2 und Al_2O_3 Anwendung. In einem 17×17 -Brennelement wurde in 56 der 264 Stabpositionen dieser uranfreie Brennstoff eingesetzt und mit diesen Mischbrennelementen eine volle Kernbeladung untersucht. Dies entspricht dem Einsatz von rund 21% uranfreiem Brennstoff im Kern. Die Reduktion des Plutoniums in den Pu-Brennstäben beträgt in diesem Konzept $\sim 73\%$ unter Verwendung von RGPu und $\sim 81\%$ beim Einsatz von WGPu. Unter Berücksichtigung des Pu-Aufbaus in den U-stäben, ergibt sich eine Gesamtreduktion des Plutoniums für den Kern von 15% bis 20%.

2.2.3 Teilbeladungen mit uranfreien Brennelementen in Urankernen

Eine andere Strategie beim Einsatz von Teilbeladungen mit uranfreien Brennstoffen wird in [35] vorgeschlagen. Außer dem Plutonium und IM aus ZrO_2 , Al_2O_3 und SiC , wurden hier auch abbrennbare Gifte (BP) und Thorium als Zusätze betrachtet. Wie auch in den oben beschriebenen Fällen, ist neben WGPu auch der Einsatz von RGPu untersucht worden. Der letztendlich verwendete Brennstoff bestand aus einer Zusammensetzung aus

WGPuO₂, Er₂O₃ und ZrO₂. Hieraus hergestellte Brennelemente wurden nur in der Peripherie des Kernes eingesetzt. Dies entspricht einem Anteil von rund 20 bis 25% der Kernbeladung, ähnlich wie bei dem oben in 2.2.2 beschriebenen Konzept mit heterogenen Brennelementen. Allerdings ist hier die Pu-Anreicherung in den uranfreien Brennelementen wesentlich geringer als in [33, 34], so daß es, über den ganzen Kern gemittelt, zu einer geringen Pu-Produktion von ca. 58 kg pro Jahr kommt.

2.2.4 Uranfreie Brennstoffe in zukünftigen Reaktoren

Im Gegensatz zu den bisher beschriebenen Konzepten, wird in [36] der Einsatz uranfreier Brennstoffe im Europäischen Druckwasserreaktor EPR vorgestellt. Zwei verschiedene Arten von Brennelementen sind in dieser Studie konzipiert worden. In beiden ist der Einbau von ZrH₂ Stäben zur Verbesserung der Moderation vorgesehen. Das Plutonium wird in einer IM aus Al₂O₃ eingesetzt, wobei die Verwendung von Gd als BP in einem Teil der Stäbe zur Absenkung der anfänglich hohen Reaktivität in den Brennelementen vorgesehen ist. Um die Wirksamkeit der Abschaltstäbe zu erhöhen, ist der Einsatz von Stäben mit erhöhtem ¹⁰B-Gehalt sowie Hüllrohren aus Hf geplant. Zusätzlich wird vorgeschlagen, Bor im Moderator mit einem erhöhten Anteil von ¹⁰B einzusetzen. Beim ersten BE-Konzept haben alle Brennstäbe den gleichen Durchmesser und enthalten, bis auf die Stäbe mit ZrH₂, eine Mischung aus PuO₂, Al₂O₃ bzw. PuO₂, Al₂O₃ und Gd₂O₃. Der zweite Vorschlag beinhaltet auch den Einsatz von Uranstäben. Für den uranfreien Brennstoff sind ringförmige Brennstäbe mit einem großen Durchmesser vorgesehen, so daß sich in der Mitte der Stäbe ein zusätzlicher Kühlkanal ergibt. Als IM wird dabei eine Metallkeramik verwendet, dessen Wärmeleitfähigkeit nicht ganz so groß wie von Al₂O₃ aber größer als von ZrO₂ ist. Auch für dieses Konzept werden in den uranfreien Brennstoffen Plutoniumreduktionen von rund 70% berechnet.

2.3 Resümee zur Plutoniumverbrennung in LWR

Mit dem Einsatz von MOX-Teilbeladungen in bestehenden Reaktoren ist es z. Z. möglich, den Plutoniumaufbau in dem jeweiligen Kern zu regulieren. Allerdings ergibt sich mit dieser Strategie nur ein Plutoniumgleichgewicht. Zu einem wirklichen Abbau von rund 30% des eingesetzten Plutoniums würde es erst unter Verwendung von 100% MOX-Kernen kommen. Allerdings wären weitere Rezyklierungen notwendig, sollte das verbleibende Plutonium weiter abgebaut werden. Mit Ausnahme des System 80TM-Reaktors [22, 23] gibt es

im Augenblick keinen bekannten Reaktor, der für den Einsatz von 100% MOX-Kernen ausgelegt worden ist. Zusätzlich gibt es z. Z. einen Trend hin zu höheren Abbränden, als deren Folge sich die Qualität des entladenen Plutoniums verschlechtert. Die damit notwendigen höheren Anteile an Plutonium im MOX führen zu einer weiteren Verschlechterung der Sicherheitsparameter und somit auch zu weiteren Hürden bei der Realisierung von 100% MOX-Kernen. Allein zum Abbau von zivilem Plutonium wären die Aufwendungen bei der Verwendung von MOX-Brennstoffen relativ groß, da zusätzlich auch eine mehrmalige Rezyklierung notwendig wäre. Vom Standpunkt der Uranausnutzung würde der Einsatz von 100% MOX-Kernen allerdings langfristig sinnvoll sein, da neben einer Reduktion der Plutoniummengen der Anteil des zur Energieerzeugung eingesetzten Natururans, wie eingangs erwähnt, fast verdoppelt würde.

Die Motivation zur Entwicklung von uranfreien Pu-Brennstoffen liegt in der effektiveren Reduktion des Plutoniums gegenüber MOX. So ist es, wie im Abschnitt 2.2.2 gezeigt, schon mit Teilbeladungen von rund 20% möglich, mehr Plutonium in einem Kern ab- als aufzubauen. Durch den Einsatz von 100%-Kernen mit uranfreien Brennstoffen ergibt sich, wie in Kapitel 2.2.1 und 2.2.4 beschrieben, ein mehr als doppelt so großer Plutoniumabbau wie bei der Verwendung von MOX. Aus diesem Grund und wegen der schlechteren Qualität des verbleibenden Plutoniums, kann dieser abgebrannte Brennstoff auch direkt endgelagert werden. Eine weitere Verwendung dieses Plutoniums wäre nur in Reaktoren mit einem schnellen Neutronenspektrum möglich.

Innerhalb der hier vorliegenden Arbeit wird ein uranfreier Brennstoff neutronenphysikalisch, unter Beachtung materialtechnischer Gesichtspunkte, entwickelt und mit diesem ein Gleichgewichts-Vollkern konzipiert. Im Gegensatz zu der in Kapitel 2.2.1 beschriebenen Vorgehensweise, wird hier kein Thorium im Brennstoff eingesetzt. Dafür werden aber, wie in [35] und [36], abbrennbare Neutronengifte verwendet. Grundlage für die Kernausslegung ist ein existierender DWR, welcher ohne Änderungen eins zu eins übernommen wird. Hierdurch soll gewährleistet werden, daß im Gegensatz zu [36] ein solcher uranfreier Brennstoff in einem bestehenden Reaktor eingesetzt werden kann.

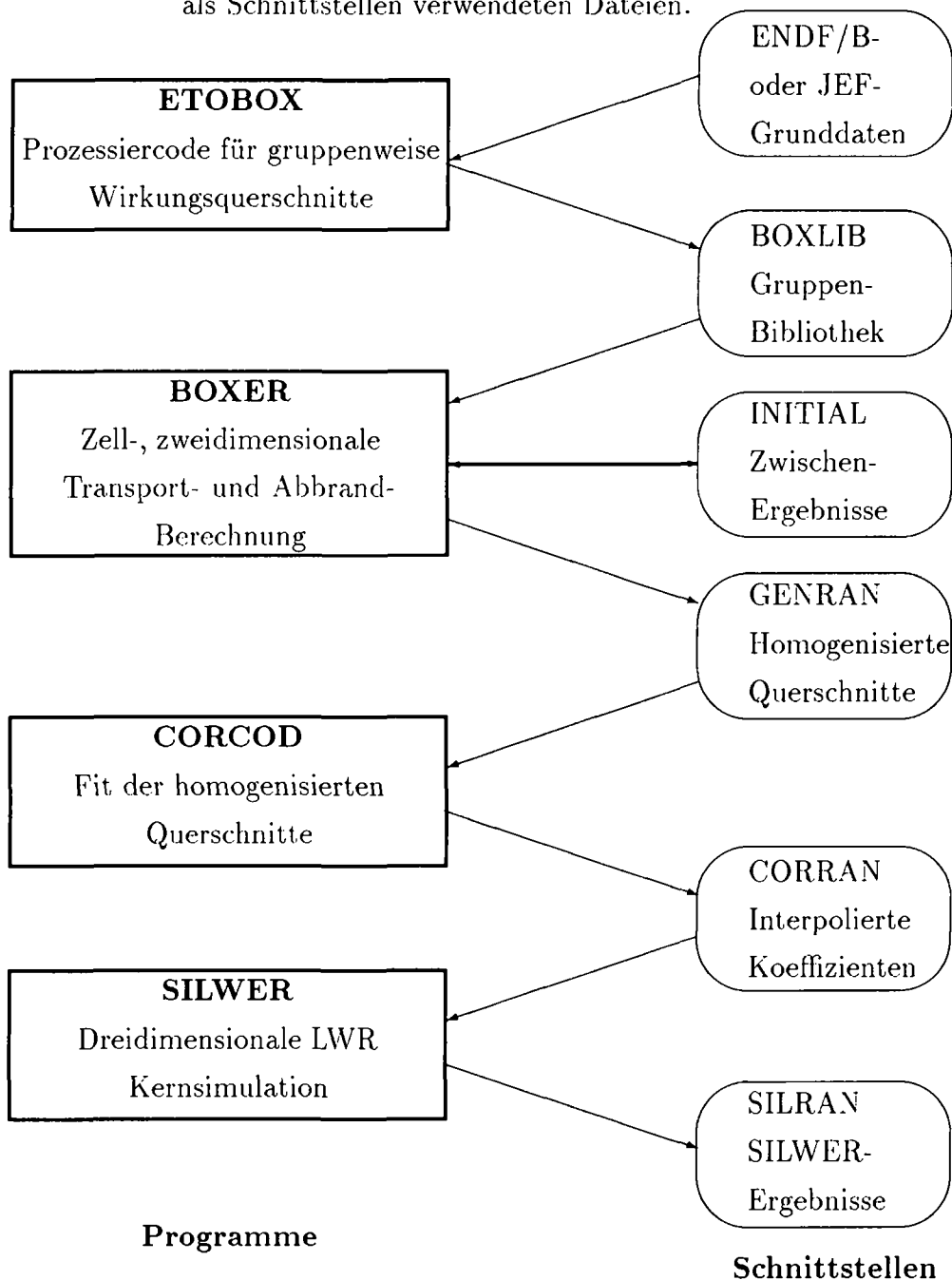
3 Verwendete Methoden und Daten

Die Berechnungen innerhalb der vorliegenden Arbeit wurden mit dem am PSI entwickelten Code-System ELCOS [18] durchgeführt. Mit diesem Programmsystem ist es möglich, stationäre Simulationen von thermischen Reaktoren durchzuführen. Im Gegensatz zu kommerziell eingesetzten Systemen, wie z. B. CASMO-SIMULATE (CMS) [37, 38], hat ELCOS den Vorteil, wesentlich flexibler zu sein, so daß auch neue abbrandsensitive Nuklide einfacher untersucht werden können. Das Programmsystem ELCOS setzt sich aus folgenden Einzelprogrammen zusammen:

- **ETOBX** [39] generiert gruppenweise Wirkungsquerschnitte aus Grunddatenbibliotheken mit Formaten bis ENDF/B-V [40]. Für das Resonanzgebiet zwischen 1.3 und 907 eV werden Punktdaten zur Verfügung gestellt.
- **BOXER** [41] berechnet Zellen und zweidimensionale Geometrien sowie den Abbrand. Anschließend kann eine Generierung der räumlich und energetisch kondensierten Gruppenkonstanten erfolgen.
- **CORCOD** [42] bestimmt Interpolations-Koeffizienten für die Gruppenkonstanten. Diese Koeffizienten werden vom dreidimensionalen Kernsimulationsprogramm zur Rekonstruktion der Gruppenkonstanten aus BOXER verwendet.
- **SILWER** [43] führt, basierend auf den mit BOXER erstellten Gruppenkonstanten und unter Berücksichtigung der Thermohydraulik, dreidimensionale Kernberechnungen durch.

Die Verbindung zwischen den Programmen erfolgt über sogenannte Access-Dateien, so wie es in Abbildung 3.1 dargestellt ist. Im folgenden wird die Arbeitsweise der einzelnen Programme kurz beschrieben, wobei auf die Programme BOXER und SILWER genauer eingegangen wird.

Abbildung 3.1: Das Codesystem ELCOS mit seinen einzelnen Programmen und den als Schnittstellen verwendeten Dateien.



3.1 Der Prozessiercode ETOBOX

Wirkungsquerschnitte für Kernreaktionen werden sowohl von verschiedenen Experimentatorgruppen in aller Welt gemessen als auch durch theoretische Kernmodelle berechnet und auf internationaler Ebene gesammelt und bewertet. Dies erfolgt z. B. für die USA und Kanada am Brookhaven National Laboratory BNL. Für die OECD-Mitglieder ist die NEA-Datenbank in Saclay, Frankreich, für die Datensammlung verantwortlich. Zusammengestellt werden die gemessenen Grund- oder Elementardaten in Bibliotheken. Weltweit wird das amerikanische Format ENDF/B verwendet [40, 44], so daß verschiedene

Elementarbibliotheken, wie z. B. das amerikanische *Evaluated Nuclear Data File* ENDF [45], das europäische *Joint Evaluated File* JEF [46], die *Japanese Nuclear Data Library* JENDL [47] oder die *Russian Evaluated Neutron Data Libraries* BROND [48], überall im gleichen Format lesbar sind. Mit Ausnahme von einigen Monte-Carlo-Codes können diese Elementarbibliotheken nicht direkt von Rechenprogrammen genutzt werden. In der Regel verwenden sie über einen Energiebereich gemittelte Gruppenquerschnitte σ_g , welche aus den punktweisen Daten, d. h. Querschnitten $\sigma(E)$ bei einer definierten Energie, erst berechnet werden müssen. Diese Bereitstellung der Gruppenquerschnitte aus den Ursprungsbibliotheken erfolgt durch Generierprogramme wie z. B. NJOY [49] oder, wie in dem hier vorliegenden Fall, ETOBOX.

Das Programm kann Grunddaten mit einem Format bis einschließlich ENDF/B-V lesen und zu einer Querschnittsbibliothek für BOXER verarbeiten. Die in ETOBOX verwendeten Methoden basieren auf den Vorschlägen aus den ENDF/B-Handbüchern [50, 40] zur Datengenerierung. Die Querschnitte ohne Resonanzen werden energiegruppenweise integriert und mittels eines vorgegebenen Flußes gewichtet. Der Wichtungsfluß entspricht dabei einer angenommenen energetischen Neutronenverteilung in einem LWR [39]. In den Streumatrizen wird, für Energien oberhalb 1.3 eV, zusätzlich zur elastischen auch die inelastische Streuung sowie die (n, xn) -Reaktionen berücksichtigt. Der Grad des Legendre-Polynoms zur Approximation der anisotropen Streuung kann als Eingabeparameter gewählt werden. Für die in dieser Arbeit verwendete Bibliothek wurde eine P_0 - und P_1 - Darstellung mit einer P_2 - Transportkorrektur der elastischen Streuung bei der Erstellung der Querschnitte berücksichtigt.

Im thermischen Energiebereich, unterhalb 1.3 eV, werden die punktweisen Querschnitte energiegruppenweise integriert, wobei unendliche Verdünnung vorausgesetzt wird. Dies bedeutet, daß hier keine Selbstabschirmungseffekte in den Querschnitten berücksichtigt werden. Die Berechnung der Streumatrizen erfolgt in der Regel nach dem Gasmodell. Dies bedeutet, daß keine chemische Bindung oder Kristallstruktur sondern nur die einzelnen Kerne betrachtet werden. Kommen moderierende Nuklide in chemischen Bindungen oder Kristallen vor, so „sieht“ das Neutron nicht mehr den freien Kern, sondern tritt in Wechselwirkung mit einem Molekül oder einem Kristall. Die Wirkung des Moderators auf das Neutron wird dadurch kleiner als bei freien Kernen [51]. Für Nuklide, wie z. B. H in H_2O , D in D_2O oder Be in BeO , wurde dieser Sachverhalt berücksichtigt und die Streumatrizen durch die Integration der $S(\alpha, \beta)$ -Matrizen aus File 7 der ENDF/B-Datenbasis berechnet. Alle Querschnitte liegen für verschiedene Temperaturen vor, zwischen denen im Programm BOXER interpoliert wird.

Im sogenannten Resonanzgebiet zwischen 1.3 eV und 907 eV werden die Querschnitte punktweise für verschiedene Temperaturen aufgelistet [52]. Die Integration in Energiegruppen erfolgt in BOXER. Eine genaue Darstellung dieser Methode erfolgt in Kapitel 3.2.1.

Oberhalb einer Energie von 907 eV werden die punktweisen Querschnitte für drei verschiedene Temperaturen energiegruppenweise integriert. Allerdings werden hierbei verschiedene Verdünnungen durch einen Verdünnungsquerschnitt σ_d mit Werten von 10, 100, 1000 und ∞ barn dargestellt. Der aktuelle Querschnitt wird während einer BOXER-Rechnung durch Interpolation der Temperatur und mittels eines äquivalenten Verdünnungsquerschnittes σ_{eq} bestimmt [53]. In σ_{eq} werden die Nuklidichte und die Geometrie des betrachteten Materials einbezogen. Durch Interpolation mit σ_{eq} zwischen den Stützstellen von σ_d in BOXER ergeben sich dann die resonanzabgeschirmten Querschnitte.

In einem letzten Schritt können die Kopplungen der Nuklide untereinander in die Bibliothek eingearbeitet werden. Diese Verknüpfungen sind für Abbrandrechnungen unabdingbar. Berücksichtigt werden Übergänge durch Einfangreaktionen mit Neutronen, α - und β -Zerfälle sowie die Produktion von Spaltprodukten als Folge von Spaltreaktionen.

Die mit ETOBOX für BOXER generierte Bibliothek basiert zum größten Teil auf Grunddaten aus JEF-1.1 [46]. Ausnahmen bilden hier die Er-Isotope, welche aus der BROND-2 Bibliothek verwendet wurden [48], da auf keiner anderen Bibliothek die Er-Isotope vollständig vorhanden sind. Desweiteren wird Zirkonium aus ENDF/B-IV [45] und ^{155}Gd aus JENDL-2 [47] verwendet.

3.2 Der Zell- und 2D-Transportcode BOXER

Der Code BOXER ist ein modular aufgebautes Programm, mit dessen Hilfe zweidimensionale LWR-Anordnungen berechnet werden können. Mit den Ergebnissen lassen sich dann Gruppenkonstanten für dreidimensionale Reaktorberechnungen bestimmen. Das Programm besteht aus folgenden Hauptteilen:

- **Zellberechnung:** Innerhalb dieser Rechnung wird die wichtigste Zelle, welche für das Neutronenspektrum der Anordnung ausschlaggebend ist, als Haupt-Zelltyp definiert. Für diese Zelle wird der Neutronenfluß unter Annahme von weißen Randbedingungen berechnet. Der von dieser Zelle ausgehende Strom kann als Randbedingung für andere Zellen der Anordnung verwendet werden.

Startpunkt ist die Resonanzrechnung. Dabei wird ein Zwei-Zonen-Modell für die Zelle verwendet. In Bereich zwischen 1.3 und 907 eV wird die Resonanzrechnung mit bis zu 9000 Lethargiepunkten durchgeführt. Das sich ergebende ultrafeine Spektrum wird in der Brennstoffzone als Wichtungsspektrum zur Berechnung der Gruppenquerschnitte aus den Punktdaten verwendet [54]. Anschließend erfolgt eine eindimensionale Flußberechnung mittels eines Transportprogramms in Zylinder- oder Plattengeometrie und 70 Energiegruppen für alle Zonen der Zelle, danach die räumliche und energetische Kondensation der Querschnitte.

- **Zweidimensionale Rechnung:** Die Flußverteilung wird in einer X-Y-Geometrie berechnet. Es kann sowohl ein Diffusions-, als auch ein Transportprogramm [55, 56] für die Flußkalkulation verwendet werden. Ergebnisse der Rechnung sind k_{eff} , Reaktionsraten sowie die Fluß- und Leistungsverteilung. Durch die räumliche und energetische Kondensation zu Gruppenkonstanten ergeben sich die Eingangsdaten zum Korrelationsprogramm CORCOD.
- **Abbrandrechnung:** Die Berechnung der Variation der Teilchendichten mit der Zeit ist sowohl für Zell- als auch für zweidimensionale Anordnungen möglich. Die Kopplung der abbrandsensitiven Nuklide ist in fünf Matrizen festgeschrieben. Dies bedeutet, daß keine festen Abbrandketten für die Abbrandrechnung verwendet werden. Dadurch ist es leicht möglich, neue abbrandsensitive Nuklide zu berücksichtigen. Die Nuklide sind in zwei Klassen eingeteilt. Die Dichte der meisten Nuklide wird durch ein Polynom der Zeit beschrieben. Nuklide, welche einer großen Transmutationsrate unterliegen, werden als asymptotische Nuklide betrachtet. Der Effekt der Spektrumsänderung auf die Reaktionsraten wird durch ein Prädiktor-Korrektor-Verfahren [57] und im Fall von ^{239}Pu und ^{240}Pu durch dichteabhängige Eingruppenquerschnitte berücksichtigt.

Für die Untersuchungen von neuen, uranfreien Brennstoffen sind unter anderem die Erstellung der Gruppenkonstanten und die Berechnung der zeitlichen Variation der Teilchendichten von besonderer Bedeutung. Durch die Verwendung von punktwisen Querschnitten im Resonanzgebiet so wie auch auf Grund der eingesetzten Abbrandmethode unterscheidet sich aber das Programm BOXER von kommerziellen Codes, wie z. B. CASMO [37, 38]. Aus diesem Grund wird die auf Punktdaten basierende Bestimmung des Flusses, sowie das BOXER spezifische Verfahren bei der Lösung der Abbrandgleichung im folgenden näher erläutert.

3.2.1 Resonanzrechnung mit Punktdaten

Die Berechnung der resonanzabgeschirmten Querschnitte in BOXER im Energiebereich zwischen 1.3 eV und 907 eV erfolgt mittels Punktdaten. Diese Berechnung unterteilt sich im wesentlichen in die Erstellung der Punktdaten und die Berechnung eines material-abhängigen Wichtungsspektrums mit diesen Punktdaten.

3.2.1.1 Erstellung der verwendeten Punktdaten

In einem ersten Schritt müssen die Querschnitte von allen verwendeten Isotopen für die gleichen Energiepunkte zur Verfügung gestellt werden. Von der mit ETOBOX erstellten Querschnittsbibliothek LIBRAN werden für die einzelnen Isotope die Punktquerschnitte gelesen und mittels einer linearen Interpolation in $\sqrt{T_{abs}}$ zwischen den auf LIBRAN tabellierten Temperaturen für den im betrachteten Material verwendete Wert zur Verfügung gestellt.

Anschließend wird das Resonanzgebiet von 1.3 eV bis 907 eV in 100 Mikrogruppen aufgeteilt und ein makroskopischer Referenzquerschnitt Σ_g^{Ref} für jede Mikrogruppe g nach Gleichung 3.1 berechnet.

$$\Sigma_g^{Ref} = \sum_j N_j \cdot \sigma_{g,j} \quad (3.1)$$

mit

N_j : Teilchendichte des Isotops j

$\sigma_{g,j}$: mittlerer mikroskopischer Wirkungsquerschnitt des Isotops j in der Mikrogruppe g

Aus der Liste der verwendeten Nuklide wird ein Bezugsnuklid ausgewählt. Für die Energien der Punktdaten dieses Nuklids werden die punktweisen Querschnitte aller anderen Nuklide mittels Interpolation erstellt. Als Bezugsnuklid wird das Nuklid mit der größten Dichte verwendet. Bei normalen Uran- oder MOX-Brennstoffen ist dies ^{238}U . Im Fall der uranfreien Brennstoffe, je nach Abbrandzustand, ^{239}Pu oder ^{240}Pu . Auch mit diesen Querschnitten wird für jede Mikrogruppe ein makroskopischer Querschnitt Σ_g^x gemäß Gleichung 3.1 berechnet. Anschließend wird mit $|\Sigma_g^x - \Sigma_g^{Ref}| < \varepsilon$ und ε als Grenzwert festgestellt, ob genügend viele Punkte erstellt wurden, d. h. ob mit den neuen Punktdaten auch alle Resonanzen genau genug wiedergegeben werden. Ist dies nicht der Fall, so wird in der jeweiligen Mikrogruppe die Zahl der Punkte solange verdoppelt, bis die erforderliche Genauigkeit erreicht wird. In herkömmlichen Brennstoffen werden so bis zu 9000 und in uranfreien Zellen bis zu 3000 Lethargiepunkte erstellt.

3.2.1.2 Berechnung des Wichtungsspektrums im Resonanzgebiet

Ausgehend von der allgemeinen Definition der Stoßwahrscheinlichkeit $P^{ij}(u)$ daß ein im Gebiet i erzeugtes Neutron der Lethargie u seinen nächsten Stoß im Gebiet j hat, wird die Stoßratendichte für Anordnungen mit reflektierenden Randbedingungen mit folgender Gleichung wiedergegeben:

$$V^i \cdot \Phi^i(u) \cdot \Sigma_t^i(u) = \sum_j \psi^j(u) \cdot P^{ji}(u) \cdot V^j \quad (3.2)$$

mit

V^i : Volumen der Zone i

$\Phi^i(u)$: Fluß der Zone i und der Lethargie u

$\Sigma_t^i(u)$: totaler Querschnitt der Zone i und der Lethargie u

$\psi^j(u)$: Quelle der Zone j und der Lethargie u

Im Programm BOXER wird ein Zweizonenmodell verwendet. Zone 0 beschreibt die Brennstoffzone und Zone 1 steht für den zusammengefassten Bereich aus Hüllrohr und Moderator. Mit folgendem Ansatz wird die Quelle in der Zone i im Lethargiepunkt u_n beschrieben:

$$\psi^i(u_n) = \psi_C^i(u_n) + F^i(u_n) \cdot \Phi^i(u_n) \quad (3.3)$$

wobei $\psi_C^i(u_n)$ die in Bezug auf den Punkt u_n bekannte Quelle ist. Der Term $F^i(u_n) \cdot \Phi^i(u_n)$ ist der nicht bekannte Teil der Quelle, da der Fluß $\Phi^i(u_n)$ erst bestimmt werden muß. Durch diese Aufteilung ergibt sich mit dem Index n für den Lethargiepunkt u_n nach einigen Umformungen:

$$\begin{aligned} Q_n^0 &= V^0 (\Sigma_{t,n}^0 - F_n^0 \cdot P_n^{00}) \Phi_n^0 - F_n^1 \cdot P_n^{10} \cdot V^1 \cdot \Phi_n^1 \\ Q_n^1 &= -F_n^0 \cdot P_n^{01} \cdot V^0 \cdot \Phi_n^0 + V^1 (\Sigma_{t,n}^1 - F_n^1 \cdot P_n^{11}) \Phi_n^1 \end{aligned} \quad (3.4)$$

mit

$$Q_n^0 = \psi_{C,n}^0 \cdot P_n^{00} \cdot V^0 + \psi_{C,n}^1 \cdot P_n^{10} \cdot V^1 \quad (3.5)$$

$$Q_n^1 = \psi_{C,n}^0 \cdot P_n^{01} \cdot V^0 + \psi_{C,n}^1 \cdot P_n^{11} \cdot V^1 \quad (3.6)$$

Mit 3.4 liegt ein Gleichungssystem vor, in dem nur der Fluß $\bar{\Phi}_n$ unbekannt und damit berechenbar ist. Die Quelle läßt sich über das nachstehende Stoßintegral bestimmen.

$$\psi(u) = \int_{u+\ln\alpha}^u \Sigma_s(u') \cdot \Phi(u') \cdot \frac{e^{-(u-u')}}{1-\alpha} du' \quad (3.7)$$

wobei $\alpha = \left(\frac{A-1}{A+1}\right)^2$ und A die Massenzahl des betrachteten Isotops ist. Gleichung 3.7 stellt dabei die Einstreuung in das Lethargieintervall zwischen $u + \ln \alpha$ und u dar. Mit der Annahme, daß sich die Streuraten zwischen zwei betrachteten Lethargiepunkten u_{n-1} und u_n durch ein Polynom erster Ordnung mit $\Sigma_s(u) \cdot \Phi(u) = a + bu$ approximieren lassen und daß der Fluß der Lethargie u_{n-1} bekannt ist, folgt für $\psi_{C,n}^i$ und F_n^i :

$$\begin{aligned} \psi_{C,n}^i &= \int_{u_n+\ln\alpha}^{u_{n-1}} \Sigma_s(u') \cdot \Phi(u') \cdot \frac{e^{-(u-u')}}{1-\alpha} du' \\ &\quad + \Sigma_{s,n-1} \cdot \Phi_{n-1} \cdot \left[I_1 - \frac{I_2}{\Delta u} \right] \end{aligned} \quad (3.8)$$

und

$$F_n^i = \Sigma_{s,n} \cdot \frac{I_2}{\Delta u} \quad (3.9)$$

mit

$$I_1 = \int_{u_{n-1}}^{u_n} \frac{e^{-(u-u')}}{1-\alpha} du' \quad (3.10)$$

$$I_2 = \int_{u_{n-1}}^{u_n} u' \cdot \frac{e^{-(u-u')}}{1-\alpha} du' \quad (3.11)$$

Damit sind die Quellen im Lethargiepunkt u_n bekannt, und der Fluß kann nach Gleichung 3.4 berechnet werden. Im vorhergehenden Rechenschritt wurde der Fluß $\bar{\Phi}_{n-1}$ berechnet, so daß für eine reine Abwärtstreuung der Fluß im gesamten Resonanzgebiet bestimmt werden kann. Die richtige Temperatur wurde, wie oben beschrieben, beim Erstellen der verwendeten Punktquerschnitte berücksichtigt.

Die untere Energiegrenze des Resonanzgebietes wurde auf 1.3 eV festgelegt. Zum einen bleibt damit die Aufwärtsstreuung im thermischen Energiegebiet ungestört, zum anderen wird hierdurch die große Einfangresonanz des ^{242}Pu bei 2.7 eV richtig dargestellt. Die

Einfangresonanz des ^{240}Pu bei 1.0 eV wird durch die gewählte WIMS-Gruppenstruktur [58] mit genügender Genauigkeit wiedergegeben, so daß die Selbstabschirmung durch diese Resonanz richtig berechnet wird. Die obere Grenze wurde auf 907 eV festgelegt, da bei einer Verschiebung der Grenze zu höheren Energien der kleine Gewinn in der Rechengenauigkeit in keinem Verhältnis zu dem höheren Rechenaufwand stehen würde.

Die Resonanzbehandlung oberhalb von 907 eV erfolgt durch Interpolation zwischen den Temperaturen und mittels eines in BOXER berechneten Äquivalentquerschnitts σ_{eq} zwischen auf der Querschnittsbibliothek LIBRAN entsprechend tabellierten Stützstellen. Die Tabellierung erfolgt dabei mittels des in ETOBOX vorgegebenen Verdünnungsquerschnitts σ_d . Diese Methode ist der in vielen Zellcodes verwendeten Bondarenko-Methode ähnlich [59], wie sie auch in [60] verwendet wird, und soll hier nicht näher erläutert werden.

3.2.2 Abbrandrechnung

Während des Reaktorbetriebs finden im Kernbrennstoff zeitgleich verschiedene Kernumwandlungsprozesse wie Kernspaltung, Neutroneneinfang und Zerfall statt. Dadurch ändern sich ständig die Anteile der Isotope in der Zusammensetzung des Brennstoffs. Das Ziel einer neutronenphysikalischen Abbrandrechnung ist somit die Bestimmung der sich zeitlich ändernden Nuklidkonzentrationen sowie deren Rückkopplung auf das Neutronenspektrum und die Reaktivität des betrachteten Systems.

Das Programm BOXER enthält eine Abbrandroutine [61], welche im Anschluß an die Berechnung der Neutronenflüsse in den einzelnen Zonen der Zelle bzw. nach der zweidimensionalen Flußberechnung, für ein vorgegebenes Zeitintervall $\Delta t = t_1 - t_0$ die Abbrandgleichung für jedes betrachtete Nuklid löst. Für den Zeitraum Δt werden folgende Ansätze verwendet:

1. Die Gesamtleistung in der Anordnung bleibt konstant.
2. Die zur Abbrandrechnung verwendeten mikroskopischen Eingruppenquerschnitte bleiben über den Zeitschritt konstant, mit Ausnahme von ^{239}Pu und ^{240}Pu . Diese beiden Nuklide werden innerhalb eines Zeitschrittes durch eine rationale Funktion approximiert [62].
3. Über einen Eingabeparameter können zwei unterschiedliche Bedingungen vermischt werden:
 - (a) das Verhältnis der Flüsse in den verschiedenen Materialien soll konstant bleiben und/oder

(b) das Verhältnis der Absorptionen ist konstant.

In einem letzten Rechenschritt werden über ein Prädiktor-Korrektor-Verfahren [57] die endgültigen neuen Teilchendichten $N(t_1)$ bestimmt. Mit den so berechneten neuen Teilchendichten $N(t_1)$ wird eine erneute Spektrumsrechnung durchgeführt. Dieser Vorgang wird solange wiederholt, bis die vorgegebene Abbrandzeit T bzw. der vorgegebene Zielabbrand erreicht ist.

3.2.2.1 Lösung der Abbrandgleichung

In der Abbrandgleichung werden die Verluste und Gewinne der Teilchendichten für die einzelnen Nuklide zusammengefaßt.

$$\frac{dN_i}{dt} = -(\lambda_i + \tau_i)N_i + \sum_{j \neq i} (\lambda_i^j + \tau_i^j)N_j + \sum_k \tau_f^k \cdot Y_i^k \cdot N_k \quad (3.12)$$

mit

λ_i : Zerfallskonstante des Nuklids i

τ_i : Summe aller Reaktionsraten $\sigma_l \cdot \Phi$ des Nuklids i

τ_i^j : Reaktionsrate $\sigma_l \cdot \Phi$ des Nuklids j , wodurch Nuklid i entsteht

λ_i^j : Zerfallskonstante des Nuklids j zum Nuklid i

τ_f^k : Spaltrate des Nuklids k

Y_i^k : Spaltausbeute des Nuklids i bei der Spaltung von Nuklid k

N_k : Teilchendichte des Nuklids k

wobei folgende Reaktionen für σ_l berücksichtigt werden: (n, γ) ; $(n, 2n)$; $(n, 3n)$; (n, α) ; $(n, {}^3\text{He})$; (n, p) ; (n, d) und (n, t) .

Zur Lösung der Gleichung 3.12 wird weiterhin angenommen, daß die Energie pro Spaltung ε_k sowie die Spaltausbeute Y_i^k keine Funktionen der Energie und somit konstant sind. Während die Annahme, daß ε_k keine Funktion der Energie ist, mit guter Näherung Allgemeingültigkeit besitzt, so kann dies von der Spaltausbeute nicht gesagt werden. Wie z. B. in [51] oder [63] gezeigt, ändert sich Y_i^k relativ stark mit der Energie des Spaltneutrons. Allerdings werden hier nur thermische Systeme mit einer relativ kleinen Schwankungsbreite des Spektrums betrachtet, so daß für die vorliegende Arbeit diese Annahme ihre Gültigkeit behält. Desweiteren soll die Leistung über den Zeitschritt konstant sein. Das setzt voraus, daß der Fluß während eines Abbrandschritts variieren darf. Hierin unterscheidet sich der BOXER-Ansatz von dem anderer Abbrandprogramme, wie z. B. in [60] und [64] dargestellt.

In einem gegebenen Material der Anordnung wird angenommen:

$$\tau_f^k = f(t) \cdot \tau_f^k(t=0) = f(t) \cdot \tau_f^{k0}$$

und

(3.13)

$$\tau_f^j = f(t) \cdot \tau_f^j(t=0) = f(t) \cdot \tau_f^{j0}$$

Wobei τ als mikroskopische Rate während des betrachteten Abbrandschritts konstant ist. Die Änderung des Flusses wird durch $f(t)$ berücksichtigt. Werden die Gleichungen 3.13 in 3.12 eingesetzt, ergibt sich nach einigen Umformungen:

$$\frac{dN_i}{dt} = \sum_k \alpha_i^k \cdot N_k + f(t) \cdot \sum_k \beta_i^k \cdot N_k \quad (3.14)$$

oder

$$N_i(t) = N_i(0) + \int_{t_0}^{t_1} \sum_k N_k \cdot [\alpha_i^k + f(t) \cdot \beta_i^k] dt \quad (3.15)$$

mit

$$\alpha_i^k = \lambda_i^k - \delta_{ki} \cdot \lambda_i \quad (3.16)$$

und

$$\beta_i^k = \tau_f^{k0} \cdot Y_i^k + \tau_i^{k0} - \delta_{ki} \cdot \tau_i \quad (3.17)$$

wobei $\delta_{ki} = 0$ für $k \neq i$ und für $k = i$ gleich eins ist.

Sowohl die Variation des Flusses als auch die Teilchendichten werden durch Polynome der Zeit approximiert:

$$f(t) = \sum_{z=0}^Z f_z \cdot t^z \quad (3.18)$$

und

$$N_i(t) = \sum_{l=0}^L A_{li} \cdot t^l \quad (3.19)$$

wobei normalerweise Werte für $L \geq 9$ und $Z \geq 3$ verwendet werden. Durch Einsetzen von 3.19 und 3.18 in 3.14, ergibt sich das Gleichungssystem 3.20, welches rekursiv gelöst werden kann.

$$A_{0j} = N_{0j}$$

$$l \cdot A_{li} = \sum_k [A_{l-1,k} \cdot \alpha_i^k + \beta_i^k \cdot \sum_{z=0}^{l-1, z \leq Z} A_{l-z-1,k} \cdot f_z] \quad (3.20)$$

Wenn die Genauigkeit der Polynomdarstellung schlechter ist als ein vorgeschriebener Wert, kann der vorgegebene Zeitschritt in kürzere Zeitintervalle unterteilt werden. Dies wird vom Programm automatisch durchgeführt.

Hieraus ergeben sich die Teilchendichten $N(t_1)$, mit denen neue mikroskopische Querschnitte σ_l^1 erzeugt werden. Eine genauere Beschreibung zur Lösung der Abbrandgleichung ist in [61] zu finden.

Es kann davon ausgegangen werden, daß die Querschnitte σ_l^1 für den Abbrandschritt zwischen t_0 und t_1 nicht ungenauer sind, als die zum Zeitpunkt t_0 verwendeten σ_l^0 . Aus diesem Grund wird der Abbrandschritt mit diesen neuen Querschnitten wiederholt, woraus die Teilchendichten $N^*(t_1)$ resultieren. Die endgültig neuen Teilchendichten ergeben sich dann aus der arithmetischen Mittelung von $N(t_1)$ und $N^*(t_1)$. Diese Methode wird als Prädiktor-Korrektor-Verfahren bezeichnet und kommt z. B. auch in [37] zur Anwendung.

Der Vorteil der hier eingesetzten Abbrandmethode besteht in der relativen Unempfindlichkeit gegenüber Flußänderungen, da der Fluß während des Abbrandschrittes angepaßt wird, so daß die Leistung konstant bleibt. Desweiteren können relativ problemlos neue, abbrandempfindliche Nuklide in das Abbrandschema eingebunden werden, da keine Kernumwandlungsprozesse von der Abbrandbehandlung ausgeschlossen sind und die Kopplung zwischen den Nukliden nicht über Abbrandketten sondern über Matrizen erfolgt. Hierdurch ist es z. B. leicht möglich, verschiedene abbrennbare Gifte einzubinden und ihren Einfluß auf das Abbrandverhalten von uranfreien Brennstoffen zu testen.

3.3 Darstellung der Gruppenkonstanten mit CORCOD

Die in BOXER berechneten und kondensierten Gruppenkonstanten für die dreidimensionalen Ganzkernrechnungen werden in CORCOD für das Programm SILWER verarbeitet.

Die Gruppenkonstanten aus BOXER werden dabei für verschiedene unabhängige Variablen erstellt. Typische Variablen sind dabei Abbrand, Leistung, Brennstoff- und Moderator-temperatur, Borkonzentration im Moderator, Void sowie ^{135}Xe -Dichte. In CORCOD werden die Koeffizienten zur Darstellung der Gruppenkonstanten als Polynome der unabhängigen Variablen berechnet und über die Bibliothek CORRAN an SILWER übergeben. Das Simulationsprogramm rekonstruiert die Gruppenkonstanten aus den Koeffizienten für den gerade betrachteten Zustand.

Die Koeffizienten können in CORCOD als Square-Fit oder mit einer statistischen Methode berechnet werden. Bei Verwendung des zweiten Verfahrens werden die unbedeutenden Terme der Polynome automatisch vom Programm unterdrückt [65]. Die maximale Ordnung des Polynoms für jede freie Variable kann als Eingabeparameter gewählt werden.

3.4 Der dreidimensionale LWR-Simulationscode SILWER

Das Programm SILWER berechnet stationäre Zustände von LWR-Kernen. Betrachtet werden dabei der aktive Reaktorkern einschließlich des Reflektors. Ergebnis einer solchen Simulation ist der Multiplikationsfaktor k_{eff} , die axiale und radiale Verteilung der Leistungsdichte, Abbrand, Neutronenfluß, Wasserdichte, die Brennstoff³-, Hüllrohr und Wassertemperatur sowie die kritische Wärmestromdichte und die Sicherheit gegen Filmsieden oder das DNB-Verhältnis [66]. Optional ist es möglich, die kritische Borkonzentration für einen DWR oder die kritische Steuerstabstellung für einen SWR zu bestimmen. Die Hauptteile von SILWER sind:

- **Neutronenflußberechnung:** Zur Bestimmung der Flußverteilung stehen zwei nodale Grobgitter-Diffusionsprogramme in ein- bis dreidimensionaler kartesischer Geometrie zur Verfügung. Das erste Verfahren kann beliebige Gruppennzahlen verarbeiten und verwendet zur Darstellung des Flußverlaufs innerhalb eines Knotens Legendre-Polynome [67]. Die zweite Berechnungsmöglichkeit stellt eine analytische Lösung der eindimensionalen Diffusionsgleichung unter Verwendung von Exponential- sowie trigonometrischen Funktionen dar [68, 69] und ist auf zwei Energiegruppen beschränkt. Die Genauigkeit beider Lösungsmöglichkeiten ist ähnlich gut. Allerdings sind Rechenzeit und Speicherplatzbedarf des analytischen Ansatzes wesentlich kleiner. Auch ist diese Programmversion wesentlich besser getestet und wurde

³Die Berechnung der Brennstofftemperatur ist nur für konventionelle Uran- und MOX-Brennstoff möglich, nicht aber für die hier neu entwickelten Brennstoffe.

somit innerhalb dieser Arbeit verwendet. Als Konvergenzbeschleuniger wird eine Eingruppen-Grobgitterrechnung sowie eine Flußextrapolation beim Erreichen eines asymptotischen Verlaufs der Konvergenz verwendet.

- **Thermohydraulikrechnung:** SILWER enthält zwei Thermohydraulikroutinen: Eine Routine zur Berechnung von Siede- und eine für Druckwasserreaktoren [70]. Aufgabe dieser Moduln ist die Bestimmung der Zustandsgrößen des Kühlmittels. Dichte bzw. Void und die Temperatur des Moderators sind unabhängige Variablen. Innerhalb der Thermohydraulikmoduln wird über die Massenstromverteilung des Kühlmittels iteriert. Bei gegebener Leistung und Kühlmittelstrom werden in jedem Knoten die Enthalpie, der Voidgehalt sowie der Druck berechnet. Die neue Massenstromverteilung erfolgt dann über die Bedingung des Druckausgleichs. Hieran schließt sich, mit den jetzt neuen Variablen, eine erneute Leistungsberechnung an, so daß damit die Rückkopplung zur Neutronik hergestellt ist. Diese Leistungs-Thermohydraulik-Iteration wird solange durchgeführt, bis der Multiplikationsfaktor und die Leistungsverteilung konvergiert sind.
- **Abbrandrechnung:** In einem weiteren Schritt wird der Brennstoffabbrand in SILWER berechnet. Er stellt ein weitere unabhängige Zustandsvariable, die aus BOXER übergeben wird, dar. Mit den verwendeten makroskopischen Querschnitten ergibt sich der Abbrand im betrachteten Zeitschritt aus dem Produkt von Leistungsdichte und Länge des Zeitschritts in Tagen. Ist der Zeitschritt in MWd/t_{SM} gegeben, so berechnet sich die Zeitschrittlänge in Tagen aus der Reaktorleistung und dem totalen Gewicht des Schwermetalls (SM) im Kern. Bei uranfreien Brennstoffen darf hier nur die Pu-Dichte berücksichtigt werden, da das Matrixmaterial sowie abbrennbare Gifte nicht zu den Schwermetallen zählen.
- **Giftdichte:** In Druckwasserreaktoren wird der kritische Reaktorzustand über die Bordichte im Moderator eingestellt. Aus diesem Grund sind die Borkonzentration und manchmal auch die Bor-Geschichte unabhängige Variablen. Die Borkonzentration, welche den gewünschten Eigenwert ergibt, wird in SILWER iterativ mit Hilfe eines Linearisierungsverfahrens bestimmt. Der hierfür benötigte Näherungswert ist ein Eingabeparameter des Programms.

Die lokalen Leistungsdichten, d.h. die Leistungsverteilung pro Brennstababschnitt, können in SILWER mit dem Unterprogramm PINPOW berechnet werden [71]. Allerdings ist dieses Modul z. Z. noch nicht vollständig in SILWER eingebunden, so daß nur nodale Abbrandwerte in der Pin-Power-Rechnung berücksichtigt werden. Auf die vorliegende

Arbeit hat dies einen geringen Einfluß, da hier hauptsächlich relative Effekte, z. B. Werte des eingesetzten Reaktorkerns im Verhältnis zum uranfreien Kern, betrachtet werden. In jedem Fall ist diese Vorgehensweise eher konservativ, da Leistungsspitzen in den Stäben nicht durch den Abbrand ausgeglichen werden.

Zusammengefaßt liegt so mit ELCOS ein komplettes und für die Berechnung von LWR getestetes Programmsystem vor [72]. Damit ist es relativ leicht möglich, verschiedene Brennstoffzusammensetzungen zu untersuchen und mit den Ergebnissen von Kernen herkömmlicher Uran- und MOX-Beladungen zu vergleichen. Diese Gegenüberstellungen bieten allerdings noch keine genügende Basis für eine Validierung zur Berechnung von uranfreien Brennstoffen. Weitergehende Untersuchungen zur Überprüfung der in Kapitel 4 bis 6 gefundenen Ergebnisse werden mit der Programmvalidierung in Kapitel 7 beschrieben.

4 Brennstoffauslegung

Für den Einsatz von Plutonium ohne Uran in bestehenden LWR ist es notwendig, das Plutonium zu verdünnen. In Abhängigkeit der Isotopenzusammensetzung des Plutoniums und bei vorgegebener Leistungsdichte sind Plutoniumdichten von rund 0.7 bis 0.9 g/cm³ Metall, entsprechend 0.79 bis 1.02 g/cm³ Oxid, notwendig, um bei Standzeiten von 1000 bis 1400 Vollasttagen (VLT) vergleichbare Energiemengen erzeugen zu können wie mit UO₂- oder MOX-Brennstoff. Zur Aufnahme bzw. Verdünnung des Plutoniums bedarf es einer neutronisch und chemisch inerten Matrix (IM), die neben dem Plutonium auch Spaltprodukte aufnimmt und zurückhält. Neutronisch inert bedeutet hier, daß die Matrix keinen oder nur einen unwesentlichen Einfluß auf die neutronenphysikalischen Eigenschaften des Brennstoffs hat. Mit der chemischen Inertheit ist gemeint, daß es zu keinerlei schädigenden Reaktionen mit dem Hüllrohr, oder in einem Störfall mit dem Moderator oder anderen Komponenten des Reaktors kommen kann. Durch das Fehlen der Absorption in ²³⁸U hat eine solche Brennstoffmischung aus inerter Matrix und PuO₂ einerseits eine hohe Anfangsreaktivität. Andererseits stellt sich auf Grund der großen Plutoniumdichte ein Spektrum ähnlich einem MOX-Spektrum, wie in Abbildung 2.2 dargestellt, ein. Damit ergeben sich niedrige Kontrollstab- und Borwerte. Um einen mit uranfreien Pu-Brennstoff betriebenen Reaktor kontrollieren zu können, ist es notwendig, die anfänglich zu hohe Reaktivität zu reduzieren. Hierfür werden abbrennbare Gifte (BP) verwendet, welche zu Abbrandbeginn (BOL) eine reaktivitätssenkende Wirkung haben und am Abbrandende (EOL) möglichst vollständig in neutronisch inerte Nuklide transmutiert sind. Auch das BP muß in die inerte Matrix eingebaut werden und darf deren Eigenschaften nicht negativ verändern. Es wird also eine Brennstoffzusammensetzung aus PuO₂, BP und inerter Matrix gesucht, die sicher in LWR eingesetzt werden kann und die es ermöglicht, einen großen Teil des eingesetzten Plutoniums durch Spaltung zu vernichten.

4.1 Neutronenphysikalische Brennstoffauslegung

Am PSI wurde 1993/94 eine erste Studie zur Auslegung und Machbarkeit von uranfreien Plutoniumbrennstoffen für LWR auf Zellebene durchgeführt [73]. Diese Arbeit stellte den Ausgangspunkt für die weitere Auslegung eines uranfreien Brennstoffs dar.

4.1.1 Geometrie und Material der Zell- und Brennelementrechnungen

Für die Zellrechnungen mit BOXER zur Untersuchung von verschiedenen Mischungen aus BP und Plutonium wurde die Geometrie von Brennstäben eines bestehenden DWR verwendet. Um eine für das ganze Brennelement repräsentative Zelle zu bestimmen,

wurde das Wasser in den Führungsrohren des Brennelements durch eine Vergrößerung des Gitterabstands simuliert. Das Zirkaloy der Abstandshalter und der Führungsrohre wurde dem Hüllrohr zugeschlagen. Die allen Zellen gemeinsamen Daten sind in Tabelle 4.1 wiedergegeben.

Tabelle 4.1: Gemeinsame Parameter aller untersuchten Zellen

Brennstoffdurchmesser:	9.13 mm	Vollast-Bedingungen:	
Hüllrohrmaterial:	Zircaloy	Brennstofftemperatur:	600.0°C
Innendurchmesser:	9.30 mm	Hüllrohrtemperatur:	315.0°C
Außendurchmesser:	10.915 mm	Wassertemperatur:	309.2°C
Gitterabstand:	15.058 mm	Druck:	154.0 bar
Bor im Wasser:	0 ppm	Leistungsdichte:	103 MW/m ³

Von den rund 20 betrachteten BP bzw. Mischungen verschiedener BP, die zusammen mit Plutonium untersucht wurden, sollen hier die Ergebnisse für fünf BP exemplarisch wiedergegeben werden. Die Pu-Dichte beträgt in allen Fällen 0.9 g/cm³ respektive 1.02 g/cm³ PuO₂. Die Trägermatrix besteht in allen Fällen aus ZrO₂ mit einer Dichte von 5.0 g/cm³. Die Dichte des BP ist so gewählt, daß sich die Eigenwerte der Zellen auf $k_{\infty} \cong 1.12$ am BOL unter den in Tabelle 4.1 genannten Vollast-Bedingungen (HFP) einstellen. Die verwendeten Dichten und die Isotopenzusammensetzungen der BP sind in Tabelle 4.2 wiedergegeben.

Tabelle 4.2: Dichte und Isotopen-Zusammensetzung der betrachteten abbrennbaren Neutronengifte

Eingesetztes BP	BP-Dichte g/cm ³	BP-Isotopen-Zusammensetzung	
		[at%]	Nukleonenzahl
Eu	0.04425	47.8/52.2	151/153
Gd ¹⁾	0.025	2.2/14.8/20.5/15.7/24.9/21.9	154/155/156/157/158/160
Er ²⁾	0.3	0.14/1.61/33.6/22.95/26.8/14.9	162/164/166/167/168/170
Ho	0.435	100	165
B	0.021	20.0/80.0	10/11

1) ¹⁵⁵Gd-Querschnitte wurden aus JENDL-2 [74] verwendet

2) Alle Querschnitte der Er-Isotope kamen aus der BROND-2 Bibliothek [48]

Neben diesen PuBP-Zellen wurden zwei LWR-Zellen zu Vergleichszwecken betrachtet. Die Referenzbrennstoffe sind:

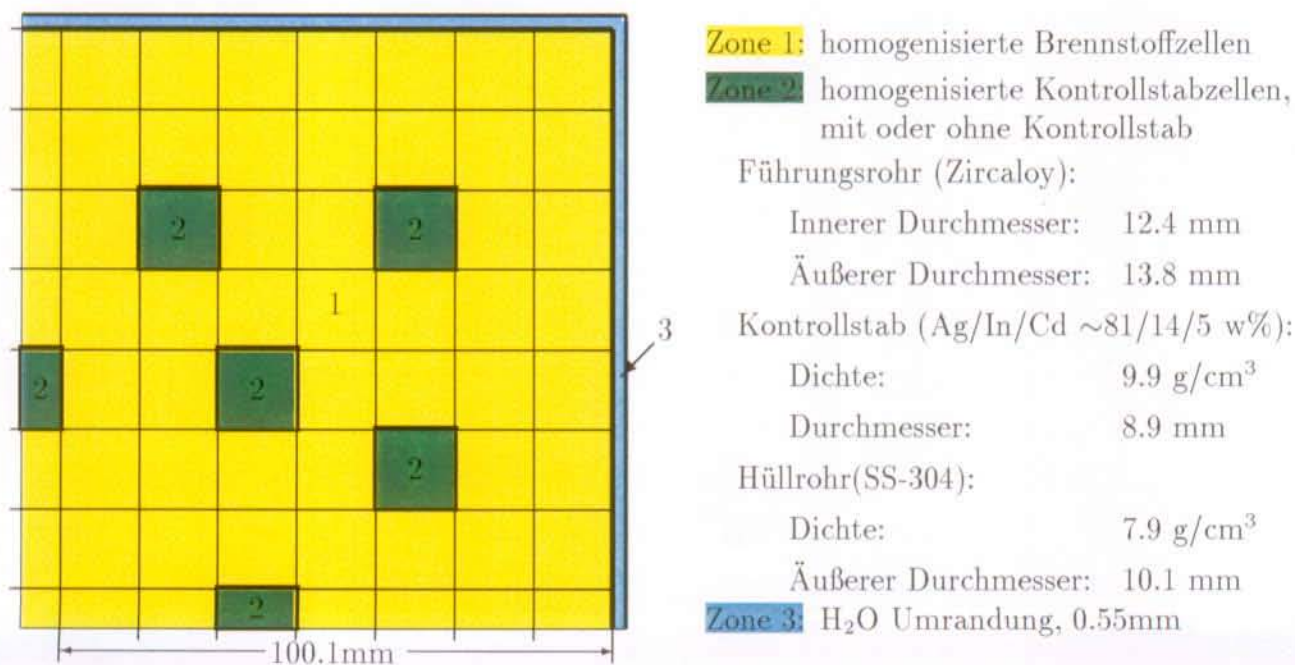
1. UO_2 -Brennstoff mit einer ^{235}U -Anreicherung von 4.3 w% sowie einer Dichte von 10.4 g/cm^3 und
2. MOX-Brennstoff mit 0.69 g/cm^3 Plutonium, das 71.2 w% Spaltmaterial enthält, sowie auf 0.25 % abgereichertes Uran. Die Brennstoffdichte beträgt 10.2 g/cm^3 .

Die Isotopenzusammensetzung des Plutoniums der PuBP-Zellen entspricht einem auf $\sim 42 \text{ GWd/t}_{SM}$ abgebrannten und wiederaufgearbeiteten UO_2 -Brennstoff nach fünf Jahren Abklingzeit [75]. Diese Zusammensetzung wird weiter unten der Referenz-MOX-Zelle⁴ gegenübergestellt:

	^{238}Pu	^{239}Pu	^{240}Pu	^{241}Pu	^{242}Pu
PuBP:	2.7 w%	54.5 w%	22.8 w%	11.7 w%	8.3 w%
MOX:	1.8 w%	59.0 w%	23.0 w%	12.2 w%	4.0 w%

Für die Untersuchung der Kontrollstabwerte (KSW) wurde ein 15×15 Brennelement mit 20 Steuerstabpositionen untersucht. Eine detaillierte Beschreibung dieses Brennelements ist in Abbildung 4.1 wiedergegeben.

Abbildung 4.1: Aufriß des zur Berechnung der Steuerstabwirksamkeiten verwendeten Viertel-Brennelements

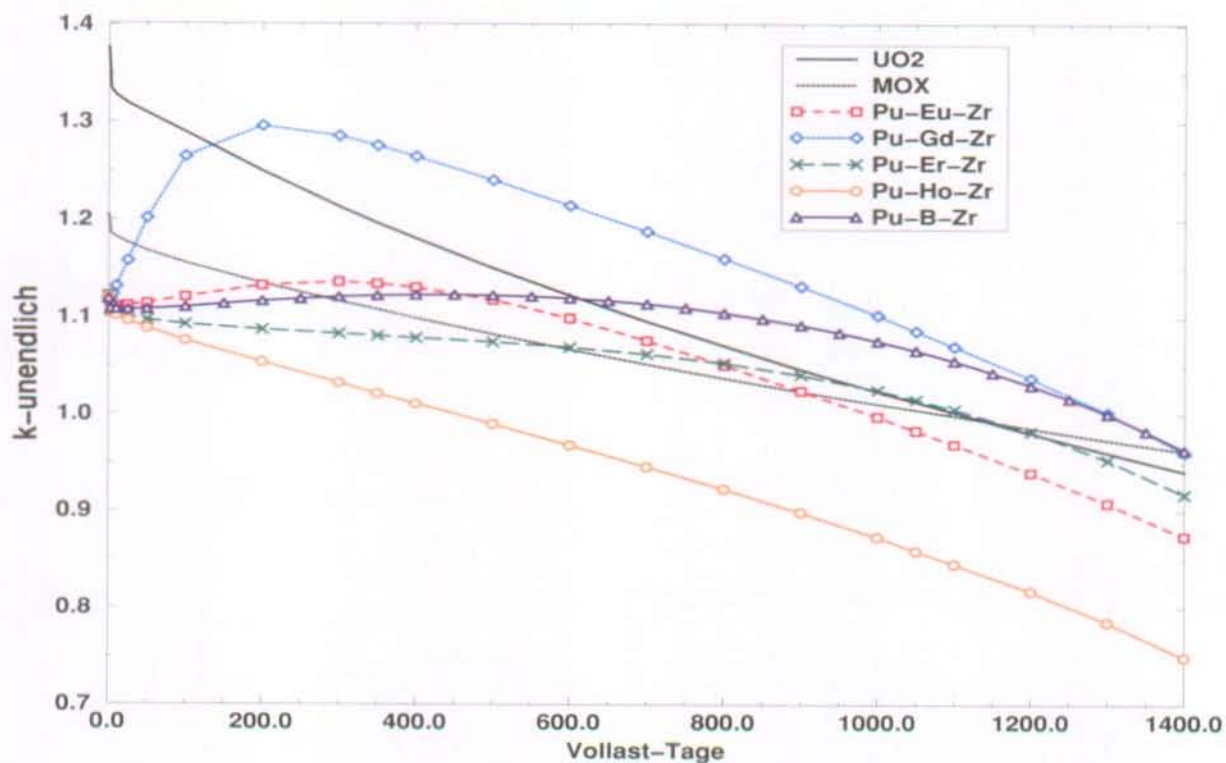


⁴Die Zusammensetzung des MOX-Plutoniums entspricht dem aus einem UO_2 -Brennstoff mit geringerem Abbrand [73]

4.1.2 Abbrandverhalten uranfreier Pu-Brennstoffe

Gesucht wird ein BP, das ermöglichen soll, mit uranfreien Plutoniumbrennstoffen ähnliche Standzeiten von rund 1400 VLT zu erzielen, wie mit den Referenzbrennstoffen UO_2 und MOX. Abbildung 4.2 stellt die zeitlichen Verläufe der Eigenwerte uranfreier Pu-Zellen mit verschiedenen BP denjenigen der Referenzzellen mit UO_2 - und MOX-Brennstoff gegenüber.

Abbildung 4.2: Gegenüberstellung der Eigenwerte k_∞ als Funktion der Standzeit von uranfreien Pu-Zellen mit verschiedenen BP sowie Zellen mit UO_2 - und MOX-Brennstoff.



Aufgrund der unterschiedlichen Absorptionsquerschnitte und Abbrandketten der BP weisen die Zellrechnungen große Abweichungen in den zeitlichen Reaktivitätsverläufen der verschiedenen PuBP-Brennstoffe auf. Es ist zu sehen, daß PuBP-Brennstoffe mit **Holmium** (Ho) als abbrennbares Gift zu kurzen Einsatzzeiten in einem LWR und damit zu einem geringen und auch unökonomischen Abbau des im Brennstoff enthaltenen Plutoniums führen würden. Der Grund hierfür ist einerseits der mit 64 barn relativ kleine thermische Absorptionquerschnitt von Ho und andererseits der Aufbau von ^{166}Er und ^{167}Er , die ihrerseits Neutronengifte sind. Hierdurch ergibt sich kaum eine Reduktion in der Absorption durch die BP zwischen BOL und EOL. Entsprechendes gilt auch für die BP wie Dysprosium (Dy), Hafnium (Hf), Indium (In), Iridium (Ir), Lutetium (Lu), Rhenium (Re) oder Rhodium (Rh). Andererseits weist Ho, wie in Kapitel 4.1.3 gezeigt wird, teilweise günstige Reaktivitätskoeffizienten auf.

Den günstigsten Reaktivitätsverlauf, bezüglich einer langen Standzeit, ergibt **Gadolinium** (Gd). So wäre es in diesem Fall auch mit weniger Plutonium möglich, Standzeiten von rund 1400 VLT zu erreichen. Die Gd-Isotope mit großen Absorptionsquerschnitten (^{155}Gd und ^{157}Gd) werden in den ersten 300 VLT in Gd-Isotope mit kleinen Einfangquerschnitten (^{156}Gd und ^{158}Gd) transmutiert, so daß die Reaktivität in den ersten 300 VLT zunimmt. Ein mit der Gd-Kurve qualitativ vergleichbarer Abbrandverlauf würde sich mit Cd als BP ergeben. Ein kleinerer Reaktivitätsanstieg über die ersten ca. 400 VLT erfolgt beim Einsatz von Eu als BP. Allerdings sind die Einfangprodukte stark absorbierend, so daß daraus ein relativ niedriger Eigenwert zum EOL resultiert. Ein qualitativ entsprechender Abbrandverlauf wie mit Eu, ergibt sich beim Einsatz von Sm; allerdings mit einem steileren Anstieg zu Abbrandbeginn und einem noch kleineren Eigenwert zum EOL [73, 76].

Ähnlich wie mit Gd als BP kommt es bei B kaum zu einem Reaktivitätsverlust zum EOL, so daß ein effektiver Pu-Abbau gewährleistet wäre. Im Gegensatz zu Gd ist die Abbrandkurve für B fast über der gesamten Einsatzzeit konstant, so daß mit B in den ersten 1100 VLT ein Teil der Reaktivität verschenkt würde. Materialtechnisch ungünstig ist B dadurch, daß die Absorption quasi ausschließlich aus (n,α) -Reaktionen kommt. Damit kann B nicht als homogen verteiltes BP eingesetzt werden, da es durch die He-Produktion zum Schwellen des Brennstoffs kommen würde.

Mit dem Einsatz von **Erbium** (Er) als BP ergibt sich ein ähnlich flacher Abbrandverlauf wie mit B, wobei die Er-Kurve allerdings ca. 5 % niedrigere Eigenwerte zum EOL aufweist. Mit Er als BP wie mit Eu, könnten mit Pu-Dichten von 0.9 g/cm^3 Standzeiten von 1300 bis 1400 VLT erreicht werden. Beim Einsatz von Gd oder B wäre dies auch mit weniger Pu möglich. Dagegen würde der Einsatz von BP mit relativ kleinen thermischen Absorptionsquerschnitten und stark absorbierenden Einfangprodukten, wie bei Ho, zu keinem effektiven Pu-Verbrauch führen und scheiden aus diesem Grund als BP quasi aus. Es besteht allerdings die Möglichkeit, BP zu mischen, um auf diesem Weg adäquate PuBP-Zellen zu erhalten. So wurde in [76] von den neutronenphysikalischen Vorteilen einer BP-Mischung aus B und Ho berichtet.

4.1.3 Reaktivitätskoeffizienten uranfreier Pu-Brennstoffe

Um beurteilen zu können, wie sich ein PuBP-Brennstoff auf Sicherheitsparameter und Kontrollierbarkeit eines DWR auswirkt, wurden die Reaktivitätskoeffizienten dieser Brennstoffe mit denen von UO_2 - und MOX-Brennstoff verglichen. Die Berechnung der Koeffizienten erfolgte nach:

$$\begin{aligned}
 C_i^x &= \frac{\Delta \rho}{\Delta x} \\
 &= \left\{ \frac{1}{k_i(x)} - \frac{1}{k_i(x + \Delta x)} \right\} \cdot \frac{1}{\Delta x}
 \end{aligned} \tag{4.1}$$

mit

C_i^x : Koeffizient vom Typ x, wobei x für Void oder BTK und i für ∞ oder effektiv steht

ρ : Reaktivität

x: aktueller Parameter, Void (prozentuale Änderung der Wasserdichte) oder Brennstofftemperatur

k_i : k_{eff} oder k_{∞}

Δ : Differenz

Der Brennstofftemperaturkoeffizient (BTK) für den Übergang von 600°C auf 1000°C Brennstofftemperatur und der Voidkoeffizient (VK) für den Übergang von 0 auf 10% Void wurden für eine unendliche Anordnung von Zellen berechnet, da hier der Einfluß der Leckage auf die Koeffizienten gering ist. Für den Übergang von 0 auf 100% Void wurden die Koeffizienten aus den k_{eff} -Werten einer Anordnung mit einem Buckling von 3.1 m^{-2} , entsprechend der Größe eines 1000 MW_e-DWR-Kernes, bestimmt. Der Grund sind die unterschiedlichen Änderungen der Migrationsflächen in den uranfreien Zellen einerseits und den Zellen mit Uran andererseits [76]. So sind die Migrationsflächen der PuBP-Zellen für 100% Void rund doppelt so groß wie die der UO₂- und MOX-Zellen, wohingegen die Migrationsflächen ohne Void in beiden Fällen ungefähr gleich groß sind. Aus diesem Grund würde die Betrachtung unendlicher Anordnungen beim Übergang auf 100% Void für die PuBP-Brennstoffe zu pessimistische Koeffizienten ergeben. In Tabelle 4.3 sind die berechneten BTK und VK der Zellen am BOL zusammengestellt.

Tabelle 4.3: Reaktivitätskoeffizienten der unterschiedlichen Brennstoffe für Zellen ohne Abbrand

Zell Typ	C_{∞}^{BTK} [pcm/°C]	$C_{\infty}^{Void}(0 \text{ auf } 10\%)$ [pcm/(% Void)]	$C_{eff}^{Void}(0 \text{ auf } 100\%)$ [pcm/(% Void)]
UO ₂	-1.7	-112	-921
MOX	-3.4	-159	-468
Eu	-0.7	-77	-26
Gd	-0.7	+74	+38
Er	-1.7	-121	-29
Ho	-1.7	-192	-196
B	-0.7	-46	-24

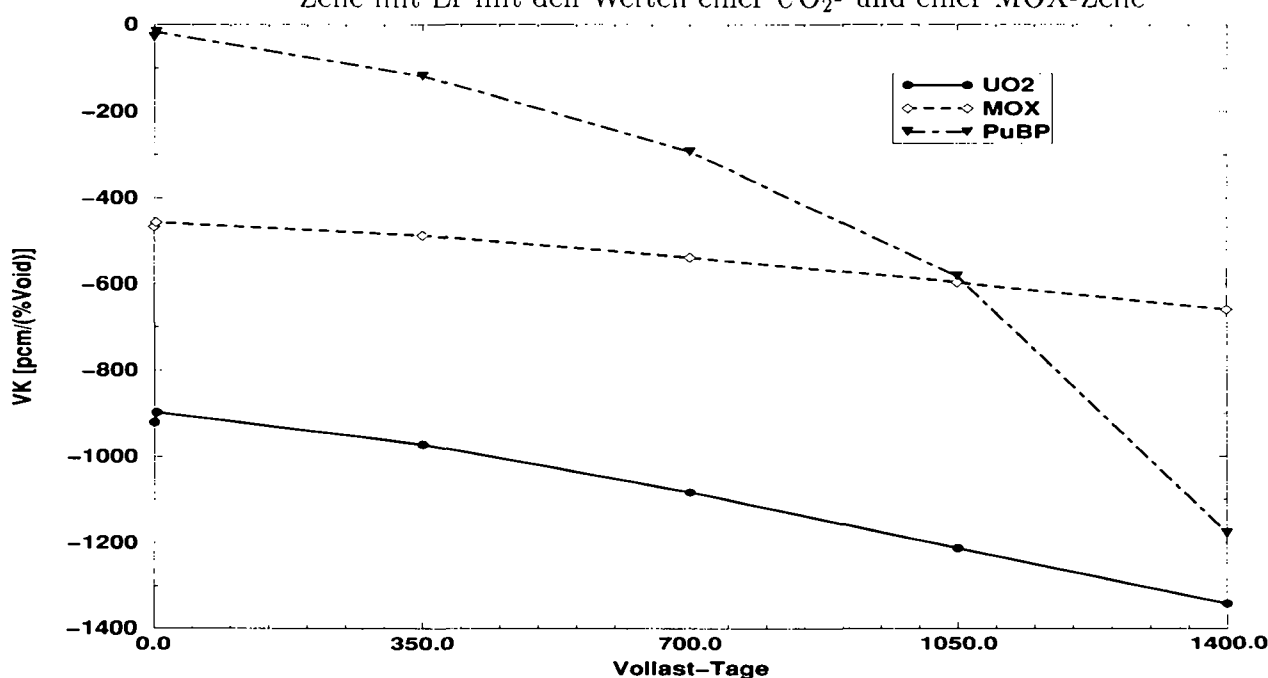
Es wurde kein Bor im Moderator berücksichtigt

Gerade die BP, welche in Kapitel 4.1.2 zu guten Abbrandkurven führen, weisen z. T. schlechte Reaktivitätskoeffizienten auf. Insbesondere Gd hat, als Folge des großen thermischen Querschnittes von ^{155}Gd und ^{157}Gd , einen positiven Voidkoeffizienten. Im Fall des Übergangs von 0 auf 10% Void liefert Gd einen Beitrag von +115 pcm/(% Void) als Folge der Verhärtung des Neutronen-Spektrums durch geringere Moderation. Im Vergleich dazu trägt Er zu diesem Koeffizienten -49 pcm/(% Void) bei. Daß C_{∞}^{Void} (0 auf 10%) für Gd als BP in Tabelle 4.3 weniger positiv ausfällt, liegt an den negativen Beiträgen des Plutoniums.

Ähnliche Effekte führen zu weniger negativen BTK in den Zellen mit B und Eu als in denjenigen mit Er und Ho. Hier spielen zwei unterschiedliche Einflüsse eine Rolle: Zum einen der Dopplereffekt bei Nukliden mit bedeutender Resonanzabsorption und andererseits die leichte Verhärtung des thermischen Spektrums, hervorgerufen durch die Erhöhung der Brennstofftemperatur. Nur Er und Ho haben ähnliche Koeffizienten wie die beiden Referenz-Zellen, wobei, wie schon erwähnt, Ho die schlechteste Abbrandkurve der hier vorgestellten BP aufweist.

Die verhältnismäßig kleinen Voidkoeffizienten der PuBP-Brennstoffe für den Übergang von 0 auf 100% Void gelten nur zum BOL. Abbildung 4.3 zeigt am Beispiel von Er als BP C_{eff}^{Void} als Funktion des Abbrands⁵

Abbildung 4.3: Verlauf der Voidkoeffizienten (VK) für den Übergang von 0 auf 100% Void über dem Abbrand. Verglichen werden die Werte einer PuBP-Zelle mit Er mit den Werten einer UO_2 - und einer MOX-Zelle



⁵Der Einsatz von 1200 ppm Bor würde den VK für den Übergang von 0 auf 100% Void um rund 30 pcm/(%Void) am BOL bis 60 pcm/(%Void) für 1050 Vollast-Tagen vergrößern.

Hieraus geht hervor, daß die Reduktion des Voidkoeffizienten der PuBP-Zellen mit dem Abbrand ausgeprägter ist als in den Zellen mit UO_2 - oder MOX-Brennstoff. In Tabelle 4.4 werden die Voidkoeffizienten und der BTK der PuEr-Zelle zum EOL mit denjenigen der UO_2 - und der MOX-Zelle verglichen. Beide Voidkoeffizienten der uranfreien Zelle sind betragsmäßig fast so groß bzw. größer als die Koeffizienten der Referenz-Zellen.

Tabelle 4.4: Reaktivitätskoeffizienten einer Pu-Er-Zelle, einer UO_2 - und einer MOX-Zelle am EOL im Vergleich.

Zell Typ	C_{∞}^{BTK} [pcm/°C]	$C_{\infty}^{Void}(0 \text{ auf } 10\%)$ [pcm/(% Void)]	$C_{eff}^{Void}(0 \text{ auf } 100\%)$ [pcm/(% Void)]
UO_2	-3.3	-255	-1341
MOX	-3.4	-257	-660
Er	-1.9	-255	-1177

Zusammengefaßt haben damit PuBP-Zellen ähnliche Voidkoeffizienten zum Abbrandende wie UO_2 -Zellen und negativere Werte als Zellen mit MOX-Brennstoff. Allerdings unterliegt die Berechnung des Voidkoeffizienten für den Übergang von 0 auf 100% Void auf Grund von Unsicherheiten in den Zr- und Er-Daten einer gewissen Schwankungsbreite, welche aber wesentlich kleiner ist als die Reduktion des Voidkoeffizienten mit dem Abbrand. Es kann also davon ausgegangen werden, daß auch Vollkerne, die ausschließlich mit PuBP-Brennstoff beladen sind, immer einen negativen VK aufweisen werden, so wie dies auch in [77] gezeigt wurde. Diese Unsicherheiten aus den Daten bezüglich der Berechnung der VK werden in Kapitel 7.3.3 eingehend untersucht. Anders als beim VK sieht es hingegen mit dem Brennstofftemperaturkoeffizienten aus. Dieser bleibt in den uranfreien Brennstoffen während des Abbrands relativ konstant und ist weniger negativ als in den Vergleichszellen. Es sind demnach BP zu bevorzugen, die den Dopplereffekt noch verstärken, wie z. B. Er. Dieses BP trägt zum BOL mit $\sim 27\%$ zum Brennstofftemperaturkoeffizienten bei. Der restliche BTK kommt im wesentlichen aus den geraden Plutoniumisotopen ^{240}Pu und ^{242}Pu .

4.1.4 Regel- und Kontrollparameter uranfreier Brennstoffe

Mit zunehmender Anzahl von MOX-BE im Kern sinken die Kontrollabsorberwerte des Bors im Moderator sowie die der Kontroll- und Abschaltstäbe. Dies stellt eines der Hauptprobleme beim Übergang zu 100% MOX-Beladungen dar [13, 14, 16]. Wie in Kapitel 2.1 erwähnt, liegt der Grund hierfür in den großen Absorptionsquerschnitten des Plutoniums und der dadurch verursachten Härtung des Neutronenspektrums. Mit dem Einsatz

von uranfreien Brennstoffen, und den zum BOL noch größeren Pu-Mengen als im MOX-Brennstoff, ist davon auszugehen, daß auch hier die Kontrollabsorberwerte verringert werden. In Tabelle 4.5 sind die wichtigsten Größen zusammengestellt, die für die Regelung eines Reaktors entscheidend sind. Die Kontrollanforderungen und die Borwerte stammen aus entsprechenden Zellrechnungen. Hingegen basieren die Kontrollstabwerte (KSW) auf Rechnungen, in denen die in Abbildung 4.1 dargestellte BE-Geometrie ohne und mit Kontrollstäben berücksichtigt wurde.

Tabelle 4.5: Vergleich von typischen Kontrollanforderungen und Kontrollabsorberwerten für PuBP- sowie für UO₂- und MOX-Brennstoffe zum BOL

Cell Type	Kontrollanforderung		Kontrollabsorberwerte	
	Xe-Gleichgew. $\Delta \rho_{\infty}^{Xe} [\%]$	HFP zu 20°C ^{a)} $\Delta \rho_{\infty}^{20^{\circ}C} [\%]$	gelöstes Bor $C_{\infty}^{Bor} [\text{pcm}/(\text{ppm B})]$	Kontrollstäbe ($\Delta k_{\text{eff}}, \%$)
UO ₂	+2.4	+4.0	-5.4	-32.6
MOX	+1.4	+6.2	-2.6	-20.8
Eu	+1.0	+2.0	-2.3	-17.5
Gd	+0.2	-8.1	-1.8	-16.2
Er	+1.2	+5.5	-2.6	-17.9
Ho	+1.2	+7.0	-2.5	-19.1
B	+0.8	+0.8	-2.2	-17.2

^{a)} mit Xe

Ähnlich wie bei MOX, fallen auch bei den PuBP-Brennstoffen die Auswirkungen des Xe-Aufbaus geringer aus als bei der Nutzung von UO₂. Dagegen ergibt sich für den Übergang vom HFP auf 20°C ein recht unterschiedliches Bild. Bei MOX fällt auf Grund der stärkeren Untermoderation und der Anwesenheit des Plutoniums der Reaktivitätsanstieg um über 50% höher aus als bei UO₂-Brennstoff. Dieser Anstieg der Reaktivität, als Effekt der besseren Moderation durch die größere Wasserdichte, wird zu einem Teil von den BP kompensiert und im Fall von Gd sogar überkompensiert. Die Werte $\Delta \rho_{\infty}^{20^{\circ}C}$ müssen im Zusammenhang mit der Wirksamkeit der Kontrollstäbe gesehen werden, da es ausschließlich mit Kontrollstäben möglich sein muß, den Reaktor von HFP in den Zustand heißer Nulleistung (HZP) herunterzufahren. So sind zwar, wie bei MOX, auch bei den PuBP-Brennstoffen die KSW kleiner als bei UO₂. Allerdings sind auch die Anforderungen geringer im Vergleich zu MOX, wenn von Ho als BP einmal abgesehen wird. Ein

von uranfreien Brennstoffen, und den zum BOL noch größeren Pu-Mengen als im MOX-Brennstoff, ist davon auszugehen, daß auch hier die Kontrollabsorberwerte verringert werden. In Tabelle 4.5 sind die wichtigsten Größen zusammengestellt, die für die Regelung eines Reaktors entscheidend sind. Die Kontrollanforderungen und die Borwerte stammen aus entsprechenden Zellrechnungen. Hingegen basieren die Kontrollstabwerte (KSW) auf Rechnungen, in denen die in Abbildung 4.1 dargestellte BE-Geometrie ohne und mit Kontrollstäben berücksichtigt wurde.

Tabelle 4.5: Vergleich von typischen Kontrollanforderungen und Kontrollabsorberwerten für PuBP- sowie für UO₂- und MOX-Brennstoffe zum BOL

Cell Type	Kontrollanforderung		Kontrollabsorberwerte	
	Xe-Gleichgew. $\Delta \rho_{\infty}^{Xe}$ [%]	HFP zu 20°C ^{a)} $\Delta \rho_{\infty}^{20^{\circ}C}$ [%]	gelöstes Bor C_{∞}^{Bor} [pcm/(ppm B)]	Kontrollstäbe (Δk_{eff} ,%)
UO ₂	+2.4	+4.0	-5.4	-32.6
MOX	+1.4	+6.2	-2.6	-20.8
Eu	+1.0	+2.0	-2.3	-17.5
Gd	+0.2	-8.1	-1.8	-16.2
Er	+1.2	+5.5	-2.6	-17.9
Ho	+1.2	+7.0	-2.5	-19.1
B	+0.8	+0.8	-2.2	-17.2

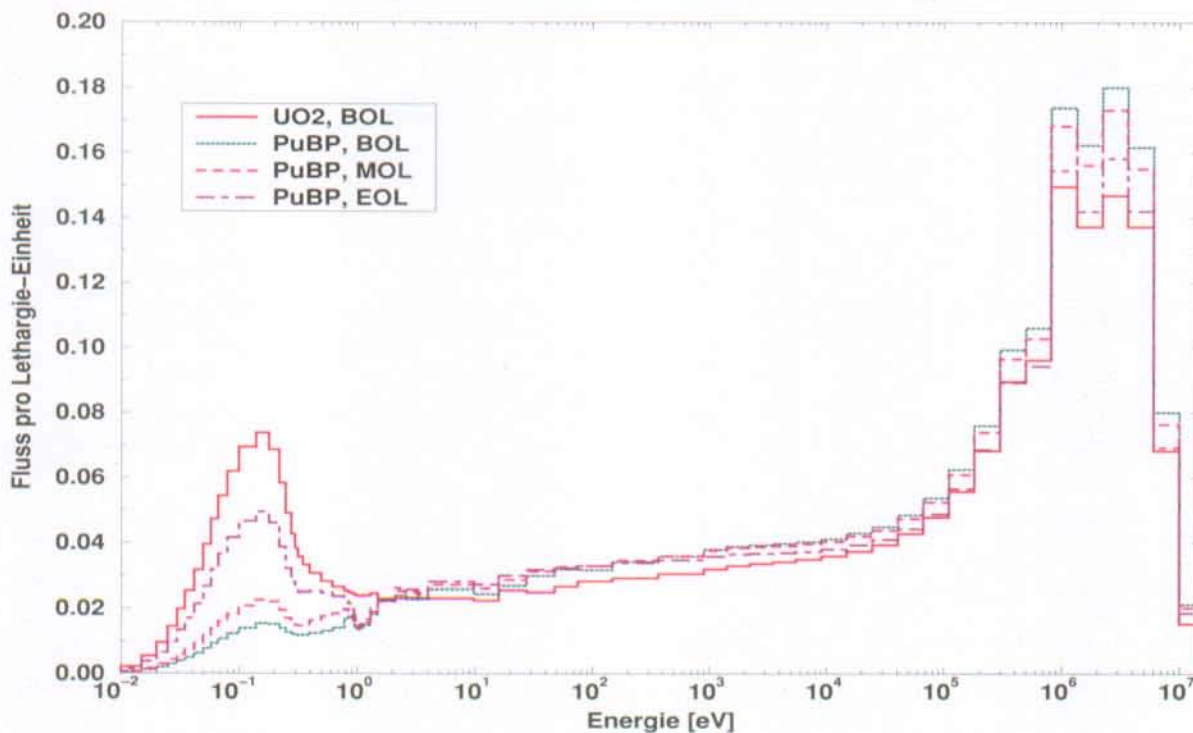
^{a)} mit Xe

Ähnlich wie bei MOX, fallen auch bei den PuBP-Brennstoffen die Auswirkungen des Xe-Aufbaus geringer aus als bei der Nutzung von UO₂. Dagegen ergibt sich für den Übergang vom HFP auf 20°C ein recht unterschiedliches Bild. Bei MOX fällt auf Grund der stärkeren Untermoderation und der Anwesenheit des Plutoniums der Reaktivitätsanstieg um über 50% höher aus als bei UO₂-Brennstoff. Dieser Anstieg der Reaktivität, als Effekt der besseren Moderation durch die größere Wasserdichte, wird zu einem Teil von den BP kompensiert und im Fall von Gd sogar überkompensiert. Die Werte $\Delta \rho_{\infty}^{20^{\circ}C}$ müssen im Zusammenhang mit der Wirksamkeit der Kontrollstäbe gesehen werden, da es ausschließlich mit Kontrollstäben möglich sein muß, den Reaktor von HFP in den Zustand heißer Nulleistung (HZP) herunterzufahren. So sind zwar, wie bei MOX, auch bei den PuBP-Brennstoffen die KSW kleiner als bei UO₂. Allerdings sind auch die Anforderungen geringer im Vergleich zu MOX, wenn von Ho als BP einmal abgesehen wird. Ein

entsprechendes Bild ergibt sich für die Borwerte. Der Reaktivitätseffekt des im Moderator gelösten Bors ist in den PuBP-Zellen, wie bei MOX, geringer als in der UO_2 -Zelle. Dafür ist aber auch die Überschubreaktivität am BOL nur rund halb so groß wie beim Einsatz von MOX, siehe auch Abbildung 4.2.

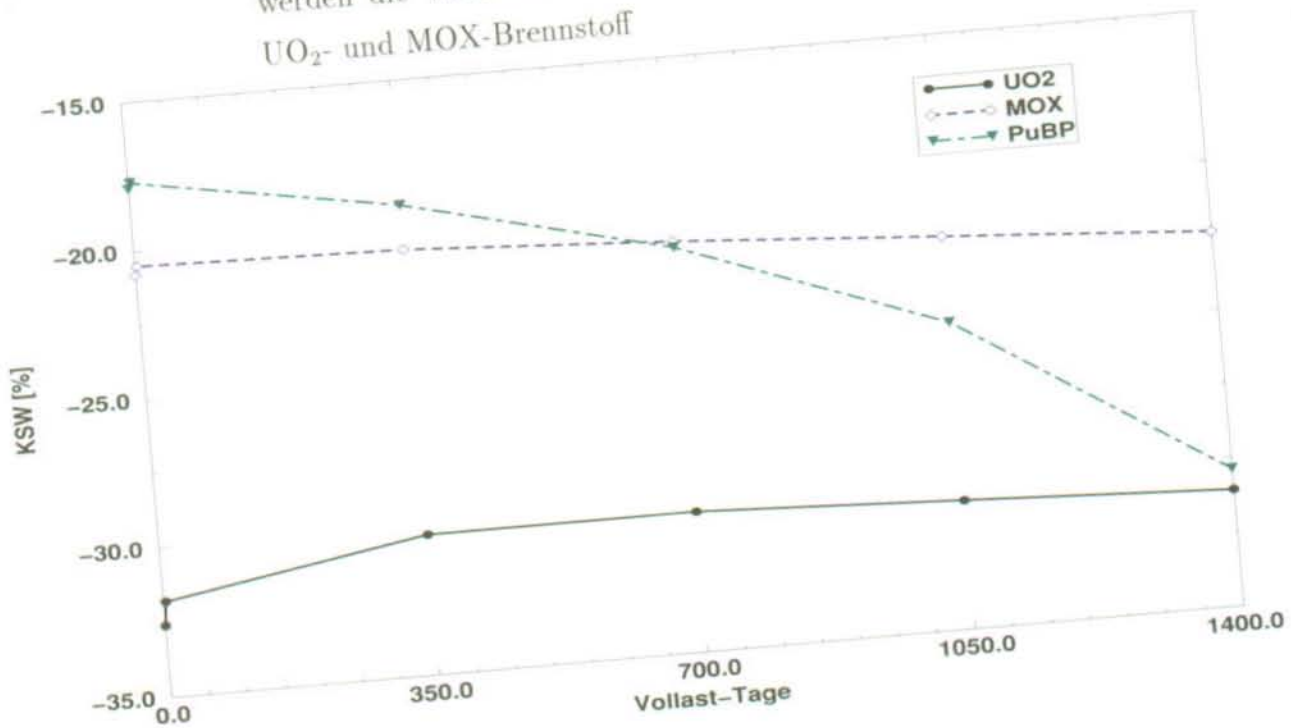
Die Reduktion der Kontrollabsorberwerte ist, wie oben angesprochen, eine Folge des härteren Spektrums durch den Einsatz von Plutonium und teilweise auch der BP. Im Gegensatz zu UO_2 - oder MOX-Brennstoff unterliegt allerdings das Spektrum der PuBP-Brennstoffe starken Änderungen mit dem Abbrand, wie in Abbildung 4.4 am Beispiel eines uranfreien Pu-Brennstoffs mit Er als BP zu sehen ist.

Abbildung 4.4: Spektren einer PuBP-Zelle mit Er als BP in einer unendlichen Anordnung zum BOL, Mitte der Standzeit (MOL) und EOL. Zum Vergleich ist das Spektrum einer UO_2 -Zelle zum BOL aufgeführt.



Bedingt durch den Abbau des Plutoniums und des BP reduziert sich im PuBP-Brennstoff der thermische Absorptionsquerschnitt. Dies führt zu einer verstärkten Thermalisierung der Neutronen mit dem Abbrand. Im Gegensatz dazu ändern sich die Spektren der Referenzbrennstoffe, wegen der Anwesenheit des ^{238}U , nur wenig mit dem Abbrand, so wie in Abbildung 2.2 zu sehen ist. Als Folge der Thermalisierung mit dem Abbrand steigen die Kontrollabsorberwerte für die uranfreien Brennstoffe viel stärker als bei UO_2 und MOX an. Das ist in Abbildung 4.5 am Beispiel der Kontrollstabwerte einer PuBP-Zelle mit Er dargestellt.

Abbildung 4.5: Verlauf der Kontrollstabwerte (KSW) mit dem Abbrand. Verglichen werden die Werte für PuBP-Brennstoff mit Er mit den Werten für UO₂- und MOX-Brennstoff



Gleiches gilt für die Borwerte, womit die Kontrollabsorberwerte für die PuBP-Brennstoffe im Mittel gleich bzw. größer sind als beim MOX-Brennstoff. Tabelle 4.6 faßt am Beispiel eines PuEr-Brennstoffs die für die Regelung eines Reaktors wichtigen Werte zum EOL zusammen.

Tabelle 4.6: Vergleich von typischen Kontrollanforderungen und Kontrollabsorberwerten für PuBP-Brennstoff mit Er sowie für UO₂- und MOX-Brennstoff zum EOL

Cell Type	Kontrollanforderung		Kontrollabsorberwerte	
	Xe-Gleichgew. $\Delta \rho_{\infty}^{Xe}$ [%]	HFP zu 20°C ${}^a) \Delta \rho_{\infty}^{20^{\circ}C}$ [%]	gelöstes Bor C_{∞}^{Bor} [pcm/(ppm B)]	Kontrollstäbe (Δk_{eff} ,%)
UO ₂	+4.2	+6.3	-7.6	-31.1
MOX	+2.1	+7.5	-3.9	-22.4
Er	+2.6	+3.0	-8.5	-30.4

^{a)} mit Xe

Aus dem Vergleich mit Tabelle 4.5 geht hervor, daß für die beiden Referenzbrennstoffen der Reaktivitätsanstieg für den Übergang von HFP zu 20°C mit dem Abbrand zunimmt. Hingegen verringert sich der Reaktivitätsanstieg für die PuBP-Brennstoffe. Der Grund liegt im Aufbau von Plutonium im UO_2 - bzw. dem größeren Anteil der geraden Pu-Isotope zum EOL im MOX-Brennstoff. Die relative Absorption dieser geraden Pu-Isotope ist im HFP-Zustand höher als unter kalten Bedingungen, da sich das Maximum der thermischen Neutronen mit dem Übergang von HFP zu 20°C hin zu niedrigeren Energien verschiebt und damit weg von den Resonanzen bei 1.0 und 2.7 eV von ^{240}Pu bzw. ^{242}Pu . Gleichzeitig kommt es zu mehr Spaltungen im ^{239}Pu und ^{241}Pu . Der entsprechende positive Reaktivitätsbeitrag ist zum EOL größer, da hier die Konzentrationen der geraden Pu-Isotope die höchsten Werte aufweisen. Beim PuEr-Brennstoff ergibt sich hier eine Abnahme der Kontrollanforderung. Diese begründet sich mit dem starken Abbau des Plutoniums, insbesondere der spaltbaren Pu-Isotope, sowie des Er und der damit verbundenen starken Veränderung des Neutronenspektrums.

Das Spektrum in UO_2 - und MOX-Brennstoffen ändert sich mit dem Abbrand nur unwesentlich, so daß hier, wie früher gezeigt, nur kleine Änderungen in den Kontrollabsorberwerten zwischen BOL und EOL festzustellen sind. Im Gegensatz dazu steigen im Fall der PuBP-Brennstoffe, auf Grund des weicheren Neutronenspektrums zum EOL, die Kontrollabsorberwerte. Dieses Ergebnis deutet an, daß am Ende eines Reaktorzyklusses das Herunterfahren des Reaktors von HFP- zu HZP-Bedingungen mittels Steuerstäben kein Problem darstellen sollte. Dies bedeutet einen klaren Vorteil gegenüber MOX-Brennstoff [16].

Zusammengefaßt ist aus neutronenphysikalischer Sicht **Erbium** mit einer Dichte von 0.3 g/cm^3 eines der wenigen BP, welches sowohl ein befriedigendes Abbrandverhalten als auch vertretbare Reaktivitätskoeffizienten und Kontrollabsorberwerte aufweist. Wie erwähnt, können ähnliche Ergebnisse nur durch eine Mischung aus Bor und Holmium erzielt werden [76], oder würden sich mit Mischung aus Gadolinium und Thorium ergeben. Allerdings spielen bei der Auswahl der Brennstoffzusammensetzung nicht nur neutronenphysikalische sondern auch materialtechnische Überlegungen eine Rolle.

4.2 Materialtechnische Aspekte

Um sicherzustellen, daß eine neutronenphysikalisch verwendbare Materialzusammensetzung auch tatsächlich unter realen Bedingungen in einem Reaktor eingesetzt werden kann, wurden Materialauswahl und Untersuchung des neuen Brennstoffs zusammen mit dem Labor für Werkstoffe und nukleare Verfahren des PSI getroffen und durchgeführt [78, 79]. Insbesondere die inerte Trägermatrix spielt in diesem Zusammenhang eine entscheidende Rolle. Wichtige Punkte bei der Matrixauswahl waren:

- **Neutronische Inertheit:** Die Teilchendichte des Trägermaterials wird im uranfreien Brennstoff wesentlich größer sein als die der anderen Materialien. Deshalb sollten die thermischen Absorptionsquerschnitte des Matrixmaterials unter 0.2 barn im Energiebereich zwischen 0.01 und 1.0 eV liegen, so daß die Matrix als neutronisch inert bezeichnet werden kann.
- **Temperaturbeständigkeit:** Wärmeleitfähigkeit, spezifische Wärme und Schmelztemperatur, bzw. die Temperatur, bei der es zu einer Phasenänderung kommt, sollten bei geeigneter Brennstabauslegung dem UO_2 äquivalente Stabileistungen sicherstellen.
- **Chemische Inertheit:** Die Matrix bzw. der neue Brennstoff sollte sich neutral gegenüber Hüllrohr und Moderator bis zu Temperaturen von 300 bis 500°C verhalten.
- **Stabilität unter Bestrahlung:** Die Matrix muß Actinide, Spaltprodukte sowie BP aufnehmen. Diese Stoffe sollten von der Matrix auch unter Bestrahlungsbedingungen nicht freigegeben werden. Unter den erprobten und heute eingesetzten Kernbrennstoffen ist die kubische Kristallstruktur vorherrschend, welche sich unter Bestrahlungsbedingungen als stabil erwiesen hat. Diese Kristallstruktur erlaubt zudem relativ problemlos die Aufnahme von weiteren Materialien.
- **Endlagerfähigkeit:** Der hier zu entwickelnde Brennstoff soll nicht rezykliert, sondern direkt endgelagert werden. Hierfür muß der bestrahlte Brennstoff eine günstige Matrix für das Endlager darstellen. Materialien, die „steinähnliche“ Eigenschaften aufweisen, so wie von Muromura u. a. [31] vorgestellt, würden ein großes Rückhaltevermögen der Radionuklide des abgebrannten Brennstoffs im Endlager gewährleisten.

In Tabelle 4.7 sind die Stoffe, die vorab für den Einsatz als inerte Matrix (IM) geeignet erschienen, sowie ihre Eigenschaften zusammengestellt. Zu Vergleichszwecken werden hier

ebenfalls die Kennzahlen von UO_2 aufgeführt.

Tabelle 4.7: Eigenschaften verschiedener Inert-Matrix-Materialien (IM) im Vergleich zu UO_2 . Die Daten stammen aus [51] und [80] bis [85]

IM Material	Theoretische Dichte [g/cm ³]	Schmelz- oder Sublimationstemp. [°C]	Wärmeleitfähigkeit ^{a)} [W·K ⁻¹ ·m ⁻¹]	Wärmeausdehnungskoeffizient, $\alpha_{20,1000}$ [10 ⁻⁶]	$\sigma_{abs,th}$ [barn]
Al_2O_3	4.0	2000	5.2	9.8	0.23
BeO	3.0	2550	21.0	10.8	0.01
MgO	3.6	2800	6.8	15.6	0.063
Y_2O_3	5.0	2410	3.0	9.1	1.28
ZrO_2	5.6	2770	2.0	10.1	0.19
ZrC	6.7	3540	~30	6.7	0.19
UO_2	10.9	2800	3.0	12.3	7.6

^{a)} für 1000°C

4.2.1 Matrixwahl bezüglich neutronischer Inertheit

Im Gegensatz zu UO_2 entsteht durch Neutroneneinfang bei den hier betrachteten IM-Materialien kein neuer Spaltstoff. Aus Gründen der Neutronenökonomie ist es daher notwendig, daß es in der Matrix zu so wenig Neutroneneinfängen wie möglich kommt. Eine Matrix aus reinem Y_2O_3 würde schon zu einer merklichen Verschlechterung des Abbrandverhaltens führen.

Ein sehr interessanter inerte Matrix-Kandidat schien dagegen **BeO** wegen seines niedrigen Absorptionsquerschnitts zu sein. Hierzu kommen die (n,2n)-Reaktionen von Be, wodurch der Verlust von Neutronen durch die Matrix nochmals reduziert wird. Damit ergibt sich mit einer BeO-Matrix ein um ~1.5 % höherer Eigenwert als bei der Verwendung der anderen Materialien [78]. Ein weiteres Merkmal von BeO ist seine moderierende Wirkung, die sich positiv auf den Voidkoeffizienten bei hohen Voidanteilen auswirkt [76].

Alle anderen IM-Kandidaten, wie Al_2O_3 , **MgO**, ZrO_2 und **ZrC** weisen kaum Unterschiede in ihrem neutronenphysikalischen Verhalten auf. Mit all diesen Materialien als Matrix wäre es ebenso wie mit BeO möglich, Plutonium in einem LWR effektiv zu reduzieren.

4.2.2 Matrixwahl bezüglich chemischer Inertheit und Bestrahlungsstabilität

Die große Wärmeleitfähigkeit und der relativ hohe Schmelzpunkt sind weitere Vorteile, die **BeO** als interessante Matrix erscheinen ließen. Allerdings weist BeO gravierende Nachteile auf, wie (n,α) -Reaktionen, die zu einem Schwellen des Brennstoffs führen würden [86]. Desweiteren ist BeO wasserlöslich und chemisch außerordentlich toxisch, so daß ein Einsatz von BeO als inerte Matrix aus diesen Gründen kaum in Frage kommt.

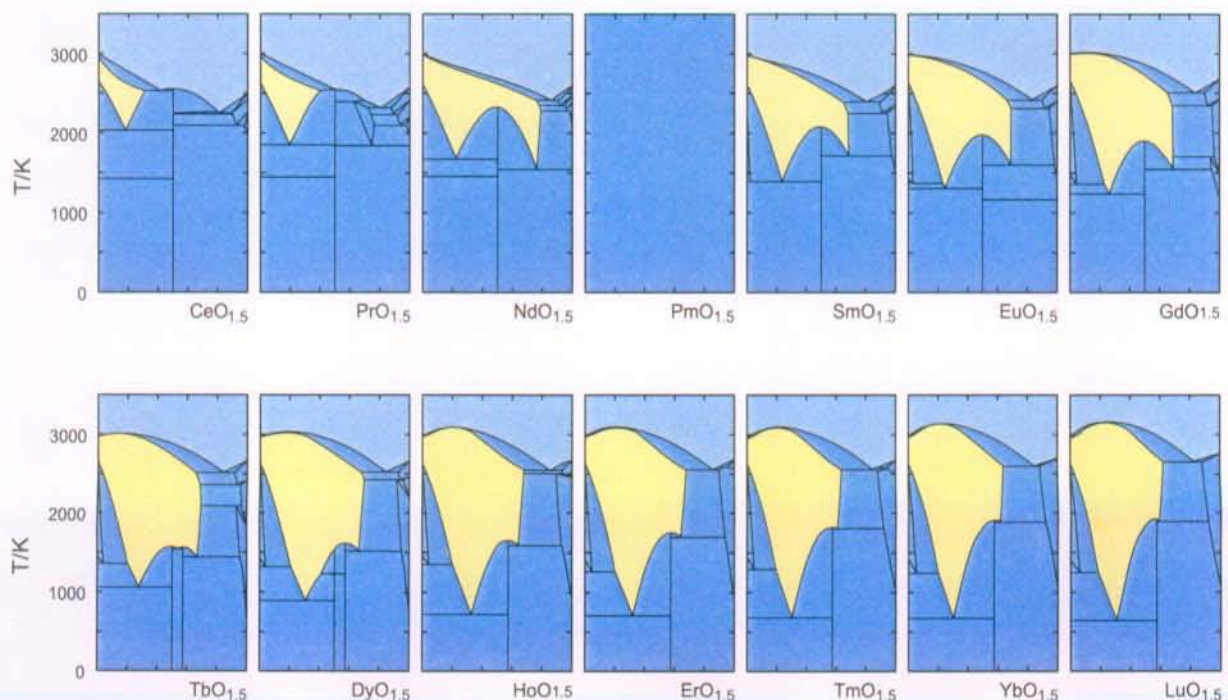
Ebenfalls interessante Eigenschaften nach Tabelle 4.7 weist **MgO** auf. Im Gegensatz zu BeO verhält es sich unter Bestrahlung stabil [86]. Indes reagiert MgO aber mit Wasser, so daß Hüllrohrschäden zu einer ungewollten Freisetzung von Teilen des Brennstoffs führen könnten.

Damit es im Brennstoff zu keinen inneren Spannungen kommt, sollte es über den gesamten vorkommenden Temperaturbereich zu keinen Phasenänderungen kommen. **Al₂O₃** weist z. B. parallel zur Temperaturverteilung im Pellet, mit einer Zentraltemperatur von rund 1500°C und einer Randtemperatur von ca. 450°C, mehrere verschiedene Phasen auf. Dies würde aber, auf Grund der unterschiedlichen Ausdehnungskoeffizienten in den verschiedenen Kristallstrukturen, zu inneren Spannungen und somit zur Zerstörung des Brennstoffs führen. Auch zeigte sich, daß Al₂O₃ unter Betrahlung mit Neutronen instabil ist [87].

Interessante Eigenschaften weist in diesem Zusammenhang **ZrO₂** auf. Wie in [88] berechnet, ergeben sich für ZrO₂ mit verschiedenen Lanthaniden kubisch raumzentrierte Gitterstrukturen, so wie in Abbildung 4.6 dargestellt.

Abbildung 4.6: Berechnete, aus [88] übernommene Phasendiagramme von Mischungen aus ZrO₂ und Oxiden verschiedener Lanthanide LnO_{1,5}

■ = kubische Gitterstruktur



Es ist zu erkennen, daß das monokline und tetragonale ZrO_2 durch Oxide schwerer Lanthanide, wie z. B. Er_2O_3 , in kubische Systeme stabilisiert wird. Wie in [78] gezeigt wird, stabilisieren nicht nur diese Seltenen Erden ZrO_2 zu einer festen Lösung, sondern auch PuO_2 und ein Großteil der Spaltprodukte. Des weiteren verträgt sich ZrO_2 mit Zircaloy, so daß eine ZrO_2 -Matrix auch kompatibel mit dem Hüllrohr wäre. Gleichfalls deuten Bestrahlungsversuche, deren Ergebnisse in [89] zusammengefaßt sind, darauf hin, daß auf ZrO_2 basierende Materialien ein relativ stabiles Bestrahlungsverhalten aufweisen.

ZrC zeigt ebenfalls interessante Eigenschaften als inerte Matrix auf, wie z. B. eine bei Karbiden übliche kubische Gitterstruktur. Desweiteren hat es eine zehnfach höhere Wärmeleitfähigkeit als UO_2 , einen um 700°C höheren Schmelzpunkt und ist gegen Wasser auch bei hohen Temperaturen beständig [90]. Allerdings sind Karbide in der Regel schwer zu bearbeiten. Auch ist wenig über das Verhalten von **ZrC** unter Neutronenbestrahlung bekannt. Aufgrund dieser ungeklärten Fragen konzentrierten sich die Untersuchungen erst einmal auf ZrO_2 .

Als Mehrphasensysteme sind **MgAl₂O₄** als Spinell und Metallkeramiken aus **ZrO₂ + Zr** als Cermet denkbare Materialien für eine inerte Matrix. Diese Materialien weisen besonders Vorteile bei der Wärmeleitfähigkeit auf und werden unter anderem am JAERI⁶ [29] bis [32] und dem CEA⁷ [36] auf ihre Verwendbarkeit als inerte Matrizen untersucht. Am PSI richtet sich das Hauptaugenmerk auf einphasige Systeme, so daß Materialien wie Spinell oder Cermet hier z. Z. nicht weiter betrachtet wurden.

Zusammengefaßt ist damit **ZrO₂** die hier favorisierte inerte Matrix. Um zu gewährleisten, daß der neue Brennstoff als einphasige feste Lösung in einer kubischen Gitterstruktur vorliegt, wird ZrO_2 rund 10 w% Y_2O_3 zugesetzt. Dies ist notwendig, da die Mengen an PuO_2 und dem Oxid des BP alleine zur Stabilisierung in ein kubisches Gitter nicht ausreichen. Allerdings wurde Y_2O_3 bei den neutronenphysikalischen Untersuchungen nicht berücksichtigt. Zum einen stand Y auf der Querschnittsbibliothek für BOXER nicht zur Verfügung und zum anderen ist der Einfluß dieser geringen Mengen von Y vernachlässigbar klein. Als BP wurde **Er₂O₃** mit einer Dichte von 0.343 g/cm^3 ausgewählt, da es sich zum einen vom neutronenphysikalischen Standpunkt aus gesehen als vorteilhaft erwies, wie in Kapitel 4.1 gezeigt, und zum anderen stabilisierend auf ZrO_2 als Matrix wirkt. Dieser Inert-Matrix-Brennstoff aus $\text{PuO}_2\text{-Er}_2\text{O}_3\text{-ZrO}_2/\text{Y}_2\text{O}_3$ wird im folgenden als **IMF** bezeichnet, wobei die verwendete PuO_2 -Dichte 1.02 g/cm^3 bzw. 0.9 g/cm^3 Pu beträgt.

⁶Japan Atomic Energy Research Institute in Tokai-mura

⁷Commissariat à l'Énergie Atomique, Frankreich

4.2.3 Aspekte zur Wärmeleitfähigkeit

Nachteilig für ZrO_2 erweist sich seine im Vergleich zu UO_2 geringere Wärmeleitfähigkeit. Um dem entgegenzuwirken und um die Brennstofftemperatur zu begrenzen, wurde in [78] und [91] die Verwendung von Hohlpellets vorgeschlagen, wodurch sich bei gleichen Stableistungen im IMF ähnliche Brennstofftemperaturen einstellen würden wie in einem UO_2 -Brennstoff.

Dies wirft aber ein weiteres Problem auf. Wie in Kapitel 5.3.6 noch besprochen wird, könnten die Auswirkungen eines Steuerstabauswurfs in einem IMF-Kern gravierender sein, als im gleichen Kern mit Uran-Brennstoff. Diese Art von Reaktivitätsstörfällen läuft in der Regel so schnell ab, daß es zu keiner Wärmeabgabe aus dem Brennstoff an die Umgebung kommt. Somit muß alle erzeugte Energie im Brennstoff gespeichert werden. Hierbei darf es nicht zum Schmelzen des Brennstoffs oder zu Hüllrohrschäden kommen. Aus diesem Grund erteilen die Sicherheitsbehörden Auflagen zur Begrenzung der Energiedeposition bei Reaktivitätsunfällen. In letzter Zeit ist die Überprüfung dieser maximalen Brennstoffenthalpiewerte durch Vergleiche von Rechnungen und aktuellen Messungen anberaumt worden [92]. Dieser Sachverhalt ist demnach auch für IMF explizit zu berücksichtigen. Allgemein gilt nach [93]:

$$dQ = m \cdot c_p \cdot dT \quad (4.2)$$

mit:

Q : zugeführte Wärmemenge

m : betrachtete Masse

c_p : spezifische Wärme eines Stoffes bei konstantem Druck

T : Temperatur in K

wobei unter der spezifischen Wärme die Wärmemenge verstanden wird, die zur Erwärmung von 1 kg eines Stoffes um 1 K bei gleichbleibendem Aggregatzustand benötigt wird. Für Stoffgemische kann die spezifische Wärme $c_{p,m}$ aus den massengewichteten spezifischen Wärmen $c_{p,i}$ der Einzelkomponenten i berechnet werden:

$$c_{p,m} = \frac{\sum_i (m_i \cdot c_{p,i})}{\sum_i m_i} \quad (4.3)$$

Bei herkömmlichen Brennstoffen wird die bei Transienten in den Brennstoff eingebrachte Energiemenge bzw. die spezifische Wärme immer in J/g bzw. J/(g·K) angegeben. Da aber UO₂ und IMF unterschiedliche Dichte haben, muß hier die spezifische Wärme zu Vergleichszwecken auf das Volumen bezogen werden, d.h. die spezifische Wärme wird mit der Dichte des jeweiligen Brennstoffs multipliziert. Tabelle 4.8 gibt die Werte der spezifischen Wärme für die im IMF verwendeten Stoffe sowie für UO₂ wieder.

Tabelle 4.8: Spezifische Wärme der im IMF verwendeten Stoffe im Vergleich mit UO₂. Die Daten stammen aus [94]

Material	Spezifische Wärme für Temperaturen von							
	300°C		600°C		1000°C		1800°C	
	$[\frac{J}{g \cdot K}]$	$[\frac{J}{cm^3 \cdot K}]^{1)}$	$[\frac{J}{g \cdot K}]$	$[\frac{J}{cm^3 \cdot K}]$	$[\frac{J}{g \cdot K}]$	$[\frac{J}{cm^3 \cdot K}]$	$[\frac{J}{g \cdot K}]$	$[\frac{J}{cm^3 \cdot K}]$
Er ₂ O ₃	0.285	2.46						
Dy ₂ O ₃	0.314	2.45	0.343	2.68	0.364	2.84	0.389	3.04
ZrO ₂	0.452	2.67			0.615	3.63	0.837 ²⁾	4.94 ²⁾
Y ₂ O ₃	0.452	2.26	0.536	2.69	0.561	2.81	0.574	2.88
UO ₂	0.239	2.62	0.297	3.26	0.318	3.49	0.335 ³⁾	3.67 ³⁾
PuO ₂	0.251	2.88						

¹⁾ Für die theoretisch maximalen Dichten

²⁾ Wert für 2000°C, ³⁾ Wert für 1500°C

Die Temperaturabhängigkeiten der spezifischen Wärmen von Er₂O₃ und Dy₂O₃ sind sehr ähnlich [94]. Da für die Er₂O₃ keine Angaben über die spezifische Wärme oberhalb einer Temperatur von 350°C vorliegen, werden hierfür um 10% reduzierte Dy₂O₃-Werte verwendet. Gleiches gilt für PuO₂. Die fehlenden Werte werden hier von UO₂ übernommen. Desweiteren wird die temperaturabhängige spezifische Wärme durch Mittelwerte ersetzt. Die so erhaltenen Werte sind in Tabelle 4.9 aufgeführt.

Tabelle 4.9:

Verwendete mittlere spezifische Wärmen und die in den Brennstoffen eingesetzten Dichten der einzelnen Stoffe

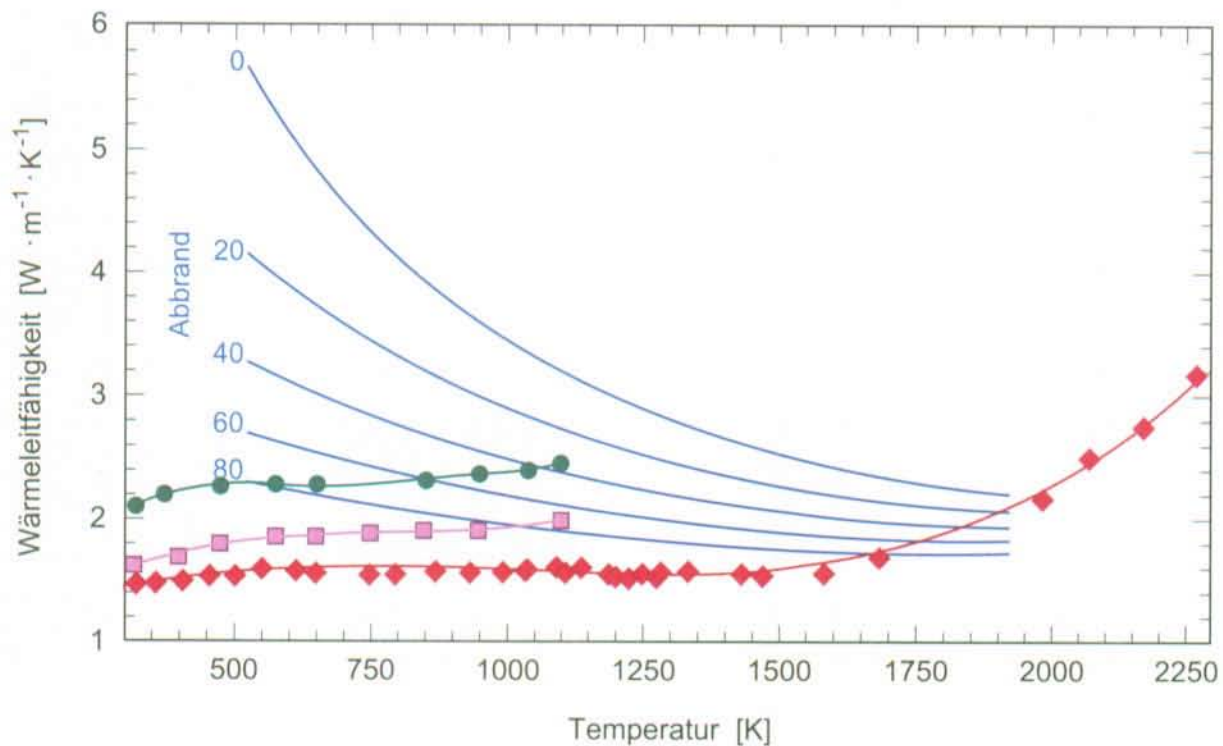
Brennstoff	Materialanteile	spezifische Wärme		Dichte g/cm ³
		$[\frac{J}{g \cdot K}]$	$[\frac{J}{cm^3 \cdot K}]$	
IMF	Er ₂ O ₃	0.329	2.84	0.343
	ZrO ₂	0.663	3.71	4.57
	PuO ₂	0.317	3.65	1.02
UO ₂ /MOX	UO ₂	0.317	3.47	10.35

Mit den mittleren Werten für die spezifische Wärme aus Tabelle 4.9 für PuO₂, Er₂O₃ und ZrO₂ ergibt sich nach Gleichung 4.3 für den uranfreien Brennstoff eine spezifische Wärme von rund 3.5 J/(cm³·K) gegenüber 3.3 J/(cm³·K) für UO₂. Diese Angaben gelten für ein IMF-Vollpellet, wobei davon ausgegangen wird, daß die reale Brennstoffdichte 95% der theoretischen Dichte beträgt. Die volumenbezogene spezifische Wärme des uranfreien Brennstoffs ist damit ca. 6% größer als die des UO₂-Brennstoffs.

Wie aus Tabelle 4.9 zu erkennen ist, liefert ZrO₂ den größten Beitrag zur spezifischen Wärme des IMF. Wird, wie in [78, 91] vorgeschlagen und bei den im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Vollkernrechnungen berücksichtigt, ein Hohlpellet mit einem Lochradius des halben Pelletradius verwendet, so wird der Anteil des ZrO₂ im Brennstoff und das Brennstoffvolumen auf 3/4 reduziert. Die Anteile von PuO₂ und Er₂O₃ müssen erhöht werden, um gleiche mittlere Pu- und Er-Dichten im Gesamtvolumen, inklusive Loch, zu gewährleisten. Die Brennstoffzone besteht dann aus 1.36 g/cm³ PuO₂, 0.457 g/cm³ Er₂O₃ und 4.32 g/cm³ ZrO₂. Der reduzierte Beitrag des ZrO₂ an der spezifischen Wärme wird durch die höhere Gesamtdichte des Brennstoffs ausgeglichen. Allerdings stehen jetzt nur noch 75% des Vollpellets als Brennstoffvolumen zur Verfügung, so daß sich für das Hohlpellet eine spezifische Wärme von ~2.7 J/(cm³·K) ergibt. Dieser Wert liegt rund 20% unter dem des UO₂-Brennstoffs. Vom Standpunkt der Wärmedeposition aus wäre also ein Hohlpellet zu vermeiden, da bei gleichem Temperaturanstieg im IMF nur 80% der Wärme gespeichert werden kann.

Messungen der Wärmeleitfähigkeit von IMF-Proben [89] zeigen, daß die Wärmeleitung eines solchen Brennstoffs mit der Temperatur zunimmt, so wie in Abbildung 4.7 zu sehen ist. So steigt die Wärmeleitfähigkeit ab ~1500°C stark an und erreicht bei ~2200°C einen Wert von 3 W/(m·K). Verschiedene Zusätze, wie ThO₂ und CeO₂ als Substitute für PuO₂, tragen ebenfalls zu einer Erhöhung der Wärmeleitfähigkeit bei.

Abbildung 4.7: Vergleich gemessener Wärmeleitfähigkeit für Mischungen aus $\text{ZrO}_2 + 10\% \text{Y}_2\text{O}_3 + 5\% \text{Er}_2\text{O}_3$ (◆), $\text{ZrO}_2 + 10\% \text{Y}_2\text{O}_3 + 5\% \text{Er}_2\text{O}_3 + 10\% \text{CeO}_2$ (●) sowie $\text{ZrO}_2 + 10\% \text{Y}_2\text{O}_3 + 5\% \text{Er}_2\text{O}_3 + 10\% \text{ThO}_2$ (■) mit UO_2 (—) bei verschiedenen Abbrandzuständen



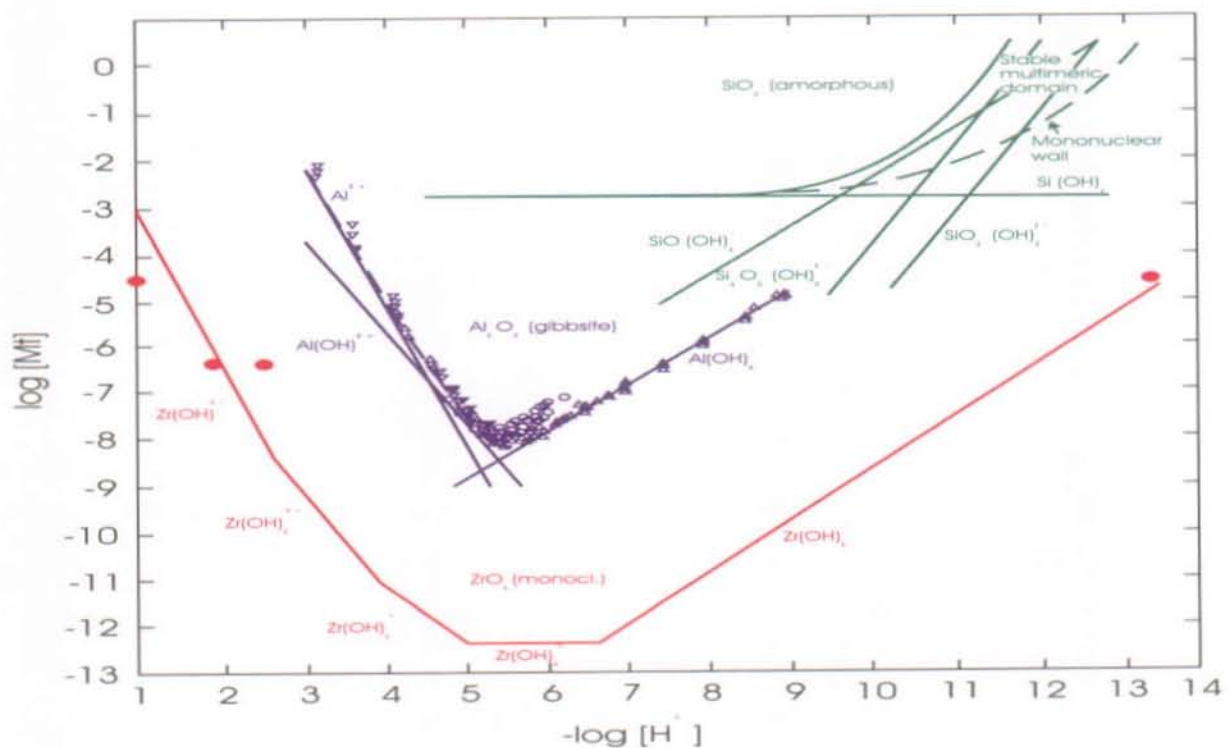
Zudem wurde festgestellt, daß in diesem Brennstoff nicht nur die Wärmeleitung, sondern auch die Wärmeübertragung durch Strahlung eine Rolle spielt [89]. Allerdings sind die Untersuchungen hierzu noch nicht abgeschlossen, so daß noch keine Aussagen darüber getroffen werden können, wie stark die Wärmeübertragung hierdurch erhöht wird. Sollten sich diese Phänomene nicht bestätigen oder der Anstieg der Wärmeleitfähigkeit mit der Temperatur bei erhöhtem Abbrand nicht in dem erwarteten Maße eintreten, müßte die Wärmeleitfähigkeit durch Zusätze, wie z. B. Al_2O_3 [83] oder Al_2O_3 und MgO wie in [31], angehoben werden, so daß Vollpellets mit vertretbaren Brennstofftemperaturen verwendet werden können.

4.2.4 Endlagerfähigkeit

Es ist vorgesehen, den abgebrannten IMF direkt endzulagern. In der Regel ist die Endlagerung radioaktiver Abfälle in Kavernen im Erdinnern geplant. Werden menschliches Eingreifen und große Verwerfungen in der Erdkruste, z. B. durch Erbeben, Meteore, etc. ausgeschlossen, kann ein Transport von radioaktiven Nukliden aus dem Endlager in den

Lebensraum des Menschen nur über Tiefenwasser erfolgen, welches mit der Zeit in ein Endlager eindringt [11]. Die Tiefenwässer verändern die technischen Komponenten, und die Radionuklide werden aus der Abfallmatrix gelöst, in das Wasser freigesetzt und aus dem Endlager transportiert. Die Beständigkeit der IM gegen Wasser ist also mitentscheidend über die Freisetzung von radioaktiven Nukliden im Endlager. In Abbildung 4.8 werden die Löslichkeiten von verschiedenen inerten Matrix-Werkstoffen mit der Löslichkeit von Glas (SiO_2) verglichen, da die Verglasung den z. Z. üblichen Weg zur Behandlung hochradioaktiver Abfälle darstellt.

Abbildung 4.8: Löslichkeit von SiO_2 , Al_2O_3 und ZrO_2 als Funktion des pH-Werts. Die Daten stammen aus [95, 96] und [97], die Grafik wurde aus [78] übernommen. Mt gibt die Löslichkeit in mol/l und $\log[\text{H}^+]$ den pH-Wert an.



Es ist deutlich zu erkennen, daß die Löslichkeit von ZrO_2 über den gesamten pH-Bereich unterhalb von SiO_2 und Al_2O_3 liegt. Für Wasser mit einem üblichen pH-Wert von 7 ist die Löslichkeit von ZrO_2 rund 10^9 mal kleiner von SiO_2 , wodurch mit einem besseren bzw. längeren Rückhaltevermögen von Spaltprodukten und Aktiniden in der ZrO_2 -Matrix als in verglasten Abfällen zu rechnen ist. Gleichzeitig ist die inerte Matrix sehr beständig sowohl gegen Säuren sowie Basen, womit der IMF ebenfalls gute Eigenschaften hinsichtlich einer Proliferation aufweist.

4.3 Resümee der Brennstoffauslegung

Mit einer Brennstoffzusammensetzung von $1.02 \text{ g/cm}^3 \text{ PuO}_2$, $0.343 \text{ g/cm}^3 \text{ Er}_2\text{O}_3$ in einer inerten Matrix aus ZrO_2 erscheint es möglich, in einem LWR Plutonium als uranfreien Brennstoff einzusetzen und damit effektiv abzubauen.

Für den Einsatz von Erbium als BP sprechen dabei folgende Argumente:

- Die günstigen Reaktivitätskoeffizienten; so trägt Erbium z. B. rund 30% zum Brennstofftemperaturkoeffizienten bei.
- Die relativ kleine Restabsorption zum EOL. Hiermit ist eine effiziente Plutoniumreduktion gewährleistet.
- Der problemlose Einbau in eine inerte Matrix aus ZrO_2 . Erbium stabilisiert diese Matrix in eine kubische Phase.

Zwar weisen andere BP in Einzelpunkten Vorteile gegenüber Er auf, aber in der Gesamtheit aus Reaktivitätskoeffizienten, Kontrollanforderungen, Kontrollabsorberwerten, Abbrandverhalten und der Stoffzusammensetzung mit ZrO_2 als inerte Matrix weist Erbium als BP die besten Eigenschaften auf.

Die Wahl, durch Y_2O_3 stabilisiertes ZrO_2 als inerte Matrix einzusetzen, hat den Vorteil, daß hiermit über den gesamten verwendeten Temperaturbereich eine einphasige kubisch feste Lösung vorliegt, welche Er_2O_3 und PuO_2 sowie viele der Spaltprodukte und Actiniden gleichermaßen aufnehmen kann und durch sie noch zusätzlich stabilisiert wird. Die schlechte Löslichkeit des IMF in Wasser läßt neben dem Einsatz im Reaktor auch die sichere direkte Endlagerung zu. Zudem ist ZrO_2 durch Basen und Säuren schlecht löslich. Damit ist das Proliferationsrisiko nach der Herstellung des Brennstoffs sehr gering, da eine Separation des Pu aus der IMF auf chemischem Weg fast unmöglich ist. Die Trennung mittels Aufschmelzen ist allerdings nicht auszuschließen, technisch aber schwierig, da der Schmelzpunkt dieses Brennstoffs bei über 2700°C liegt.

Der kritische Parameter bezüglich der Einsatzbarkeit der gefundenen Brennstoffzusammensetzung ist die niedrige Wärmeleitfähigkeit des ZrO_2 . Hier wäre eine Leitfähigkeit anzustreben, die über der von UO_2 liegt. Allerdings ist die Frage der Wärmeübertragung durch Strahlung in diesem Brennstoff noch nicht vollständig geklärt. Auch erscheint es möglich, durch Zugabe von weiteren Stoffen, wie Al_2O_3 [31], oder die Verwendung von Cermet als inerte Matrix [36], die Wärmeleitfähigkeit so weit zu erhöhen, so daß dieser

Brennstoff in Form von Vollpellets⁸ ohne Leistungsabsenkung in LWR eingesetzt werden kann. Der Zusatz von weiteren neutronisch inerten Stoffen im IMF hat quasi keinen Einfluß auf neutronenphysikalische Betrachtungen, so daß die hier gewählte Brennstoffzusammensetzung aus PuO_2 , Er_2O_3 und ZrO_2 als IMF in der weiteren Konzeptentwicklung uranfreier Kerne verwendet wird.

⁸In Kapitel 5 werden Hohlpellets verwendet, aber dies hat nur einen unwesentlichen Einfluß auf die in diesem Kapitel diskutierten reaktorphysikalischen Ergebnisse.

5 Konzeption eines uranfreien Pu-Gleichgewichtskerns

Ziel der dreidimensionalen Kernanalyse ist es, das Verhalten eines Kernes zu studieren, der mit dem in Kapitel 4 neu entwickelten Brennstoff beladen ist. Dabei sollte der neu ausgelegte uranfreie DWR-Kern vergleichbare Betriebscharakteristiken aufweisen wie ein DWR-Kern mit UO_2 -Brennstoff. Des Weiteren war der Einfluß der isotopischen Zusammensetzung des Plutoniums von Interesse. Aus diesem Grund wurde in vier unterschiedlichen Gleichgewichtskernen neben dem Einsatz von Reaktorplutonium (RGPu) auch der von Waffenplutonium (WGPu) berücksichtigt. Es wurden zwei Gleichgewichtskerne mit Inert-Matrix-Brennstoff (IMF) und zwei mit MOX-Brennstoff, jeweils mit RGPu und WGPu, konzipiert und untersucht. Als ein Gleichgewichtskern wird ein Kern bezeichnet, der nach jedem Zyklus nach der gleichen Systematik⁹ neu beladen wird, wobei alle Betriebscharakteristiken konstant bleiben. Zum Vergleich wurde ein existierender DWR-Kern mit UO_2 -Brennstoff als Referenzkern analysiert.

Die Anreicherung bzw. die Pu-Dichte im Brennstoff wurde dabei so gewählt, daß es mit dem jeweiligen Kern möglich war, den Brennstoff über vier Reaktorzyklen einzusetzen. Die Zykluslänge entsprach dabei der des Referenzkerns. Betrachtet wurden Abbrandverhalten, die Entwicklung der Plutoniuminventare sowie die Radiotoxizität der abgebrannten Brennstoffe der verschiedenen Kerne.

Um zu prüfen, ob die gefundenen Kernbeladungen auch sicherheitstechnisch einsetzbar sind, wurden die Abschaltbarkeit mittels Steuerstäben und die Reaktivitätskoeffizienten untersucht. Eine erste Abschätzung des Kernverhaltens bei den wichtigen Transienten von Kontrollstabauswurf und Frischdampfleitungsbruch wurde auf Basis statischer Betrachtungen durchgeführt.

5.1 Geometrie und Material

Die wichtigsten Auslegungsdaten des mit einem realen UO_2 -Kern beladenen DWR sind in Tabelle 5.1 zusammengefaßt. Dieser Kern wird als Referenzkern (RefC) verwendet. Die Brennstoff- und BE-Beschreibung der Pu-Kerne ist in Tabelle 5.2 zu finden. Die Kerne mit RGPu- und WGPu-MOX-Brennstoff werden nachfolgend mit RG-MOX und WG-MOX bezeichnet. Als RG-IMF und WG-IMF werden hingegen die uranfreien Kerne mit RGPu- bzw. WGPu-Brennstoff benannt. Um die hohe Anfangsreaktivität im Fall von WG-MOX zu senken, wurde in einem Teil der Brennstäbe Gd als BP eingesetzt. Hiermit war es möglich, die anfängliche Borkonzentration im Kern von über 2200 ppm auf unter 1200 ppm zu senken.

⁹Zahl der frischen und der abgebrannten Brennelemente ist immer gleich. Es wird immer das selbe Umsetzschema verwendet

Tabelle 5.1: Hauptmerkmale des Referenzkerns mit UO_2 -Brennelementen (RefC)

Parameter	Einheit	Wert
Zahl der Brennstäbe pro Brennelement (BE)	–	$(15 \times 15) - 20$
Zahl der BE im Kern	–	177
Zahl der kontrollierbaren BEe ^{a)}	–	48
Aktive Brennstofflänge	cm	359.5
BE-Teilung	cm	21.56
Gitterabstand	cm	1.43
Äußerer Pelletdurchmesser d_p	cm	0.913
Äußerer Hüllrohrdurchmesser d_{hr}	cm	1.075
Wandstärke des Hüllrohrs (HR)	cm	0.0725
Thermische Leistung	MW	3000
Spezifische Leistungsdichte	MW/m ³	103
Moderatortemperatur: Kerneintritt	°C	291.5
Kernaustritt	°C	324.8
Durchfluß	kg/s	15665
Druck	bar	154

^{a)} Details siehe Kapitel 4.1.1

Die Nuklidzusammensetzung im Fall von RG-MOX stammt aus einer früheren Studie [98]. Für den RG-IMF-Kern wurde die gleiche Plutoniumzusammensetzung wie in Kapitel 4.1.1 aus [75] verwendet. Die WGPu-Zusammensetzung entsprach der aus [99].

Die Pu-Dichte in den einzelnen Brennstoffen ergibt sich aus folgenden Bedingungen:

- die Kerne sollen in einem Vier-Zonen-Gleichgewichtszyklus betrieben werden, wobei ein Viertel der Brennelemente jedes Jahr durch neue ersetzt wird.
- Die Zykluslänge soll gleich der Zykluslänge im RefC sein.

Diese Bedingungen stehen in einem direkten Zusammenhang mit der Optimierung des Kerns. Als Auslegungsziel ist einzuhalten:

- Die Leistungsverteilung muß akzeptabel sein; d. h., es dürfen in den neuen Kernen keine Leistungsspitzen vorkommen, die größer sind als die Leistungsspitzen im RefC.

Andererseits wird mit der Beladestrategie die Zykluslänge entschieden beeinflusst. So kann je nach Beladeschema die Zykluslänge um 10 bis 20% schwanken und somit auch die Effizienz des Plutoniumabbaus. Tabelle 5.2 gibt die verwendeten Brennstoffzusammensetzungen und Pu-Vektoren wieder.

Tabelle 5.2: Brennelemente und Pu-Zusammensetzungen in den fünf untersuchten Kernen.

RefC:	125 UO ₂ Brennelemente (BE) mit 3.41w% ²³⁵ U als Mittel aus 3.50 und 1.90 w% ²³⁵ U, das axial auf unterschiedliche Längen verteilt ist 40 UO ₂ BE mit 3.50w% ²³⁵ U 12 UO ₂ BE mit 3.80w% ²³⁵ U Teil-Low-Leakage-Beladung
RG-MOX:	177 MOX-BE mit 6.1w% Plutonium in Natururan Pu-Vektor: (w%): ²³⁸ Pu: 1.3, ²³⁹ Pu: 60.3, ²⁴⁰ Pu: 24.8, ²⁴¹ Pu: 9.0, ²⁴² Pu: 4.6 Low-Leakage-Beladung
WG-MOX:	177 MOX-BE mit 4.0w% Plutonium in Natururan 28 Stäbe per BE mit 0.3 g/cm ³ Gd Pu-Vektor: (w%): ²³⁸ Pu: 0.0, ²³⁹ Pu: 93.4, ²⁴⁰ Pu: 6.0, ²⁴¹ Pu: 0.6, ²⁴² Pu: 0.0 Low-Leakage-Beladung
RG-IMF:	177 BE mit Hohl-Pellets: $d_p = 0.913$ cm, $d_i = 0.5 \cdot d_p$ Zentrale Pelletregion mit ZrO ₂ ^{a)} bei reduzierter Dichte (5.2 g/cm ³) Brennstoffring: Mischung aus 1.2 g/cm ³ Pu, 0.4 g/cm ³ Er, 0.24 g/cm ³ Sauerstoff und 5.44 g/cm ³ ZrO ₂ ^{a)} (Gesamt-Dichte: 7.28 g/cm ³) Pu-Vektor (w%): ²³⁸ Pu: 2.7, ²³⁹ Pu: 54.5, ²⁴⁰ Pu: 22.8, ²⁴¹ Pu: 11.7, ²⁴² Pu: 8.3 Teil-Low-Leakage-Beladung
WG-IMF:	177 BE mit Hohl-Pellets wie in RG-IMF Zentrale Pelletregion wie in RG-IMF Brennstoffring: Mischung aus 0.92 g/cm ³ Pu, 0.53 g/cm ³ Er, 0.18 g/cm ³ Sauerstoff und 4.96 g/cm ³ ZrO ₂ ^{a)} (Gesamt-Dichte: 6.59 g/cm ³) Pu-Vektor wie in WG-MOX Teil-Low-Leakage-Beladung

^{a)} Diesen Rechnungen lag eine zu große ZrO₂-Dichte aus der Literatur zugrunde. Spätere Untersuchungen ergaben um 1.0 g/cm³ niedrigere Dichten. Diese Differenz spielt in der neutronenphysikalischen Analyse keine Rolle.

5.2 Berechnung der Gleichgewichtskerne

In einem Gleichgewichtskern erfolgt das Auswechseln der Brennelemente periodisch. Das heißt, die Brennelemente werden immer nach demselben Schema umgesetzt und ausgewechselt. Die Daten des Kerns bleiben damit von Zyklus zu Zyklus gleich.

Die Gruppenkonstanten in zwei Energiegruppen für die dreidimensionalen Berechnungen dieser Kerne mit SILWER wurden mit BOXER berechnet. Hierfür wurden unendliche Anordnungen von Brennelementen mit den jeweiligen Brennstoffen bei verschiedenen Betriebsparametern wie Abbrand, Leistungsdichte, etc. betrachtet. Die Darstellung der Gruppenkonstanten in Form von Polynomen erfolgte durch CORCOD. An SILWER wurden die Koeffizienten der Polynome übergeben, so daß in SILWER für den jeweils betrachteten nodalen Zustand die gewünschten Gruppenkonstanten rekonstruiert werden konnten. Die Optimierung der Gleichgewichtskerne mit SILWER erfolgte über die Anpassung des Umsetzschemas bezüglich zweier Kriterien: der Zykluslänge und der radialen Leistungsverteilung.

5.2.1 Berechnung der Gruppenkonstanten

Für die räumliche und energetische Kondensation der Gruppenkonstanten wurde mit BOXER eine unendliche Anordnung von Brennelementen, so wie in Abbildung 4.1 dargestellt, betrachtet. Zuerst wurde eine Abbrandrechnung mit einer Borkonzentration von 500 ppm im Moderator durchgeführt. Hiermit wurde der Beitrag des Bors auf die Verhärtung des Neutronenspektrums im Reaktor berücksichtigt, um keinen Betriebsparameter für die Bor-Geschichte einzuführen. An bestimmten Stützpunkten, für die Abbrandzeit von 2,5, 350, 700, 1050 und 1400 VLT, fand die Berechnung aller Zustände für alle Betriebsparameter statt, so wie in Tabelle 5.3 zusammengestellt.

Tabelle 5.3: Verwendete Werte der betrachteten freien Variablen zur Berechnung der Gruppenkonstanten der Kerne mit UO₂, MOX und IMF.

freie Variable	Einheit	Betrachteter Zustand				
Xenondichte	% Leistung	0	50	100	200	
Borkonzentration	ppm	0	500	1000	2000	
Voidanteil	%	0	15	30		
Moderatortemp.	°C	230	270	310	344	
Brennstofftemperatur	°C	300	600	1050	1575	2100
Leistung	%	0	100	250	425	600

Für die IMF-Kerne ist es mit SILWER nicht möglich, die Brennstofftemperatur zu bestimmen, da diese Berechnung in SILWER an Stoffwerte für UO_2 - bzw. MOX-Brennstoff sowie an den Abbrand in MWd/t_{SM} gekoppelt ist [70]. Der SM-Anteil im IMF beträgt mit $1.02 \text{ g/cm}^3 \text{ PuO}_2$ gegenüber $10.35 \text{ g/cm}^3 \text{ UO}_2$ jedoch nur ein Zehntel dessen in herkömmlichen Brennstoffen, so daß der Abbrand im IMF in MWd/t_{SM} rund zehn mal größer ist als in UO_2 - oder MOX-Brennstoffen. Aus diesem Grund wurde an Stelle der Brennstofftemperatur in den IMF-Kernen die Leistung als Betriebsparameter verwendet. Für die Brennstofftemperatur wurde angenommen, daß sie sich direkt proportional zur Leistung verhält. Mit dieser Vorgehensweise ist sichergestellt, daß in SILWER die richtigen Gruppenkonstanten verwendet werden.

Allerdings muß sich zeigen, ob die Annahme über die Korrelation zwischen Leistung und Brennstofftemperatur richtig ist. Hierfür bedarf es noch einer Reihe von Stoffwerten, wie z.B. der Wärmeleitfähigkeit als Funktion des Abbrandes, die zum augenblicklichen Zeitpunkt nicht vorliegen. Auch die hier getroffene Annahme einer temperaturunabhängigen Wärmeleitfähigkeit ist zu prüfen, da neueste Erkenntnisse zeigen, daß die Wärmeleitfähigkeit von IM-Brennstoffen mit der Temperatur zunimmt [89].

Die Bandbreiten der Werte für die Betriebsparameter ist so gewählt, daß jeder mögliche Reaktorzustand einschließlich der Zustände der betrachteten Transienten, abgedeckt ist. Die Gruppenkonstanten für einen bestimmten Wert eines Betriebsparameters wurden an jedem Stützpunkt für alle Werte aller anderen Parameter berechnet. Hiermit ergaben sich für jeden Pu-Brennstoff rund 3600 Sätze von Gruppenkonstanten. Die gleiche Vorgehensweise erfolgte für die Brennelemente mit Kontrollstäben. Für den Referenzkern mußten diese Rechnungen für jeden BE-Typ mit 1.9, 3.5 und 3.8 w% Anreicherung durchgeführt werden.

Einerseits ist diese Vorgehensweise zwar rechenzeitintensiv, pro Brennstofftyp wurden auf den gegenwärtig zur Verfügung stehenden Rechnern rund 72 CPU-Stunden Rechenzeit benötigt. Andererseits verkürzt sich der Aufwand bei der Suche nach einer genauen Polynomdarstellung der Gruppenkonstanten mit CORCOD erheblich.

Bei diesen Berechnungen ist es nicht erforderlich, die unterschiedlichen Abbrände der 205 Brennstäbe innerhalb eines Brennelements zu berücksichtigen. Dies hätte den Rechenzeitaufwand erheblich vergrößert, wobei die Genauigkeit nur marginal verbessert worden wäre, da die betrachteten Brennelemente homogen sind und in SILWER nur der nodale Abbrand berücksichtigt wird. Dagegen wurden die Gd-Stäbe im Fall von WG-MOX einzeln modelliert, weil in diesem Fall die zeitlich stark variierende Absorptionsrate eine merkliche Heterogenität des Brennelements bewirkt.

5.2.2 Beladeplan-Optimierung

Ziel der Beladeplan-Optimierung war es zum einen, Zykluslängen von rund 305 mit einem Streckbetrieb von ca. 30 Tagen, gleich der Zykluslänge und dem Streckbetrieb des RefCs, sowie zum anderen eine Leistungsverteilung zu erreichen, die keine größeren Leistungsspitzen als der Referenzkern aufweist. In allen vier Pu-Kernen sollte ein Gleichgewichtskern konfiguriert werden. Bei Entnahme und Einbringen immer der gleichen Anzahl Brennelemente nach einem festem Umsetzschema, sollte sich immer wieder der gleiche Zyklus einstellen.

Einen beliebigen Gleichgewichtskern zu erstellen ist relativ trivial. Für ein vorgegebenes Beladeschema muß die Zykluslänge so angepaßt werden, daß gleiche Borkonzentrationen und damit Zyklusabbrände auch in den Folgezyklen erreicht werden. Die richtige Zykluslänge galt dann als erreicht, wenn über mehr als fünf Zyklen die Borkonzentration um nicht mehr als 5 ppm zum Zyklusanfang (BOC) und zum Zyklusende (EOC) schwankte.

Es liegt damit zwar ein Gleichgewichtskern vor, dieser hat aber noch nicht die gewünschte Zykluslänge und/oder Leistungsverteilung. Als wesentlich schwieriger erweist sich somit die Optimierung hinsichtlich vorgegebener Zykluslänge und einer genügend flachen Leistungsverteilung. Hierfür mußte das Beladeschema mehrfach angepaßt werden. Dabei wiederholte sich die Bestimmung der Zykluslänge mit jedem neuen Beladeschema.

Durch Beladungen mit frischen Brennelementen oder Elementen mit nur einer Zykluslänge Standzeit im Kerninneren, also einer Low-Leakage-Beladung, ergeben sich große Zykluslängen aber auch hohe Leistungsspitzen. Insbesondere in den uranfreien Kernen machen sich hier die starken Spektrumsschwankungen mit dem Abbrand in zweierlei Hinsicht bemerkbar. Wie in Abbildung 4.4 zu erkennen ist, steigt der thermische Fluß gerade nach der Hälfte der Standzeit besonders stark. Dies hat zur Folge, daß sich Leistungsspitzen mit zunehmendem Abbrand aufbauen können. Somit ist die Leistungsverteilung über den gesamten Zyklus zu überprüfen. Im Gegensatz dazu werden bei der Verwendung herkömmlicher UO_2 -Brennstoffe anfängliche Leistungsspitzen schnell abgebaut. Der zweite Effekt beruht auf der Tatsache, daß die Leistungsverteilungen der uranfreien Kerne besonders empfindlich auf Beladungen mit frischen Brennelementen im Kerninneren reagierten. Um eventuellen Leistungsspitzen in den einzelnen Stäben durch die starken Flußschwankungen entgegenzuwirken, wurde eine Auslegung erarbeitet, die in den IMF-Kernen eine wesentlich flachere nodale Leistungsverteilung im Vergleich zum Referenzkern aufweist. Als Folge dieser Auslegung mußte die Pu-Dichte von den in [73] vorgeschlagenen 0.8 g/cm^3 auf 0.9 g/cm^3 Pu im IMF angehoben werden. Des weiteren war es nur möglich, eine Teil-Low-Leakage-Beladung zu erstellen.

Eine andere Situation liegt mit den MOX-Kernen vor. Hier ist es möglich, eine Low-Leakage-Beladung zu erstellen, da die Spektrumsänderungen im Brennstoff mit dem Abbrand relativ klein sind. Hier sind höhere nodale Leistungsspitzen zulässig, so daß der Großteil der frischen Brennelemente im Kerninneren plaziert werden kann.

Die Verteilung der Brennelemente nach ihrer Standzeit in Zyklen in den vier Pu-Kernen ist in Abbildung 5.1 wiedergegeben. Für beide IMF-Kerne konnte dabei das gleiche Beladeschema verwendet werden.

Abbildung 5.1:

Verteilung der Brennelemente in einem Viertel des Kerns für (a) RG-IMF und WG-IMF, (b) RG-MOX und (c) WG-MOX. Die Nummern geben die Standzeit der Brennelemente in Zyklen an. Das Brennelement H-8 gibt die Mitte des Kerns an.

(a)

	8	9	10	11	12	13	14	15
H	3	4	1	3	4	3	1	2
G	4	4	3	4	2	2	3	1
F	1	3	2	4	4	1	3	1
E	3	4	4	3	2	4	2	
D	4	2	4	2	1	3	1	
C	3	2	1	4	3	2		
B	1	3	3	2	1			
A	2	1	1					

(b)

	8	9	10	11	12	13	14	15
H	3	3	1	3	1	2	4	4
G	3	2	3	1	4	2	1	3
F	1	3	2	3	4	1	2	4
E	3	1	3	3	2	1	2	
D	1	4	4	2	1	3	4	
C	2	2	1	1	3	4		
B	4	1	2	2	4			
A	4	3	4					

(c)

	8	9	10	11	12	13	14	15
H	3	3	1	3	1	2	4	4
G	3	2	3	3	4	2	1	3
F	1	3	2	1	4	1	2	4
E	3	3	1	3	2	1	2	
D	1	4	4	2	1	3	4	
C	2	2	1	1	3	4		
B	4	1	2	2	4			
A	4	3	4					

Die zu den Kernen gehörenden Umsetzschemata sind in Tabelle 5.4 angegeben. In allen Kernen wurde die Brennelemente achtersymmetrisch versetzt, wobei dem Brennelement H-8 in der Reaktormitte immer der gleiche Abbrandzustand zugewiesen wurde. Die in Abbildung 5.1 mit einer 1 versehenen Brennelemente sind frisch in den Kern gekommen und haben keinen Abbrand. Mit Hilfe von Tabelle 5.4 läßt sich der Weg von jedem Brennelement verfolgen. So nimmt z. B. das Brennelement von Position D-14 in den RG-IMF- und WG-IMF-Kernen die Plätze G-13, G-10 und F-12 ein, bevor es aus dem Reaktor entladen wird.

Tabelle 5.4: Umsetzschema (achtelsymmetrisch) der Kerne mit MOX und IMF.

Alte Position	Neue Position		
	RG-IMF- und WG-IMF-Kern	RG-MOX-Kern	WG-MOX-Kern
H-8 ¹⁾	entladen	entladen	entladen
H-9	entladen	H-14	H-14
H-10	H-15	H-13	H-13
H-11	H-9	H-15	H-15
H-12	entladen	G-9	G-9
H-13	H-12	H-9	H-9
H-14	C-13	entladen	entladen
H-15	E-11	entladen	entladen
G-9	entladen	H-11	H-11
G-10	F-12	D-14	D-14
G-11	entladen	F-14	F-15
G-12	D-13	entladen	entladen
G-13	G-10	G-10	G-10
G-14	G-11	E-12	E-12
G-15	G-12	G-12	G-12
F-10 ¹⁾	H-11	E-11	E-11
F-11	entladen	F-15	F-14
F-12	entladen	entladen	entladen
F-13	E-14	E-14	E-14
F-14	F-11	D-13	D-13
F-15	E-12	entladen	entladen
E-11	G-9	C-13	C-13
E-12	F-14	G-15	G-15
E-13	entladen	G-13	G-13
E-14	G-14	F-11	G-11
D-12	F-10	G-9	F-10
D-13	E-13	F-12	F-12
D-14	G-13	entladen	entladen
C-13	H-13	entladen	entladen

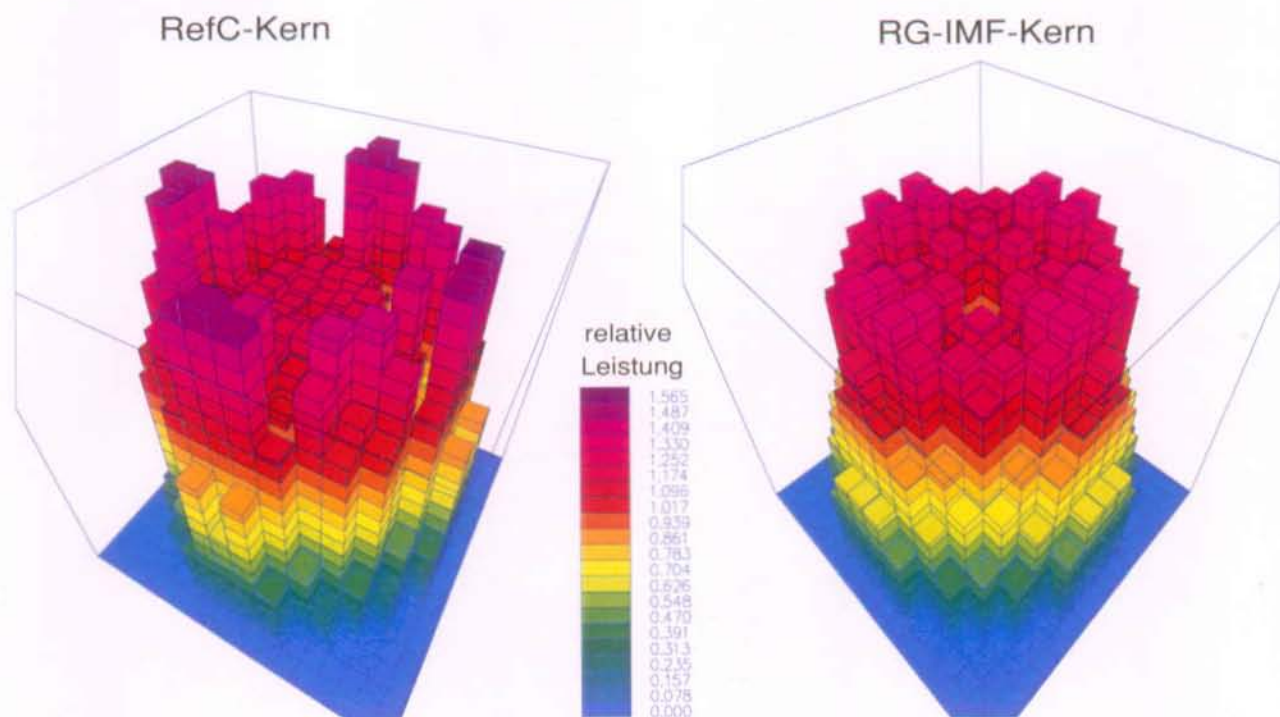
¹⁾Der Kern beinhaltet 177 Brennelemente. Der zentralen Position H-8 wurden daher zum BOC immer die Abbranddaten der Position F-10 zugewiesen

Bei der Optimierung der Beladepläne wurde davon ausgegangen, daß bei kleineren bzw. gleichgroßen nodalen Leistungsspitzen wie im Referenzkern, die Sicherheit gegen Filmsieden (DNB) gewährleistet ist. An dieser Stelle wurden keine stabweisen Leistungswerte betrachtet. Ebenfalls nicht betrachtet wurden einige sekundäre Einflüsse des Beladeschemas, wie z. B die Fluenz am Reaktordruckbehälter.

Eine weitere Verbesserung der gefundenen Beladepläne ist durchaus möglich, z.B. mittels evolutionärer Algorithmen wie sie in [100] und [101] vorgestellt worden sind. Die hier gefundenen Beladepläne sind aber ausreichend, um die Eigenschaften uranfreier Brennstoffe im Vergleich zu denen von herkömmlichen Konzepten zu erforschen.

Abbildung 5.2 zeigt als Beispiel die radiale Leistungsverteilung des RefC-Kernes im Vergleich zu dem erstellten RG-IMF-Kern zum BOC.

Abbildung 5.2: Radiale nodale Leistungsverteilung des RefC-Kernes im Vergleich zum RG-IMF-Kern zum BOC.



Die anfänglich günstigere Leistungsverteilung im RG-IMF-Kern konnte nur mit einer Teil-Low-Leakage-Anordnung erreicht werden. Für den WG-IMF-Kern stellt sich zum BOC eine ähnlich flache Leistungsverteilung ein, während die radialen Leistungsspitzen in den MOX-Kernen vergleichbar denen im RefC-Kern sind.

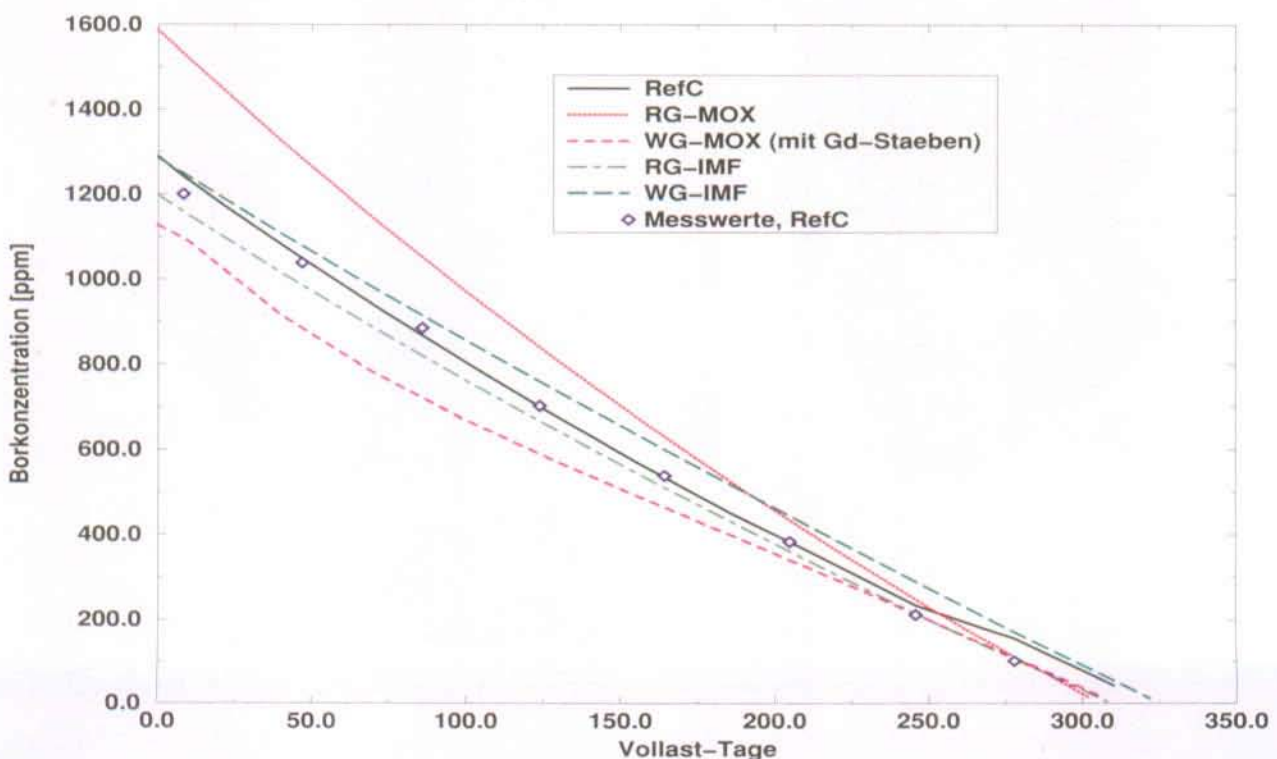
5.3 Vergleich von Pu-Kernen mit einem existierenden LWR-Kern

Für den Vergleich der verschiedenen Pu-Kerne mit einem bestehenden Uran-Kern wird in einem ersten Schritt das Abbrandverhalten untersucht. Sind Leistungverteilung und Zykluslänge in allen Kernen etwa gleich, so können der Plutoniumabbau bzw. Aufbau sowie die Toxizität der entladenen Brennstoffe miteinander verglichen werden. Ob solche Kerne überhaupt einsetzbar sind, hängt letztlich von ihren sicherheitsrelevanten Parametern, wie z. B. der Leistungverteilung, den Reaktivitätskoeffizienten, der Abschalt-Marge und dem Verhalten der Kerne bei bestimmten Transienten ab.

5.3.1 Abbrandverhalten und Pu-Abbau

Abbildung 5.3 zeigt die kritische Borkonzentration als Funktion des Abbrandes der fünf untersuchten Kerne. Der Vergleich zwischen gemessenen und berechneten Werten für den RefC-Kern weist eine befriedigende Übereinstimmung auf. Hierbei ist anzumerken, daß, wie in Kapitel 5.1 beschrieben, ein Teil der Stäbe der WG-MOX-BE Gd enthielt. Mit Ausnahme des RG-MOX-Kerns ist die Borkonzentration am BOC in den Pu-Kernen gleich groß oder niedriger als im RefC-Kern. Im Fall von RG-MOX liegt die Borkonzentration rund 300 ppm über den Werten in den anderen Kernen.

Abbildung 5.3: Verlauf der kritischen Borkonzentrationen über dem Abbrand für die Pu-Kerne im Vergleich zum RefC-Kern



In der Berechnung des RefC-Kerns wurden die Steuerstäbe dem realen Reaktorbetrieb entsprechend rund 20 cm weit eingefahren. In SILWER können jedoch die Steuerstäbe nur nodal verfahren werden. Nach 275 VLT wurden daher alle Steuerelemente komplett gezogen, wodurch sich der Knick in der Borkurve des RefC-Kerns zwischen 250 und 275 VLT erklärt. In den vier Pu-Kernen wurden die Steuerstäbe während der Abbrandrechnung nicht verfahren.

Nach dem Einsatz über vier Zyklen werden die Brennelemente aus dem Reaktor entladen. In Tabelle 5.5 werden die mittleren Konzentrationen der schweren Nuklide in den Pu-Kernen zum EOL mit den eingesetzten Plutoniumkonzentrationen zum BOL verglichen. Der Referenzkern wird hierbei nicht betrachtet, da in ihm Plutonium produziert wird.

Tabelle 5.5: Mittlere Zusammensetzung von Plutonium und den höheren Actiniden (HA) am BOL und EOL relativ zur eingesetzten Plutonium-Masse. Alle Werte sind in % angegeben.

	RG-MOX		WG-MOX		RG-IMF		WG-IMF	
	BOL	EOL	BOL	EOL	BOL	EOL	BOL	EOL
Abbrand [VLT]	0.0	1300	0.0	1300	0.0	1300	0.0	1350
^{238}Pu	1.3	1.3	0.0	0.6	2.7	2.0	0.0	0.2
^{239}Pu	60.8	23.9	93.4	26.6	54.5	6.5	93.4	6.0
^{240}Pu	24.7	21.7	6.0	20.2	22.8	15.1	6.0	11.6
^{241}Pu	8.7	12.3	0.6	11.1	11.7	9.1	0.6	6.6
^{242}Pu	4.5	7.6	0.0	4.7	8.3	10.2	0.0	3.4
Pu_{total}	100.0	66.8	100.0	63.2	100.0	42.9	100.0	27.8
^{237}Np	0.0	0.41	0.0	0.65	0.0	0.00	0.0	0.0
^{241}Am	0.0	0.84	0.0	0.53	0.0	0.71	0.0	0.34
^{243}Am	0.0	2.04	0.0	1.09	0.0	2.22	0.0	0.76
^{242}Cm	0.0	0.21	0.0	0.17	0.0	0.23	0.0	0.15
^{244}Cm	0.0	1.23	0.0	0.47	0.0	1.55	0.0	0.37
^{245}Cm	0.0	0.14	0.0	0.04	0.0	0.18	0.0	0.03
HA_{total}	0.0	5.02	0.0	2.95	0.0	4.99	0.0	1.65

Die Netto-Plutoniumreduktion in den beiden MOX-Kernen beträgt rund 35%. Die Reduktion des eingesetzten Plutoniums in den beiden uranfreien Kernen ist mit ca. 57% im Fall von RG-IMF und ca. 72% im WG-IMF-Kern fast doppelt so hoch wie in den MOX-Kernen, da kein neues Plutonium produziert wird. Dies entspricht einem Plutoniumverbrauch von ~ 47 kg pro TWh_{th} in den beiden IMF-Kernen. Bei der Verwendung von RGPu, in MOX als auch in IMF, wird rund 5% des Plutoniums in höhere Actinide (HA) transmutiert. Der Anteil an spaltbarem Plutonium am EOL beträgt bei RG-MOX-Brennstoff $\sim 54\%$ und im Fall von WG-MOX $\sim 60\%$. In den uranfreien Kernen werden die spaltbaren Pu-Nuklide auf $\sim 36\%$ mit RG-IMF und auf $\sim 45\%$ bei der Verwendung von WG-IMF reduziert. Diese Zahlen spiegeln allerdings nur die relativen Verhältnisse für die verschiedenen Brennstoffe wieder. In Tabelle 5.6 sind die Pu- und HA-Inventare in den fünf Kernen über vier Zyklen, entsprechend 1350 VLT für WG-IMF und 1300 VLT in allen anderen Fällen, wiedergegeben.

Tabelle 5.6: Vergleich der Pu- und HA-Inventare am BOL und EOL in den verschiedenen Kernen mit einer Leistung von 1 GW_e . Die Brennelemente im WG-IMF-Kern haben eine Standzeit von 1350 VLT und in den anderen Kernen von 1300 VLT

Brennstoff	Inventare der Kerne [10^3 kg]					
	BOL			EOL		
	Pu	U	HA	Pu	U	HA
RefC	0.0	88.4	0.0	1.0	82.6	0.10
RG-MOX	5.3	81.6	0.0	3.5	78.5	0.27
WG-MOX	3.5	83.4	0.0	2.2	80.1	0.10
RG-IMF	7.7	0.0	0.0	3.3	0.0	0.39
WG-IMF	5.9	0.0	0.0	1.6	0.0	0.10

Hieraus wird deutlich, daß der Pu-Abbau in den uranfreien Kernen wesentlich effizienter ist als in den 100% MOX-Kernen. So ist die Pu-Reduktion im RG-IMF-Kern ca. 2.4 mal so groß wie im RG-MOX-Kern und im WG-IMF-Kern sogar 3.3 mal größer als im entsprechenden WG-MOX-Kern. Vorteilhaft wirkt sich das WGPu auf den Aufbau der HA aus. So sind die Inventare an HA in den beiden WGPu-Kernen am EOL genau so groß wie im RefC-Kern. Wie allerdings in den Kapiteln 5.3.4 und 5.3.6 noch gezeigt wird, weist

der WG-IMF-Kern Nachteile bei einigen Sicherheitsparametern, wie z. B. der Temperaturrückkopplung oder den kinetischen Parametern auf. Damit erscheint die Realisierung von WG-IMF-Kernen fraglich, obwohl sie vom Standpunkt eines effektiven Abbaus von WGPu aus interessante Eigenschaften aufweisen. Ein gegenteiliges Bild bietet sich dagegen für die Realisierung eines WG-MOX-Kernes, vergl. Kapitel 5.3.5. Der Pu-Vektor gleicht mit 0.9/42.1/32.0/17.6/7.4 w% für $^{238}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}/^{240}\text{Pu}/^{241}\text{Pu}/^{242}\text{Pu}$ der Isotopenverteilung des Plutoniums eines entladenen UO_2 -Brennstoffs. Aus diesen Gründen würde sich eine kombinierte Zweistufen-Strategie anbieten: WGPu erst in einem MOX-Kern und nach Rezyklierung des abgebrannten Brennstoffs als RG-IMF, nocheinmal einzusetzen.

5.3.2 Toxizitätsvergleich

Verglichen wird hier das Gefährdungspotential durch die radioaktiven Abfälle der abgebrannten Brennelemente aus den RG-MOX- und RG-IMF-Kernen mit der direkten Endlagerung von UO_2 -Brennstoff. Effekte von Barrieren im Endlager wurden bei dieser Untersuchung nicht berücksichtigt. Das Gefährdungspotential ergibt sich dabei aus dem Produkt der Aktivität der Nuklide im entladenen Brennstoff und der effektiven Ingestionsdosis aus der ICRP-Publikation 61 [102]. Die dementsprechenden Werte wurden [11] entnommen. Die Werte von fehlenden Nukliden wurden aus [103] ergänzt.

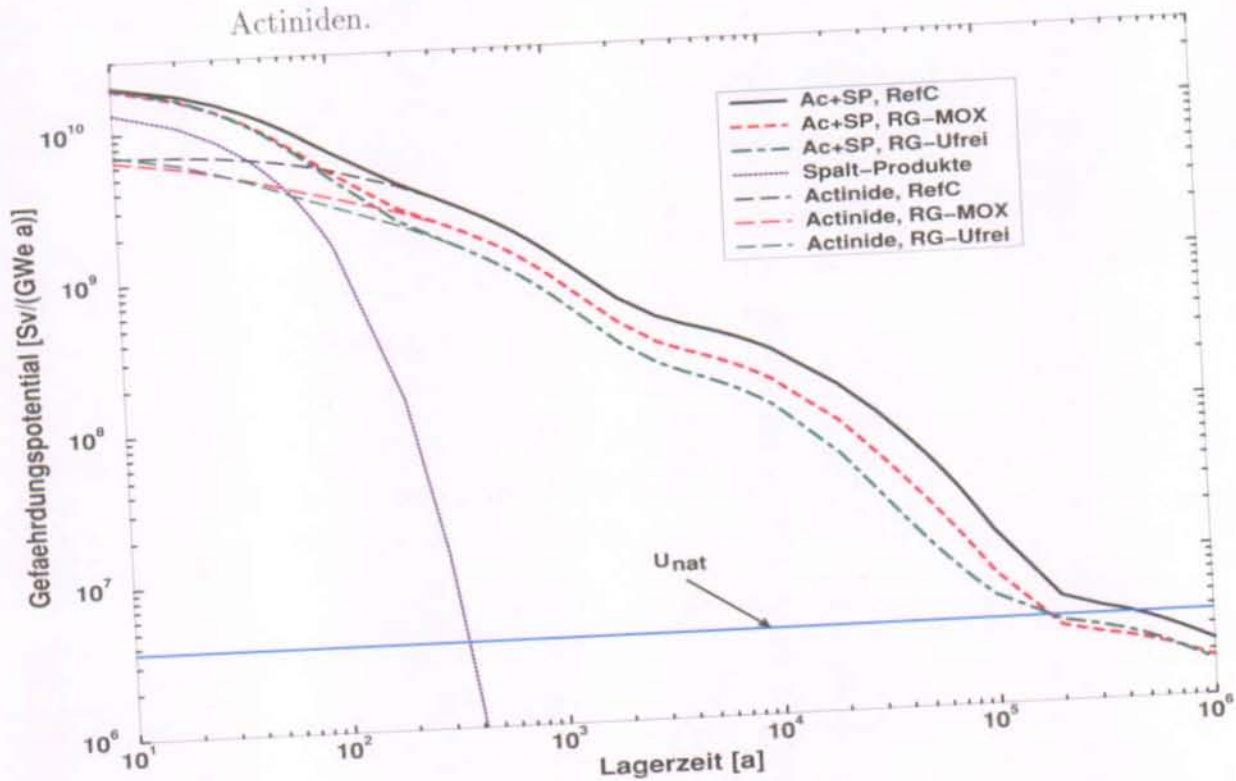
Wie aus Tabelle 5.6 hervorgeht, wird für die Beladung eines RG-MOX-Kerns das Plutonium aus 5.3 UO_2 -Kernen und für einen RG-IMF-Kern das Plutonium aus 7.7 UO_2 -Kernen gleicher Leistung benötigt. Die in Tabelle 5.7 und Abbildung 5.4 dargestellten zeitlichen Toxizitätsverläufe beziehen sich somit immer auf einen Pool von Reaktoren. Wie in [11] sind alle Werte auf die Menge Brennstoff normiert, die zur Erzeugung von 1 GW_ea benötigt wird. Es ist ferner anzumerken, daß Wiederaufarbeitungsverluste und Unterschiede in den Pu-Vektoren vernachlässigt worden sind.

Tabelle 5.7:
Radiotoxisches Gefährdungspotential der Abfälle aus den verschiedenen Brennstoffen bei einem Einsatz in Pools von Reaktoren mit 1 GW_e Leistung.

DWR-Pool beladen mit	Gefährdungspotential in [$10^6 \cdot \text{Sv}/\text{GW}_e\text{a}$] nach			
	10^3a	10^4a	10^5a	10^6a
UO_2	1270	257	14.1	2.3
$\text{UO}_2 + \text{RG-MOX}$	899	162	7.4	1.8
$\text{UO}_2 + \text{RG-IMF}$	670	109	5.2	1.7

Um das Gefährdungspotential der radioaktiven Abfälle besser einschätzen zu können, wurde in Abbildung 5.4 eine Linie bei $4 \cdot 10^6$ Sv/GW_ea eingezeichnet. Dies entspricht dem asymptotischen radiotoxischen Gefährdungspotential der Masse an natürlichem Uran, welche gebraucht wird, um eine Leistung von 1 GW_ea zu produzieren. Es ist zu erkennen, daß das Gefährdungspotential der Spaltprodukte bereits nach rund 400 Jahren unter den Wert des natürlichen Urans fällt. Das Gefährdungspotential der Actiniden der unterschiedlichen Brennstoffe erreicht diesen Wert allerdings erst nach 100000 bis 200000 Jahren. Der Vergleich in Tabelle 5.7 zeigt, daß im Zeitraum zwischen 10^3 und 10^6 Jahren die Verwendung von uranfreiem Brennstoff das kleinste Gefährdungspotential aufweist. So liegt z. B. nach 10^5 Jahren das radiotoxische Risiko von RG-IMF ca. um den Faktor 2.7 unter dem des UO₂-Brennstoffs. Im Fall von RG-MOX ergibt sich ein rund 40% höheres Gefährdungspotential als mit RG-IMF.

Abbildung 5.4: Zeitverläufe der Gefährdungspotentiale durch Ingestion für abgebrannte UO₂-, RG-MOX- und RG-IM-Brennstoffe aus entsprechenden DWR-Pools, aufgeteilt nach den Beiträgen der Spaltprodukte und der Actiniden.



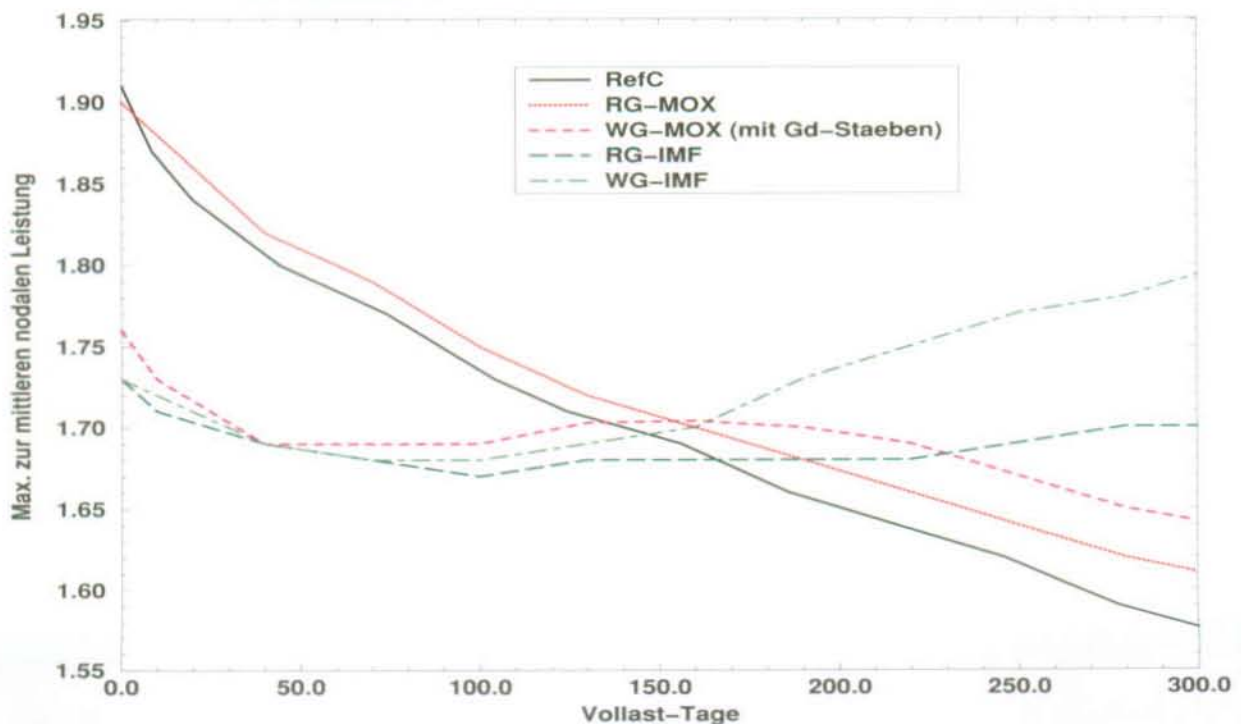
Zusätzlich zu dem Vorteil des kleineren Gefährdungspotentials soll hier bei der Verwendung von IMF nochmals auf die in Kapitel 4.2.4 beschriebene Unlöslichkeit der Matrix in Wasser wie auch in Säuren hingewiesen werden. Zusammen mit der guten Aufnahme eines großen Teils der höheren Actiniden und der Spaltprodukte durch die Matrix wird somit

der Austritt von radiotoxischen Nuklide aus dem Endlager erheblich erschwert. Gemeinsam mit der Volumenreduktion durch Wiederaufarbeitung sind dies wichtige Vorteile bei der Endlagerung des hier entwickelten uranfreien Brennstoffs gegenüber UO_2 - oder RG-MOX-Brennstoff.

5.3.3 Leistungsverteilungen

Durch den Anstieg des thermischen Flusses mit dem Abbrand werden in den uranfreien Brennstoffen Leistungsspitzen hervorgerufen. Abbildung 5.5 zeigt den zeitlichen Verlauf der nodalen Leistungsspitzen für die fünf Kerne. Es ist zu sehen, daß der Effekt der Spektrumsänderung im IMF keinen signifikanten Einfluß auf die nodalen Leistungsspitzen hat. Allerdings sind Unterschiede gegenüber den uranhaltigen Kernen deutlich zu erkennen. Während sich die Leistungsverteilung im RefC- und RG-MOX-Kerne mit dem Abbrand deutlich verflacht, bleiben die Werte der nodalen Leistungsspitzen im WG-MOX- und im RG-IMF-Kern über dem Abbrand nahezu konstant. Im WG-MOX-Kern macht sich hier das Gd bemerkbar, wodurch die Leistung besonders in den frischen Brennelementen reduziert wird. Aus diesem Grund sind auch die Leistungsspitzen in diesem Kern zum BOC bedeutend niedriger als in den beiden anderen uranhaltigen Kernen. Im Fall von WG-IMF steigt hingegen die nodale Leistungsspitze zwischen BOC und EOC leicht von 1.73 auf 1.80 an.

Abbildung 5.5: Maximum der relativen nodalen Leistungsdichte in den fünf Kernen als Funktion des Abbrands



Die Spektrumsvariation mit dem Abbrand wirkt sich in den IMF-Kernen also weniger auf die nodale Leistungsdichte aus, sondern mehr in den Stäben an den Rändern der Brennelemente. Dies ist vergleichbar mit dem Einsatz von MOX-Brennstoff als Teilbeladung in UO_2 -Kernen. Steht z. B. ein frisches uranfreies Brennelement neben einem Element mit einer Standzeit von drei Zyklen, so könnte dies zu Leistungsspitzen in den Randstäben des frischen uranfreien Brennelements führen. Um dies zu prüfen, wurden die Pin-Power-Werte mit SILWER berechnet [71]. In Tabelle 5.8 sind die Werte der nodalen radialen (F_{xy}), axialen (F_z) und stabweisen (F_q) Leistungsmaxima der betrachteten Kerne für BOC und EOC zusammengestellt. Zum BOC sind die maximalen Stabileistungen im RefC-Kern und den beiden MOX-Kernen ungefähr gleich groß. Die Werte in uranfreien Kernen liegen rund 9% tiefer. Mit Ausnahme des WG-IMF-Kernes erniedrigen sich zwischen BOC und EOC die Pin-Power-Werte in allen Kernen. Die angesprochene Änderung des Spektrums macht sich dagegen im Fall von WG-IMF bemerkbar, so daß sich hier eine maximale Stabileistung mit ~ 495 W/cm am EOC einstellt. Dies ist gleichzeitig die höchste Stabileistung in allen Kernen, bei einer mittleren Stabileistung von 230 W/cm des betrachteten Reaktortyps.

Tabelle 5.8: Vergleich von nodalen, F_{xy} und F_z , sowie stabweisen relativen Leistungsspitzen F_q der betrachteten Kerne.

F_{xy} : maximaler radialer Wert (axial über das BE gemittelt)

F_z : axiale Leistungsspitze (radialer Mittelwert über alle BE)

F_q : maximale Brennstabileistung (aus der Pin-Power-Rechnung)

	BOC			EOC		
	F_{xy}	F_z	F_q	F_{xy}	F_z	F_q
RefC	1.52	1.17	2.11	1.36	1.08	1.72
RG-MOX	1.56	1.19	2.14	1.38	1.14	1.78
WG-MOX	1.51	1.16	2.10	1.41	1.11	1.86
RG-IMF	1.38	1.20	1.94	1.40	1.22	1.82
WG-IMF	1.39	1.20	1.95	1.48	1.14	2.15

5.3.4 Reaktivitätskoeffizienten

Für die Regelbarkeit und das Verhalten bei Transienten sind der Doppler- und der Moderator temperaturkoeffizient von großer Wichtigkeit. Beide Größen werden in den nachstehenden Kapiteln betrachtet.

5.3.4.1 Brennstoff-Temperatur-Rückkopplung

Die Brennstoff-Temperatur-Rückkopplung wurde in allen Fällen durch die Berechnung des Dopplerkoeffizienten (DK)¹⁰ für den ganzen Kern untersucht. Dabei wurden zwei verschiedene Modelle für die Temperaturverteilung im Kern verwendet:

- Uniformer Dopplerkoeffizient (UDK): Die Verteilung der Brennstofftemperatur im Kern ist konstant. Temperaturänderungen im Kern werden uniform durchgeführt, wobei alle anderen Parameter und Verteilungen, wie z. B. Moderatortemperatur, Xenondichte, etc., konstant gehalten werden. Dieses Modell gibt kleinere DK für den Kern. Es ist also konservativ in den Fällen, in denen eine große Temperaturreückkopplung erwünscht ist, z. B. bei einem schnellen Leistungsanstieg auf Grund eines Kontrollstabauswurfs.
- Verteilter Dopplerkoeffizient (VDK): Die Änderung der mittleren Brennstofftemperatur als Folge der Änderung in der Leistung wird berechnet, nachdem alle Parameter an die neue Leistungsverteilung angepaßt wurden. Dieses Modell gibt größere DK und ist somit konservativ bei der stationären Betrachtung von Unfällen, bei denen es zu einer Abkühlung des Kerns kommt, wie z. B. einem Dampfleitungsbruch.

Die Abbildungen 5.6 und 5.7 zeigen die Variationen der DK mit der mittleren Brennstofftemperatur in den fünf betrachteten Kernen. Die BOC und EOC-Werte sind in allen Kernen sehr ähnlich, so daß hier nur die Koeffizienten zum EOC dargestellt sind. Der betragsmäßig kleinste DK ist im WG-IMF-Kern zu finden. Hier macht sich der geringere Anteil an geraden Pu-Isotopen bemerkbar. ²⁴⁰Pu und ²⁴²Pu tragen zusammen rund 50% zum DK zum BOL des uranfreien Brennstoffs mit RGPu bei. Dies ist auch der Grund dafür, daß die MOX-Kerne einen negativeren DK aufweisen als der RefC. Auch hier macht sich der kleinere Anteil von ²⁴⁰Pu und ²⁴²Pu im WG-MOX-Kern bemerkbar. Der temperaturabhängige DK dieses Kerns liegt folgerichtig zwischen dem des RefC- und dem des RG-MOX-Kerns. Die DK, UDK sowohl als auch VDK des RG-IMF-Kerns sind rund 30 - 50% weniger negativ als die des RefC-Kerns, wobei bei den beiden IMF-Kernen die Berechnung der Brennstofftemperatur als Funktion der Leistung auf der Annahme einer temperatur- und abbrandunabhängigen Wärmeleitfähigkeit von ZrO₂ beruht.

¹⁰In diesem Abschnitt wird vom Dopplerkoeffizienten gesprochen, da im IMF, mit Er als BP, wie auch in uranhaltigen Kernen der Dopplereffekt für die Brennstofftemperaturreückkopplung maßgeblich ist

Abbildung 5.6: Der uniforme Dopplerkoeffizient (UDK) zum EOC als Funktion der Brennstoff-Temperatur in den fünf Kernen

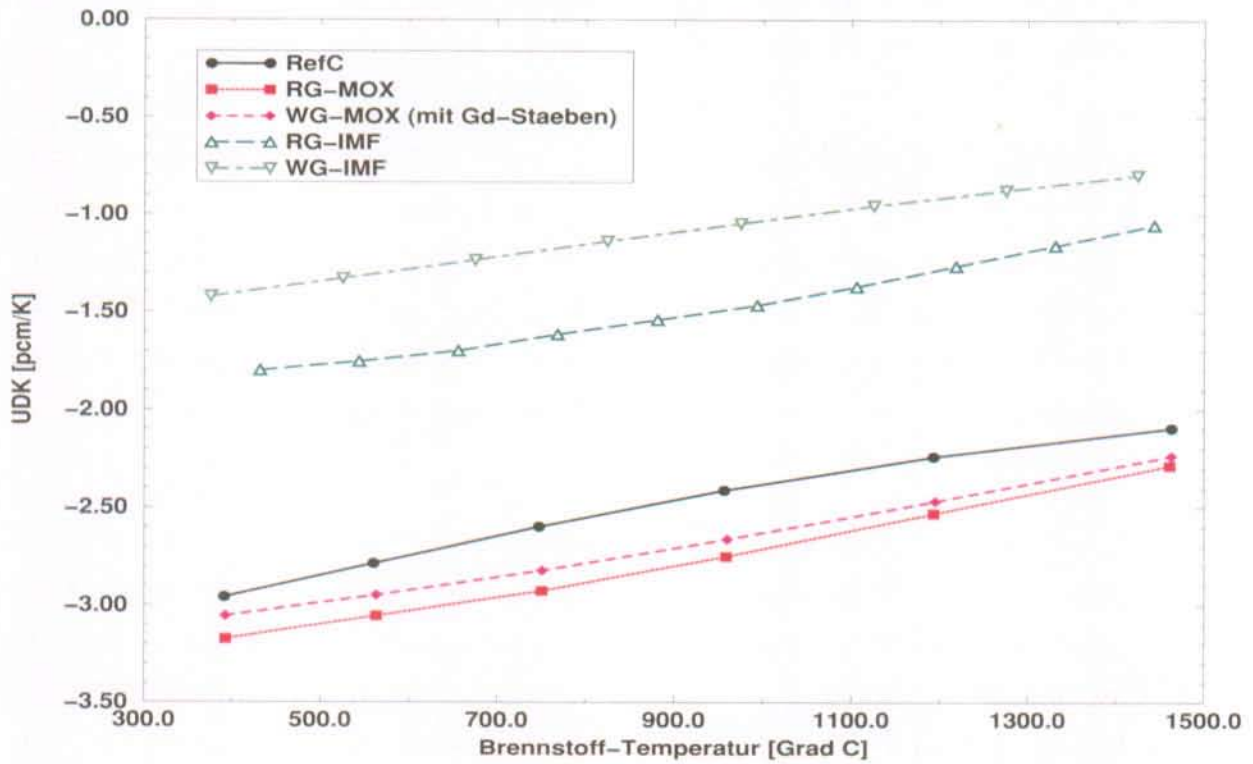
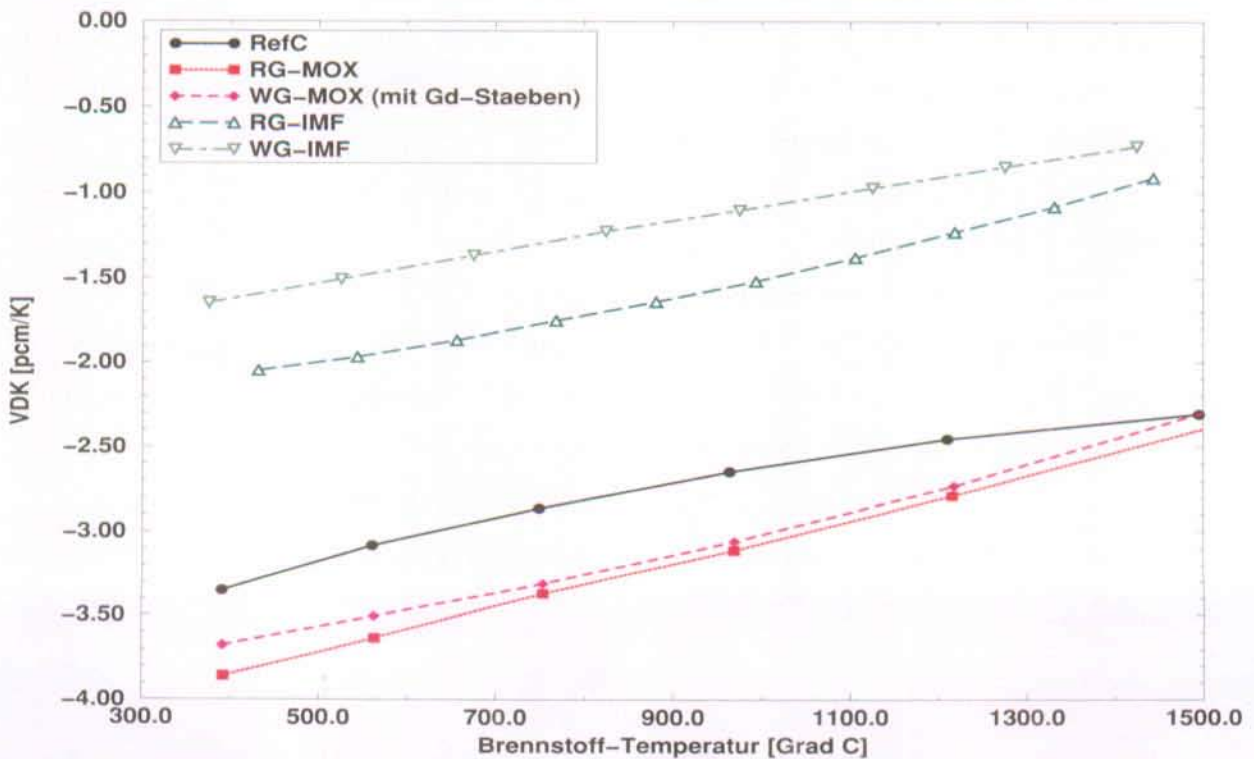


Abbildung 5.7: Variation des verteilten Dopplerkoeffizienten (VDK) zum EOC mit der Brennstofftemperatur in den verschiedenen Kernen



5.3.4.2 Moderatortemperaturkoeffizient

Der Wert des Moderatortemperaturkoeffizienten (MTK) spielt für die axialen Leistungsverteilung und die Kontrollierbarkeit des Reaktors beim Übergang von HFP- zu HZP-Bedingungen eine wichtige Rolle. Auch entscheidet der MTK mit über die Kontrollierbarkeit eines Kerns in Fällen von Unfällen, in deren Folge der Moderator eine starke Abkühlung erfährt, wie z. B. bei dem in Kapitel 5.3.6.2 beschriebenen Dampfleitungsbruch. Hierbei beinhaltet der MTK nicht nur die Änderung der Moderatortemperatur, sondern auch die durch die Temperaturvariation bedingte Dichteänderung des Moderators. In Tabelle 5.9 sind die MTK der fünf Kerne zum BOC und EOC für einen Übergang der Kerneintrittstemperatur von 291.5 auf $\sim 240^{\circ}\text{C}$ wiedergegeben. Hierdurch sinkt die mittlere Moderatortemperatur im Kern von 309.2 auf rund 255°C . Damit ähnelt dieses Szenario der im Sicherheitsbericht des RefC angegebenen Temperaturänderung bei einem Dampfleitungsbruch.

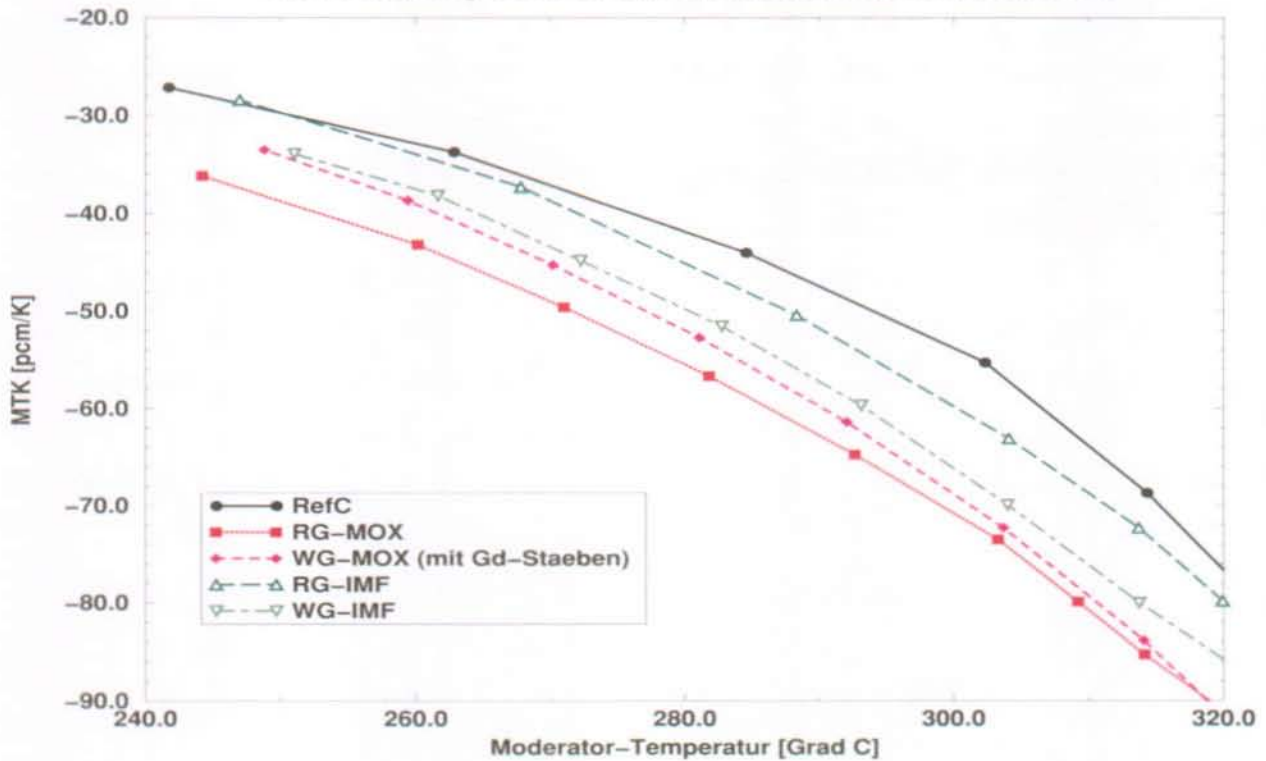
Tabelle 5.9: Moderatortemperaturkoeffizienten (MTK) der fünf betrachteten Kerne für den Übergang der Kerneintrittstemperatur von 291.5 auf 240°C zum BOC und EOC

	RefC		WG-MOX		RG-MOX		WG-IMF		RG-IMF	
	BOC	EOC	BOC	EOC	BOC	EOC	BOC	EOC	BOC	EOC
MTC [pcm/K]	-7.4	-42.8	-28.3	-54.6	-33.2	-58.0	-31.8	-53.1	-28.4	-47.9

Die Änderung des MTK mit der Moderatortemperatur ist in Abbildung 5.8 dargestellt. Hierbei sind folgende Fakten festzustellen:

1. Auf Grund der besseren Moderation im RefC-Kern sind die MTK am wenigsten negativ.
2. In allen Kernen nimmt der MTK betragsmäßig mit dem Abbrand stark zu. Die Zunahme im RefC-Kern ist dabei am stärksten. Der Grund liegt im schnellen Aufbau des Plutoniums in den frischen Brennelementen über den ersten Zyklus, wie Abbildung 2.1 zu entnehmen ist.
3. Die betragsmäßig größten MTK treten in den MOX-Kernen auf, wobei, wie schon bei den DK der RG-MOX-Kern die negativsten Werte aufweist.
4. Die MTK der uranfreien Kerne liegen in den meisten Fällen zwischen den Werten des RefC-Kerns und denen der MOX-Kerne.

Abbildung 5.8: Variation des Moderator Temperaturkoeffizienten (MTK) mit der Moderator Temperatur in den verschiedenen Kernen zum EOC



Grundsätzlich ist ein etwas negativerer MTK, genauso wie ein negativerer DK, vorteilhaft. So ist z. B. die Rückkopplung zwischen Brennstoff- und Moderator Temperatur einerseits sowie der Leistung andererseits stärker, wodurch sich Leistungsspitzen im Kern leichter vermeiden lassen als mit weniger negativen Temperaturkoeffizienten. Ob ein Temperaturkoeffizient einen zu negativen oder zu wenig negativen Wert aufweist, hängt von der jeweiligen Änderung des Reaktorzustandes ab. Für Transienten, die einen schnellen Leistungsanstieg zur Folge haben, wie dies z. B. bei einem Steuerstabauswurf der Fall sein kann, sollte der Dopplerkoeffizient möglichst negativ sein, so daß ein Leistungsanstieg begrenzt wird und es zu keinen Schäden kommt. Kommt es dagegen zu Leistungsabsenkungen, z. B. beim Herunterfahren des Reaktors mittels Steuerstäbe, sind, von sehr negativen MTK geprägte Leistungskoeffizienten eher störend. Jetzt wird bei der Leistungsabsenkung mehr Reaktivität frei als mit weniger negativen Werten. Damit der Reaktor regelbar bleibt darf somit der Moderator Temperaturkoeffizient auch nicht zu negativ sein. Der Leistungskoeffizient eines Kernes sollte somit zwischen diesen beiden Grenzen liegen. Dabei sind eher etwas negativere DK als MTK wünschenswert, da hierdurch ein Leistungsanstieg bei verschiedenen Transienten besser begrenzt werden kann.

5.3.5 Abschaltmarge

Eine wichtige Forderung für die Kontrollierbarkeit eines Kerns ist eine genügend große Abschaltmarge, um den Kern von HFP- auf HZP-Bedingungen zu bringen. Hierfür dürfen nur die Kontrollstäbe des Reaktors verwendet werden. In Tabelle 5.10 werden die für diesen Übergang sich ergebenden Reaktivitätsbilanzen der hier betrachteten Kerne zusammengefaßt. Dabei wurden folgende Annahmen getroffen:

- Der Reaktivitätsanstieg aufgrund der Dampfkondensation im Kern wird in Sicherheitsberichten für Urankerne mit 0.05% angegeben. Für Pu-Kerne ist von einer stärkeren Rückkopplung wegen der negativeren MTK auszugehen. Aus diesem Grund wurden für die Pu-Kerne hier Werte von 0.1% verwendet.
- Das Einfahrlimit der Kontrollstäbe ist im Referenzreaktor auf 0.3% bei HFP beschränkt. Dieser Wert wurde für alle Kerne übernommen.

Tabelle 5.10: Reaktivitätsbilanz der verschiedenen Kerne für den Übergang von HFP- zu HZP-Bedingungen; alle Angaben in %

	RefC		RG-MOX		WG-MOX		RG-IMF		WG-IMF	
	BOC	EOC	BOC	EOC	BOC	EOC	BOC	EOC	BOC	EOC
Brennstoff- sowie Moderator- temperatur- und Leistungsumverteilung	2.24	2.94	2.45	3.28	2.25	3.21	1.38	2.12	1.58	2.53
Dampfkondensation	0.05	0.05	0.10	0.10	0.10	0.10	0.10	0.10	0.10	0.10
Einfahrlimit der Stäbe	0.30	0.30	0.30	0.30	0.30	0.30	0.30	0.30	0.30	0.30
Total HFP zu HZP	2.59	3.29	2.85	3.68	2.65	3.61	1.78	2.52	1.98	2.93
Wirksamkeit der Stäbe:										
(a) alle Stäbe	-7.43	-8.09	-5.32	-5.78	-5.64	-6.40	-5.22	-6.04	-5.74	-6.76
(b) alle, außer dem wirksamsten Stab	-4.90	-5.65	-4.71	-5.19	-5.09	-5.86	-4.86	-5.41	-5.32	-6.02
(c) effektive Wirksamkeit(90% von (b))	-4.41	-5.08	-4.24	-4.67	-4.58	-5.28	-4.37	-4.87	-4.79	-5.42
Abschaltbilanz	-1.82	-1.79	-1.39	-0.99	-1.93	-1.66	-2.59	-2.35	-2.82	-2.49

Die maximale von der Sicherheitsbehörde vorgeschriebene Abschaltmarge liegt bei -1.0%. Dieser Wert wird in allen Kernen eingehalten. Nur im Fall von RG-MOX wird diese Vorgabe mit -0.99% zum EOC nicht ganz erreicht. Die negativere Abschaltmarge im WG-MOX-Kern im Vergleich zum RG-MOX-Kern kann mit den weniger negativen DK und MTK sowie der höheren Kontrollstabwerte aufgrund der kleineren Pu-Dichte erklärt werden. Die wesentlich bessere Kontrollierbarkeit der uranfreien Kerne ist zum einen mit den ebenfalls betragsmäßig kleineren Temperaturkoeffizienten und zum anderen mit der abbrandabhängigen Zunahme der Kontrollwerte zu erklären.

Besonders auffällig ist der wesentlich höhere Wert des effektivsten Kontrollstabes im RefC-Kern mit über 30% des gesamten Kontrollstabwertes im Vergleich zu den Pu-Kernen mit Werten um 10%. Dieser Wert ist korreliert mit der Flußumverteilung durch das Ein- bzw. Ausfahren der Kontrollstäbe. Die Größe der Flußumverteilung steigt mit den Stabwerten der Steuerelemente. Die Stabwerte sind aber in den Pu-Kernen wesentlich niedriger, auf Grund des härteren Spektrums im Vergleich zum RefC-Kern.

Der Wert des effektivsten Stabes nimmt in allen Kernen mit Uran von BOC zum EOC leicht ab. Dagegen steigt dieser Wert in den uranfreien Kernen vom BOC zum EOC, da hier das Spektrum mit dem Abbrand thermischer wird, wie in Abbildung 4.4 gezeigt wurde.

5.3.6 Statische Betrachtung von Transientenverhalten

Der Anteil der verzögerten Neutronen β_{eff} und die Lebenszeit der prompten Neutronen Λ sind wichtige Parameter für das Transientenverhalten, z. B. bei einem Reaktivitätsanstieg durch einen Kontrollstabauswurf. Die Reaktivität wird dabei häufig in \$, als Verhältnis zwischen der Reaktivität ρ in % und β_{eff} angegeben. Diese Einheit gibt die Distanz zur prompten Kritikalität anschaulich wieder. Bei einem Reaktivitätsanstieg ≥ 1 \$, wird der Reaktor prompt kritisch bzw. prompt überkritisch. Eine Leistungsexkursion kann in diesem Fall nur noch durch die Brennstofftemperaturrückkopplung begrenzt werden. Mit stationären Rechenmethoden, so wie hier mit ELCOS, läßt sich der größte zu erwartende Reaktivitätsanstieg berechnen. Hierdurch läßt sich prüfen, ob ein Kern überhaupt prompt kritisch oder überkritisch werden kann.

Mit BOXER können die kinetischen Parameter einer Zelle bestimmt werden. Zur Zeit ist es allerdings nicht möglich, β_{eff} und Λ für zweidimensionale BE-Anordnungen mit BOXER zu berechnen und diese Parameter an SILWER weiterzugeben. Aus diesem Grund wurden in einem ersten Schritt für ein Brennelement repräsentative, abbrandabhängige kinetische

Parameter durch BOXER-Zellrechnungen bestimmt. Diese Daten wurden anschließend mit den Leistungsverteilungen aus SILWER gewichtet. Die so berechneten kinetischen Parameter des RefC-Kerns wiesen zum BOC und EOC eine Abweichung von nur $\sim 1\%$ auf im Vergleich sowohl zu den kinetischen Parametern des Sicherheitsberichts als auch zu den mit dem Codesystem CMS [37, 38] erzeugten Resultaten.

5.3.6.1 Kontrollstabauswurf

Tabelle 5.11 zeigt die kinetischen Parameter für die verschiedenen Kerne. In den MOX-Kernen und dem RG-IMF-Kern sind die Werte für β_{eff} und Λ rund halb so groß wie im RefC-Kern. Die Werte im WG-IMF-Kern weisen sogar nur ca. ein Drittel der Werte des RefC-Kernes auf.

Tabelle 5.11: Kinetische Parameter β_{eff} und Λ für die verschiedenen Kerne

	RefC		RG-MOX		WG-MOX		RG-IMF		WG-IMF	
	BOC	EOC	BOC	EOC	BOC	EOC	BOC	EOC	BOC	EOC
$\beta_{\text{eff}} [\%]$	0.618	0.523	0.388	0.404	0.362	0.387	0.320	0.350	0.217	0.218
$\Lambda [\mu\text{s}]$	22.1	25.5	9.6	11.0	11.8	14.4	8.6	11.4	6.9	7.0

Die bestehenden Symmetrien ausnutzend werden die Kontrollstäbe eines Kerns normalerweise zu Bänken zusammengefaßt. Es können dann nur alle Stäbe einer Bank zusammen ein- oder ausgefahren werden. Im Referenzreaktor ist der maximale Wert, den ein Kontrollstab im kritischen Reaktorbetrieb aufweisen kann, durch das Fahrsystem der Stäbe beschränkt. So ist es nur bei einer Leistung unterhalb von 50% der nominalen Reaktorleistung möglich, Kontrollstäbe bestimmter Bänke voll einzufahren. Der maximale Wert eines bei 50% Leistung eingefahrenen Stabes wurde für jeden der fünf Kerne berechnet und in Tabelle 5.12 zusammengestellt. Es ist zu sehen, daß alle Werte zwischen 0.3 und 0.5 β liegen, so daß keine Gefahr einer prompten Kritikalität und somit eines unkontrollierbaren Leistungsanstiegs besteht. Daß dies auch für die Pu-Kerne zutrifft, ist auf die niedrigeren ρ -Werte in % der effektivsten Kontrollstäbe in diesen Kernen zurückzuführen. Die Wirksamkeit der effektivsten Kontrollstäbe in den Pu-Kernen liegt hier bei rund einem Drittel der Wirksamkeit des effektivsten Stabes im RefC-Kern.

Tabelle 5.12: Maximaler Wert ρ eines Kontrollstabs zum BOC und EOC in den unterschiedlichen Kernen.

	RefC		RG-MOX		WG-MOX		RG-IMF		WG-IMF	
	BOC	EOC	BOC	EOC	BOC	EOC	BOC	EOC	BOC	EOC
ρ [%]	0.28	0.34	0.45	0.36	0.40	0.34	0.36	0.30	0.51	0.52

5.3.6.2 Frischdampfleitungsbruch

Beim Bruch einer Frischdampfleitung zwischen Dampferzeuger und Turbine kommt es sekundärseitig zu einer Druck- und Temperaturabsenkung im Dampferzeuger. Durch die Temperaturreduktion im Dampferzeuger kommt es primärseitig ebenfalls zu einer Temperaturabsenkung des Wassers am Kerneintritt. Um dem entgegenzuwirken, wird über Schnellschlußventile die Druck- und Temperaturabnahme im Dampferzeuger beim betrachteten Referenzreaktor beschränkt. Damit ist die Abnahme der Kerneintrittstemperatur in einem Kreislauf gemäß dem Sicherheitsbericht, Rev. 1981, von 291.5°C auf rund 250°C limitiert.

In SILWER kann bei der Kerneintrittstemperatur nicht nach Kreisläufen unterschieden werden. Aus diesem Grund wurde die gesamte Kerneintrittstemperatur auf 250°C abgesenkt. In Tabelle 5.13 werden die Reaktivitätsbilanzen der fünf Kerne für dieses somit konservativ behaltene Szenario zum EOC miteinander verglichen. Tabelle 5.9 weist die größten λ auf, so daß eine Absenkung der Moderatortemperatur hier den größten β zeigt. Die Reaktorleistung wurde für diese Untersuchung auf 5% der nominalen Leistung gesetzt. Dies entspricht der Nachzerfallswärme eines Kerns ca. 10 Sekunden nach dem Abschalten zum EOC. Als mittlere Moderatortemperatur im Kern ergibt sich rund 250.5°C .

In Tabelle 5.13 ist zu sehen, daß eine befriedigende Abschaltbilanz im RefC-, dem WG-MOX- und den IMF-Kernen zu finden ist. Nur im Fall mit RG-MOX ist der Kern leicht überkritisch.

Tabelle 5.13: Reaktivitätsbilanz am EOC der verschiedenen Kerne für eine Absenkung der Kerneintrittstemperatur von 291.5 auf 250°C. Der effektivste Kontrollstab wurde nicht eingefahren.

		RefC	RG-MOX	WG-MOX	RG-IMF	WG-IMF
Brennstofftemperatur [°C]		266	267	267	300	300
Ohne Kontrollelemente:	k_{eff}	1.0421	1.0549	1.0516	1.0391	1.0453
	ρ [%]	4.04	5.20	4.91	3.76	4.34
	ρ [\$]	7.73	12.85	12.67	10.75	19.94
Mit Kontrollelementen:	k_{eff}	0.9903	1.0021	0.9948	0.9880	0.9886
	ρ [%]	-0.98	0.21	-0.53	-1.22	-1.15
	ρ [\$]	-1.88	0.53	-1.36	-3.48	-5.28

5.4 Resümee der Untersuchung von Pu-Vollkernen in LWR

Es wurden die neutronenphysikalischen Eigenschaften von vier verschiedenen Typen von Pu-Kernen (MOX und IMF jeweils mit RGPu und WGPu) und einem realen UO₂-Kern eines existierenden Reaktors miteinander verglichen. Alle Kerne hatten eine Leistung von 1 GW_e und eine Zykluslänge von rund 305 Tagen mit einem Streckbetrieb von rund 30 Tagen. Für jeden Pu-Kern konnte ein Vier-Zonen-Gleichgewichtszyklus erstellt werden. Durch die Nachrechnung des existierenden Referenzreaktors mit einer UO₂-Beladung ergab sich eine partielle Validierung der verwendeten Methoden zur dreidimensionalen Kernsimulation sowie der erstellten Gruppenkonstanten. Folgende Ergebnisse wurden gefunden:

- Die Borkonzentration in den Pu-Kernen mit BP war kleiner oder gleich der Konzentration im RefC-Kern. Nur der RG-MOX-Kern braucht zum BOC eine rund 300 ppin höhere Borkonzentration im Moderator, um die anfängliche Überschussreaktivität zu kompensieren. Im WG-MOX-Kern müssen allerdings Gd-haltige Stäbe eingesetzt werden, um die Borkonzentrationen in einem vertretbaren Rahmen halten zu können.

- Die Pu-Reduktion ist in den MOX-Kernen durch den Aufbau von neuem Plutonium aus dem Uran beschränkt. Sie liegt mit ca. 58 und 42 kg pro $TW_e h$ für den RG-MOX- und den WG-MOX-Kern bei rund einem Drittel der Pu-Reduktion in den IMF-Kernen, die 141 und 138 kg pro $TW_e h$ für RG-IMF und WG-IMF aufweisen. Die Produktion von Plutonium im RefC-Kern liegt bei ca. 32 kg pro $TW_e h$, so daß im RG-IMF-Kern die Plutoniummenge entsprechend der Plutoniumproduktion aus 4.4 UO_2 -Kernen vernichtet werden kann.

Das Gefährdungspotential der radioaktiven Abfälle läßt sich durch den Einsatz von IMF gegenüber MOX reduzieren. Einen noch größeren Vorteil dürfte sich allerdings durch die wasserunlösliche Matrix der IMF-Brennstoffe im Endlager ergeben.
- Die Leistungsverteilungen in den MOX-Kernen sind der des RefC-Kernes, sowohl zum BOC als auch zum EOC, ähnlich. Die IMF-Kerne haben zum BOC eine etwas flachere Leistungsverteilung als der RefC-Kern. Über dem Abbrand macht sich der starke Anstieg des thermischen Flusses im IMF bemerkbar, so daß die Leistungsspitzen zum EOC in den IMF-Kernen leicht über denen des RefC-Kerns liegen.
- Die weniger negativen Brennstoff- und Moderator temperaturkoeffizienten (DK, MTK) der IMF-Kerne gegenüber dem RefC-Kern wirken sich günstig auf die Abschaltbilanz dieser Kerne aus. So ist zwar der Reaktivitätswert der Kontrollstäbe in allen Pu-Kernen um rund ein Drittel kleiner als im Referenzfall, dafür ist aber in den uranfreien Kernen auch weniger Reaktivität zu kompensieren. Im Gegensatz zu den IMF-Kernen sind die Koeffizienten in den MOX-Kernen negativer als im RefC-Kern, so daß hier beim Abschalten der Kerne mit den Kontrollelementen mehr Reaktivität zu kompensieren ist.
- Ein ähnliches Bild ergibt sich für die hier betrachteten Transienten. Zwar weisen die Pu-Kerne um mehr als die Hälfte kleinere kinetische Parameter wie der RefC-Kern auf, dafür ist aber der Reaktivitätsanstieg nach einem Kontrollstabauswurf geringer. Somit wird keiner der betrachteten Kerne durch den Auswurf eines Kontrollstabs prompt kritisch. Dies ist allerdings durch die Fahrweise der Kontrollstäbe des hier betrachteten Referenzreaktors bedingt, die nur bei reduzierter Reaktorleistung das volle Einfahren der Kontrollstäbe zuläßt. In den Ergebnissen zum Frischdampfleitungsbruch spiegelt sich die Abschaltbilanz wieder. Nur im Fall von RG-MOX reichen die Kontrollstäbe alleine nicht aus um den Kern unterkritisch zu halten. Hier machen sich die negativsten DK und MTK aller Kerne bemerkbar. In den uranfreien Kernen und im WG-MOX-Kern scheint dagegen diese Transiente, wie im RefC-Kern, mit den Kontrollstäben beherrschbar zu sein.

Auf Grund der hier gefundenen Ergebnisse erscheint es somit möglich, uranfreie Vollkerne in bestehende Druckwasserreaktoren einzusetzen. Allerdings sind die Wärmeleitfähigkeit, die kinetischen Parameter und betragsmäßig der Dopplerkoeffizient kleiner als bei Uranbrennstoffen. Somit muß in weiteren Arbeiten, z. B. Transientenrechnungen, eine Bestätigung der auf Basis von stationären Rechnungen getroffenen Schlußfolgerungen zum Störfallverhalten von 100 % uranfreien DWR erfolgen.

Im Rahmen der Kernausslegung wurden hier, bei der Berechnung der Gruppenkonstanten mit BOXER, Hohlpellets für die IMF-Kerne betrachtet, um auf Grund des jetzigen Kenntnisstandes zur Wärmeleitfähigkeit ähnliche Brennstofftemperaturen wie bei UO_2 voraussetzen zu können. Allerdings weisen Hohlpellets auch Nachteile gegenüber Vollpellets auf. So ist - bei konstantem Stabdurchmesser - die im Brennstoff speicherbare Wärmemenge kleiner, und die Herstellungskosten von Hohlpellets sind höher als die der Vollpellets. Aus diesen Gründen werden am PSI z. Z. Möglichkeiten untersucht, die Wärmeleitfähigkeit durch die Zugabe von weiteren neutronisch inerten Stoffen zu erhöhen, so daß Vollpellets mit vertretbaren Brennstofftemperaturen verwendet werden können. Die sich aus diesen Bemühungen möglicherweise ergebenden Änderungen an der Matrixzusammensetzung sowie auch die Verwendung von Vollpellets an Stelle von Hohlpellets haben aber nur einen unwesentlichen Einfluß auf die neutronenphysikalischen Untersuchungen, so daß die hier gefundenen Aussagen ihre Richtigkeit behalten.

Der Einsatz von 100%-MOX-Kernen mit WGPu in LWR, wie er z. B. auch in [104] vorgeschlagen worden ist, ist weniger problematisch als der Einsatz von 100% Kernen mit RG-MOX. Damit ist die Vernichtung von WGPu über die Verbrennung in LWR mit MOX ein gangbarer Weg. Wiederaufgearbeitetes Plutonium aus abgebranntem WG-MOX-Brennstoff könnte ein zweites Mal als IMF in LWR eingesetzt und anschließend ohne größere Proliferationsgefahren endgelagert werden.

6 Heterogene Kernanordnungen

Es kann grundsätzlich nicht davon ausgegangen werden, daß mit dem in Kapitel 4 ausgelegten uranfreien Brennstoff übergangslos in einem einzigen Schritt ein Vollkern zum Einsatz kommt. Vielmehr würden IMF-Brennelemente zuerst in einen Mischkern zusammen mit UO_2 -BE eingesetzt werden, so wie dies auch z. Z. mit MOX-Teilbeladungen gehandhabt wird [24, 26, 105]. Bedingt durch die unterschiedlichen Spektren, die in den Abbildungen 2.2 und 4.4 zu sehen sind, kommt es in den MOX-BE am Übergang zu den UO_2 -BE zu Leistungsspitzen. Um dem entgegenzuwirken werden MOX-BE für ihren Einsatz in einer Uranumgebung optimiert [24].

Eine ähnliche Vorgehensweise wird auch hier für die uranfreien Brennelemente verfolgt, wobei in einem ersten Schritt die Auslegung hinsichtlich der Leistungsverteilung innerhalb des IMF-BEs erfolgt. In einem zweiten Schritt wird dieses optimierte IMF-BE in den in Kapitel 5 betrachteten RefC-Kern eingesetzt und geprüft, welchen Einfluß der Einsatz von IMF-BE an Stelle von UO_2 -BE in existierenden UO_2 -Kernen hat.

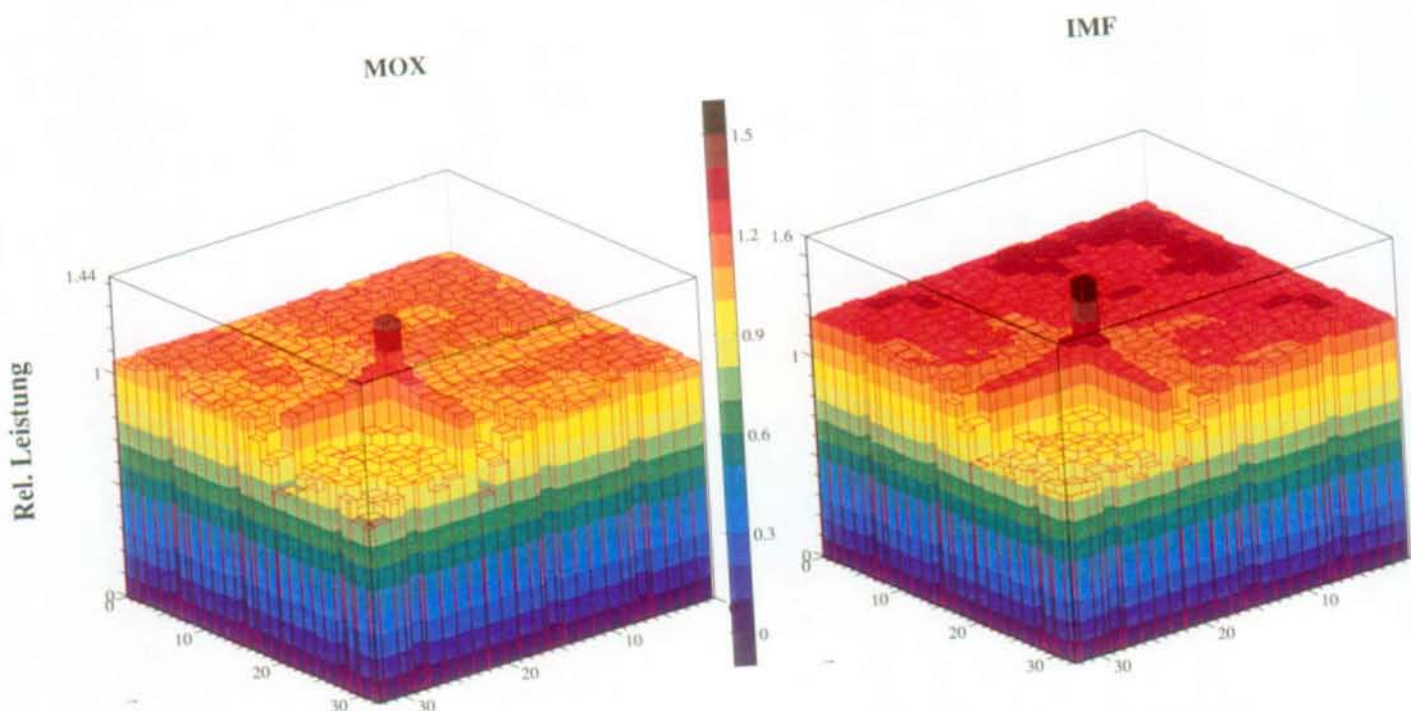
6.1 Brennelementauslegung

Die Brennelementauslegung der IMF-BE für den Einsatz in einem UO_2 -Kern erfolgt mit dem zweidimensionalen Modul von BOXER. Alle Untersuchungen zur BE-Auslegung erfolgen mit Reaktorplutonium. Betrachtet wird eine quadratische 3×3 BE-Anordnung, wobei es aus Symmetriegründen ausreicht, rechnerisch nur ein Viertel dieser Anordnung zu berücksichtigen. Das zentrale Brennelement enthielt dabei MOX oder IMF, die acht umgebenden Elemente UO_2 als Brennstoff. In Abbildung 6.1 werden Ergebnisse der MOX- und IMF-BE in einer Uranumgebung miteinander verglichen. Es zeigt sich, daß die größten Leistungsspitzen dann auftreten, wenn beide Brennstoffe, MOX bzw. IMF sowie das umgebende UO_2 , keinen Abbrand aufweisen. Diese Situation, IMF bzw. MOX-Brennstoff und UO_2 -Brennstoff zum BOL wird in Abbildung 6.1 dargestellt. Untersucht wird immer die relative Leistungsverteilung in den Pu-BE, daß heißt, die Leistung in einer Zelle dividiert durch die mittlere Leistung im MOX- bzw. IMF-BE.

In beiden Brennelementen, MOX und IMF, treten die größten relativen Leistungsspitzen in den Eckzellen auf. Diese Leistungsspitzen sind durch den hohen thermischen Fluß an dieser Stelle aus der UO_2 -Umgebung bedingt. Die Leistungsspitze im IMF-BE fällt mit 1.6 höher aus als die im MOX-BE mit 1.44, da die Pu-Dichte im IMF rund 50% größer ist als im MOX-Brennstoff. Bedingt durch die starke Abschirmung des thermischen Flußes

in den Randzellen des IMF-BE aufgrund der hohen Pu-Dichte und des BP, ist die Leistungsverteilung innerhalb des IMF-BE flacher als im MOX-BE. Aus diesem Grunde ist es ausreichend das Hauptaugenmerk bei der IMF-BE-Auslegung auf die Randstäbe zu richten, während bei der Auslegung der MOX-BE auch die Brennstäbe in der zweiten und dritten Reihe in die Optimierung mit einbezogen werden müssen [24, 105].

Abbildung 6.1: Relative Leistungsverteilung in einem MOX- und einem IMF-BE, umgeben von Standard-UO₂-BE. Alle Brennstoffe wiesen keinen Abbrand auf.



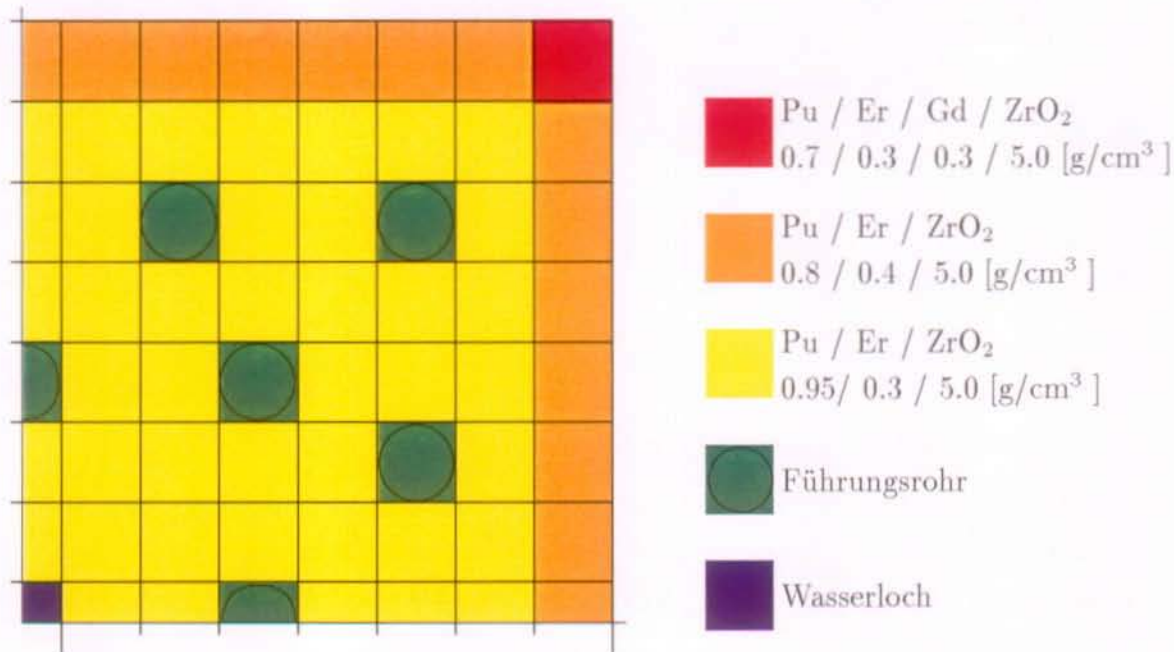
Um über die gesamte Standzeit eine adäquate Leistungsverteilung zu erhalten, wurden folgende Änderungen am IMF-BE vorgenommen:

- Die Pu-Dichte in den Eckstäben wurde von 0.9 g/cm^3 auf 0.7 g/cm^3 abgesenkt. Diese Maßnahme allein reichte nicht aus, um die Leistungsspitze in dieser Zelle auf ein befriedigendes Maß abzusenken. Eine Erhöhung der Er-Dichte hätte einen zu großen Leistungsabfall zum EOL bedeutet. Durch die Zugabe von 0.3 g/cm^3 Gd konnte die Leistung in der Eckzelle genügend abgesenkt werden. Die stark absorbierenden Nuklide ^{155}Gd und ^{157}Gd sind nach einem Zyklus abgebrannt, so daß der Eckstab für die verbleibende Standzeit noch genügend Leistung erbringt.
- In den anderen Randstäben wurde die Pu-Dichte auf 0.8 g/cm^3 abgesenkt und die Er-Dichte von 0.3 g/cm^3 auf 0.4 g/cm^3 angehoben.

- Wie in [24] und [105], wurde der Brennstab in der Mitte des Brennelements durch ein Wasserloch ersetzt. Hierdurch wird die Moderation innerhalb des Brennelements verbessert, wodurch sich ein gleichmäßigerer Abbrand im Brennelement einstellt.
- Die Pu-Dichte in den restlichen Brennstäben wurde von 0.9 g/cm^3 auf 0.95 g/cm^3 erhöht. Dadurch blieb die mittlere Pu-Dichte im Brennelement konstant.

Abbildung 6.2 zeigt die Anordnung der Brennstäbe in dem für den Einsatz in einer UO_2 -Umgebung optimierten IMF-BE.

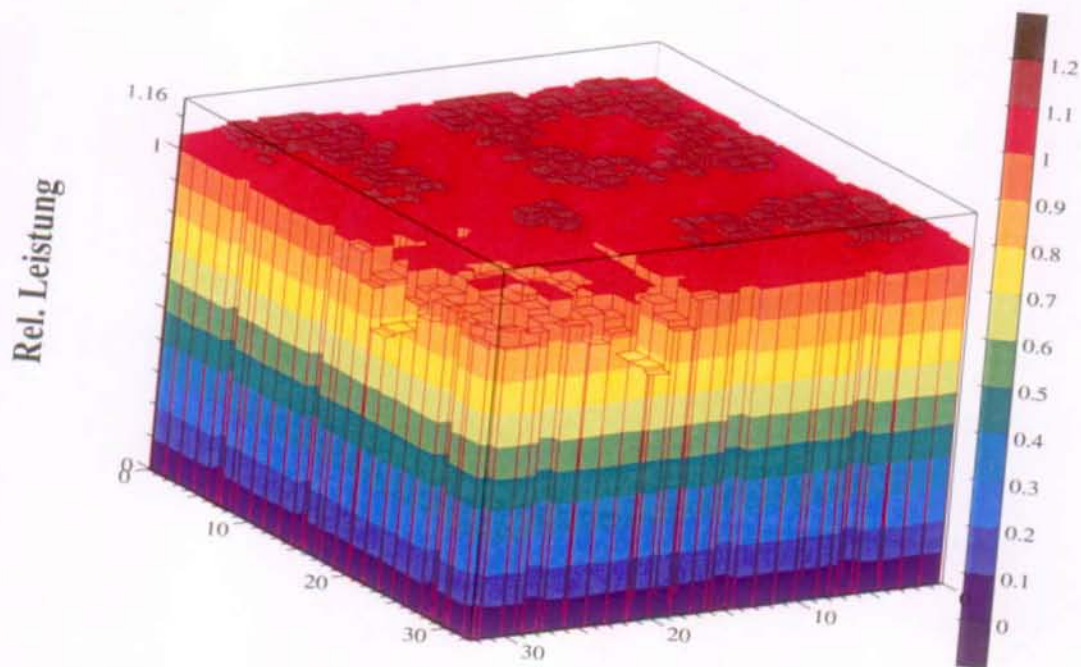
Abbildung 6.2: Viertel-Aufriß des optimierten IMF-BE für den Einsatz in heterogenen Anordnungen mit UO_2 -Brennstoff



Auf Grund des Gadoliniums als BP im Eckstab des neuen IMF-BE tritt die größte Leistungsspitze jetzt nach rund 350 VLT auf. Zu diesem Zeitpunkt sind die absorbierenden Gd-Nuklide so weit transmutiert, daß sie die Leistungsverteilung nicht mehr beeinflussen. Diese Situation ist in Abbildung 6.3 wiedergegeben.

Die maximale relative Leistungsspitze weist nun einen akzeptablen Wert von 1.16 auf. Im weiteren Abbrandverlauf verflacht die Leistungsverteilung. Ab dem Ende der zweiten Standzeit treten in diesen optimierten IMF-BE nur noch relative Leistungsspitzen von unter 1.05 auf. Damit erscheint es möglich, die so ausgelegten IMF-BE als Teilbeladung in UO_2 -Kernen einzusetzen.

Abbildung 6.3: Relative Leistungsverteilung in dem optimierten IMF-BE in einer Umgebung von Standard-UO₂-BE nach 350 VLT Standzeit.



6.2 UO₂-Kern mit optimierten IMF-Brennelementen

Um zu testen, wie sich die optimierten IMF-BE in einem UO₂-Kern verhalten, wurde der Einsatz dieser uranfreen Brennelemente im RefC-Kern mit dem dreidimensionalen Simulationsprogramm SILWER untersucht. Zuerst wurden vier neue IMF-BE an Stelle der UO₂-BE mit den größten relativen nodalen Leistungen eingesetzt, entsprechend den Positionen B-8 und H-14 in Abbildung 6.4. Anschließend wurde untersucht, wie sich die optimierten IMF-BE mit dem Abbrand verhalten. Dafür wurden diese Brennelemente nach jeweils einem Abbrandzyklus auf Positionen von UO₂-BE mit gleichen Standzeiten gesetzt, z. B. nach einem Zyklus wurde das Brennelement von B-8 auf F-8 umgesetzt.

Abbildung 6.4:

Verteilung der Brennelemente in einem Viertel des RefC-Kerns. Die Position H-8 gibt die Kernmitte an. Die Nummern geben die Standzeit der Brennelemente in Zyklen an. Die Anreicherung entspricht a: 3.8%w ²³⁵U; b: 3.5%w ²³⁵U; c: 3.4%w ²³⁵U

	8	9	10	11	12	13	14	15
H	4c	2c	2c	2c	1b	3c	1a	3c
G	2c	2c	2c	2c	2c	3c	1a	1b
F	2c	2c	2c	2c	3c	3c	1b	3c
E	2c	2c	2c	3c	1b	1c	3c	
D	1b	2c	3c	1b	2c	1c	4b	
C	3c	3c	3c	1c	1c	4b		
B	1a	1a	1b	3c	4b			
A	3c	1b	3c					

6.2.1 Bereitstellung der Gruppenkonstanten

Die in Kapitel 5.2.1 berechneten Gruppenkonstanten für die dreidimensionalen Kernsimulationen wurden für eine unendliche Anordnung von Brennelementen erstellt. Des Weiteren wurde für jeden Brennstab das gleiche Material verwendet. Dies war möglich, da die untersuchten Kerne homogene Beladungen hatten. In den hier betrachteten heterogenen Kernbeladungen ist dies nicht mehr der Fall. Die Brennstäbe am Rand der IMF-BE sehen das Spektrum der UO₂-BE während die Brennstäbe im Inneren der IMF-BE quasi das ungestörte IMF-Spektrum sehen. Aus diesem Grund wurde für die Erstellung der Gruppenkonstanten des optimierten IMF-BE das IMF-BE in einer Umgebung von UO₂-BE betrachtet. Wie in Kapitel 3.2 beschrieben, ist es in BOXER möglich, verschiedene Zelltypen zu definieren. Als Haupttyp wurden die UO₂-Zellen der Uran-BE verwendet. Die in Abbildung 6.2 dargestellten Randzellen mit verminderter Pu-Dichte wurden als Sekundärtyp definiert. Das bedeutet, daß die in diese Zellen eintretenden Ströme gleich den aus dem Haupttyp austretenden Strömen sind, womit die neutronenphysikalische Kopplung zwischen den UO₂- und den IMF-Zellen gegeben ist. Die inneren Zellen im IMF-BE, in Abbildung 6.2 sind dies die Zellen mit 0.95 g/cm³ Plutonium, wurden als unendliche ungestörte Anordnung berechnet. Die Berechnung der verschiedenen Zustände der freien Variablen sowie deren Auswahl erfolgte analog zu der in Kapitel 5.2.1 angewendeten Methode.

6.2.2 Teilbeladungen mit IMF-Brennelementen

Die größten Leistungsspitzen traten im RefC-Kern in den frischen Brennelementen mit einer Anreicherung von 3.8w% ²³⁵U auf. Die nodalen Werte der radialen Leistungsfaktoren dieser Brennelemente sind in Abbildung 6.5 auf den Positionen B-8 und H-14 zu finden. Diese zwei sowie die zwei hierzu symmetrischen Brennelemente wurden durch optimierte IMF-BE ersetzt. Deutlich zu erkennen ist die wesentlich geringere relative Leistung in den hier eingesetzten IMF-BE als in den UO₂-BE. Dieser Effekt ist erklärbar durch den großen Anteil an BP in diesen Brennelementen und der damit verbundenen geringeren Reaktivität dieser Brennelemente. Die größten Leistungsspitzen verschieben sich in die Brennelemente D-11 und E-12, bzw. in die entsprechenden Brennelemente der anderen Quadranten des heterogenen Kerns. Die maximale Stableistung in den optimierten IMF-BE liegt bei maximal 325 W/cm, womit sich dieser Wert weit unterhalb der maximalen Stabwerte von rund 485 W/cm im RefC-Kern befindet, wie aus Tabelle 5.8 hervorgeht.

Abbildung 6.5: Radiale Leistungsverteilung im vierten Quadranten des RefC-Kerns zum BOC (obere Angabe) und im RefC-Kern mit optimierten IMF-BE (mittlere Angabe) sowie der Differenz pro Brennelement in % (untere Angaben). Die Position H-8 gibt die Mitte des Kernes an, während B-8 und H-14 die Lage zweier der vier IMF-BE angibt.

	8	9	10	11	12	13	14	15
H	0.79	1.18	1.24	1.21	1.43	0.91	1.50	0.65
	0.87	1.30	1.34	1.28	1.41	0.75	0.95	0.44
	-10.65	-9.88	-8.41	-5.69	1.12	17.38	36.77	31.84
G	1.18	1.20	1.25	1.16	1.05	0.88	1.47	0.90
	1.30	1.32	1.35	1.24	1.06	0.80	1.16	0.70
	-9.96	-10.53	-8.59	-6.98	-1.05	9.85	20.98	22.09
F	1.24	1.25	1.10	1.00	0.82	0.83	1.10	0.41
	1.34	1.35	1.19	1.07	0.85	0.81	1.01	0.35
	-8.48	-8.59	-8.20	-6.93	-3.65	1.81	7.92	13.27
E	1.21	1.16	0.99	0.87	1.44	1.30	0.53	
	1.28	1.24	1.06	0.93	1.50	1.36	0.53	
	-5.69	-7.18	-7.16	-7.62	-4.31	-4.30	-0.38	
D	1.43	1.05	0.81	1.44	1.16	1.09	0.33	
	1.41	1.06	0.85	1.50	1.24	1.16	0.33	
	1.19	-1.14	-4.79	-4.38	-6.80	-5.96	-1.22	
C	0.91	0.88	0.83	1.30	1.09	0.41		
	0.75	0.79	0.81	1.36	1.16	0.43		
	17.52	9.99	1.93	-4.22	-5.96	-2.90		
B	1.50	1.48	1.11	0.53	0.33			
	0.95	1.16	1.01	0.53	0.33			
	36.90	21.22	8.84	0.19	-0.91			
A	0.64	0.90	0.41					
	0.44	0.70	0.35					
	31.88	22.33	14.07					

RefC
 IMF
 Diff. [%]

Mit dem Abbrand nimmt die Leistung im IMF-BE zu, da die BP abgebaut werden. Wie aus der BE-Optimierung hervorgeht, ist das Ende der ersten, bzw. der Anfang der zweiten Standzeit der eigentlich kritische Abbrandzeitpunkt bezüglich der maximalen Leistung in den optimierten IMF-BE. In Abbildung 6.6 werden die berechneten Leistungsverteilungen zum EOC des RefC-Kerns und der heterogenen Kernanordnung miteinander verglichen.

Abbildung 6.6: Radiale Leistungsverteilung im vierten Quadranten des RefC-Kerns zum EOC (obere Angabe) und im RefC-Kern mit optimierten IMF-BE (mittlere Angabe) sowie der Differenz pro Brennelement in % (untere Angaben). Die Position H-8 gibt die Mitte des Kerns an, während B-8 und H-14 die Lage zweier der vier IMF-BE angibt.

	8	9	10	11	12	13	14	15
H	0.82	1.11	1.13	1.13	1.31	0.93	1.36	0.71
	0.81	1.08	1.11	1.11	1.30	0.88	1.25	0.66
	2.19	2.34	2.11	1.68	1.07	5.47	8.45	6.61
G	1.11	1.12	1.16	1.13	1.06	0.94	1.34	0.95
	1.08	1.09	1.13	1.11	1.05	0.92	1.29	0.95
	2.43	2.50	2.16	1.78	1.23	1.71	3.79	0.63
F	1.14	1.16	1.08	1.02	0.89	0.90	1.13	0.52
	1.11	1.13	1.05	1.01	0.88	0.89	1.13	0.53
	2.11	2.16	2.05	1.66	1.12	0.67	-0.09	-0.95
E	1.13	1.12	1.02	0.92	1.33	1.24	0.65	
	1.11	1.10	1.01	0.90	1.31	1.23	0.65	
	1.68	1.87	1.76	1.64	1.43	1.13	0.00	
D	1.31	1.06	0.89	1.33	1.10	1.09	0.44	
	1.30	1.05	0.88	1.31	1.09	1.08	0.43	
	1.07	1.23	1.35	1.51	1.54	1.01	2.70	
C	0.93	0.93	0.90	1.24	1.09	0.53		
	0.88	0.92	0.89	1.23	1.08	0.51		
	5.36	1.61	0.56	1.05	0.92	3.22		
B	1.36	1.34	1.12	0.65	0.44			
	1.24	1.29	1.13	0.65	0.43			
	8.60	3.59	-0.62	-0.31	2.72			
A	0.71	0.95	0.52					
	0.66	0.94	0.52					
	6.79	0.42	-1.36					

RefC
IMF
Diff. [%]

Auch am EOC liegen die nodalen Leistungen in den IMF-BE unter denen der entsprechenden UO₂-BE. Die maximale Stableistung in dem IMF-BE betrug rund 390 W/cm und liegt damit im Bereich der durch die Materialdaten gegebenen Grenzen. Bei einer Stableistung von 400 W/cm und einer angenommenen Wärmeleitfähigkeit von 2 W/(m·K) würden sich unter Verwendung eines Vollpellets Zentraltemperaturen von rund 1900°C

und in einem Hohlpellet von ca. 1300°C einstellen. Im Vergleich dazu, würden sich mit UO_2 -Vollpellets Zentraltemperaturen von rund 1500°C ergeben [78].

Die IMF-BE mit einer Standzeit von einem Zyklus, entsprechend einem Abbrand von rund 325 VLT, wurden anschließend auf Positionen von UO_2 -BE mit einem Abbrand von einem Zyklus gesetzt. Dabei wurde darauf geachtet, daß die Kernsymmetrie erhalten blieb. Dieser Vorgang wurde nach jedem Abbrandzyklus wiederholt. Das IMF-BE von Position B-8 wurde so auf den Positionen F-8 nach einem Zyklus Abbrand, C-8 mit zwei und C-13 mit drei Zyklen Abbrand eingesetzt. Entsprechend wurde das IMF-BE von Position H-14 auf H-10, H-13 und C-13 umgesetzt. Wie aus Abbildung 6.4 zu ersehen ist, entsprechen diese Positionen UO_2 -BE mit gleichen Einsatzzeiten. Alle anderen BE-Positionen und Abbranddaten blieben jeweils identisch mit denen aus dem RefC-Kern. In allen Abbrandzyklen der optimierten IMF-BE im RefC-Kern traten keine höheren Stableistungen in den vier IMF-BE auf als zum EOC des ersten Abbrandzyklus. Nur zum BOC des zweiten Zyklus waren die Stableistungen in den Eckstäben des IMF-BE etwa gleich denen am EOC des ersten Zyklus.

Um den weiteren Weg in Richtung IMF-Vollkern aufzuzeigen, wurde auch ein Kern mit 12 frischen IMF-BE betrachtet. Zusätzlich zu den vier IMF-BE wurden hier noch acht weitere IMF-BE auf den Positionen D-11 und E-12 sowie den entsprechenden Standorten der anderen drei Quadranten eingesetzt. Der erste Zyklus dieses Mischkerns weist ein ähnliches Verhalten auf, wie der RefC-Kern. Damit erscheint es möglich, IMF-BE als Teilbeladungen in einem UO_2 -Kern einzusetzen.

Um über Teilbeladungen mit IMF-BE zu einem IMF-Vollkern zu gelangen, bedarf es noch einer Reihe von Optimierungen. Allerdings würde schon der Einsatz von 1/8 IMF-BE ausreichen, um im Kern ein Plutoniumgleichgewicht zu erlangen. Mit Teilbeladungen von 20 bis 25% uranfremen Brennstoffs in einem UO_2 -Kern ist eine Pu-Reduktion von rund 20% zu erreichen. Wie aus Tabelle 5.6 hervorgeht, müßte die 2.5-fache Zahl von MOX-BE eingesetzt werden, um einen vergleichbaren Effekt zu erzielen. Somit könnten auch Teilbeladungen mit IMF-BE schon zu einer effizienteren Plutoniumregulierung beitragen als dies heute mit MOX-Brennstoff möglich ist.

7 Programmvalidierung

Die Ergebnisse aus den Kapiteln 4 bis 6 zeigen auf, daß sich das reaktorphysikalische Verhalten uranfreier LWR-Brennstoffe von dem herkömmlicher Brennstoffe, wie UO_2 und MOX z. T. wesentlich unterscheidet. Die bis dato durchgeführte Validierung des Programmsystems ELCOS basierte aber überwiegend auf H_2O -moderierten Systemen mit UO_2 -Brennstoff [106]. Um die Genauigkeit der verwendeten Rechenmethoden und Querschnittsdaten abschätzen zu können, wurden während dieser Arbeit weitere Teilvalidierungen, insbesondere des Zellprogramms von BOXER, durchgeführt. Grundlage der Validierung waren dabei zwei Meßreihen kritischer Experimente sowie ein numerischer Benchmark. Als Versuche standen die Resultate der FDWR-PROTEUS-Phase-II-Experimente [60, 64, 107, 108] und die durch diese Arbeit initiierten Reaktivitätsmessungen von Absorberstäben an der kritischen Anlage CROCUS der Eidg. Technischen Hochschule Lausanne (EPFL) zur Verfügung. Als Folge des in Kapitel 2.2 aufgezeigten internationalen Interesses an Konzepten, die einen verstärkten Einsatz von Plutonium in LWR ermöglichen, wurde ein Benchmark über uranfreie Pu-Brennstoffe in die Wege geleitet, an dessen Gestaltung und Durchführung auch das PSI im Rahmen des Projekts „Fortgeschrittene Brennstoffzyklen“ teilnimmt. Zum einen bildet dieser Benchmark die Grundlage zur numerischen Validation des Programms BOXER, zur Untersuchung von Aspekten die nicht durch die Experimente abgedeckt sind, wie z. B. die Abbrandrechnung. Andererseits stellt der Benchmark die Basis für Studien zum Einfluß der Grunddaten auf die rechnerischen Ergebnisse dar.

Die Validierung des Programms SILWER besteht einerseits aus den in Kapitel 5.3 beschriebenen dreidimensionalen Nachrechnungen des Referenzkernes und andererseits aus Studien wie [109].

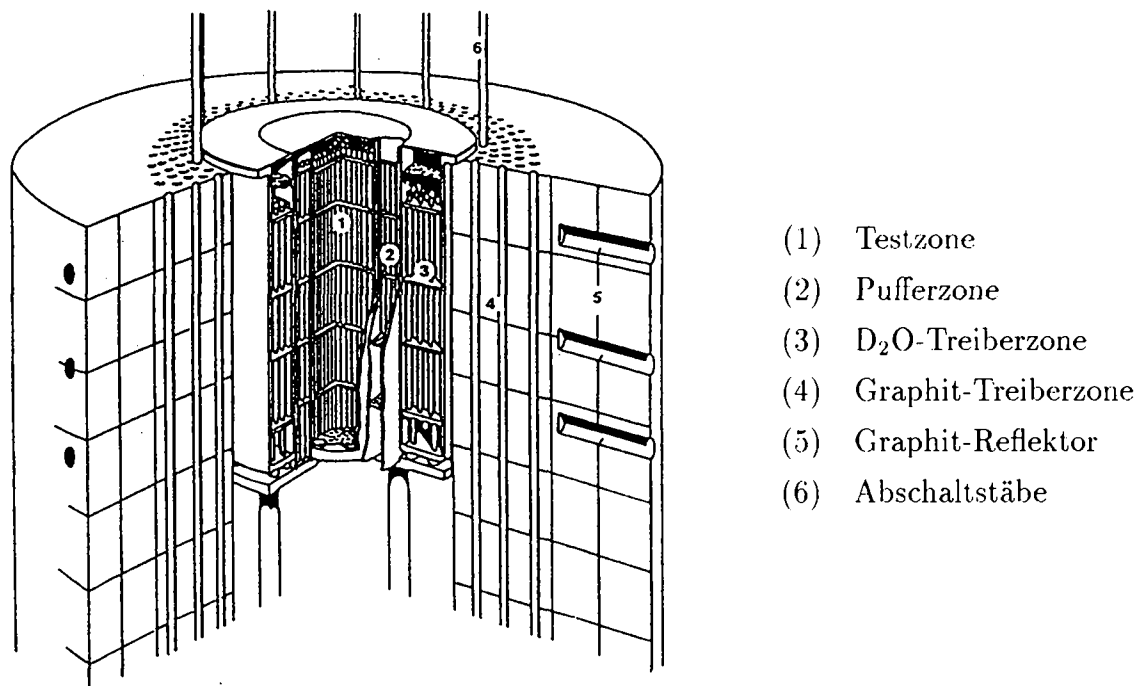
7.1 BOXER-Validierung für Plutoniumsysteme

In den PROTEUS-FDWR Phase II-Experimenten wurde ein MOX-Brennstoff mit einer Anreicherung von 7.5 w% Pu_{fiss} eingesetzt. Neben den Kernen 7 bis 17 mit Volumenverhältnissen von Moderator zu Brennstoff (V_m/V_b) von 0.0 bis 0.95, wurde mit Kern 18 auch ein thermisches MOX-Spektrum mit einem Volumenverhältnis von 2.07 betrachtet [110].

7.1.1 Aufbau der PROTEUS-FDWR Experimente

Der Aufbau des PROTEUS-Reaktors für die FDWR-Phase-II Experimente ist in Abbildung 7.1 wiedergegeben.

Abbildung 7.1: Aufbau des PROTEUS-Reaktors für FDWR-Phase-II Experimente



- (1) Testzone
- (2) Pufferzone
- (3) D₂O-Treiberzone
- (4) Graphit-Treiberzone
- (5) Graphit-Reflektor
- (6) Abschaltstäbe

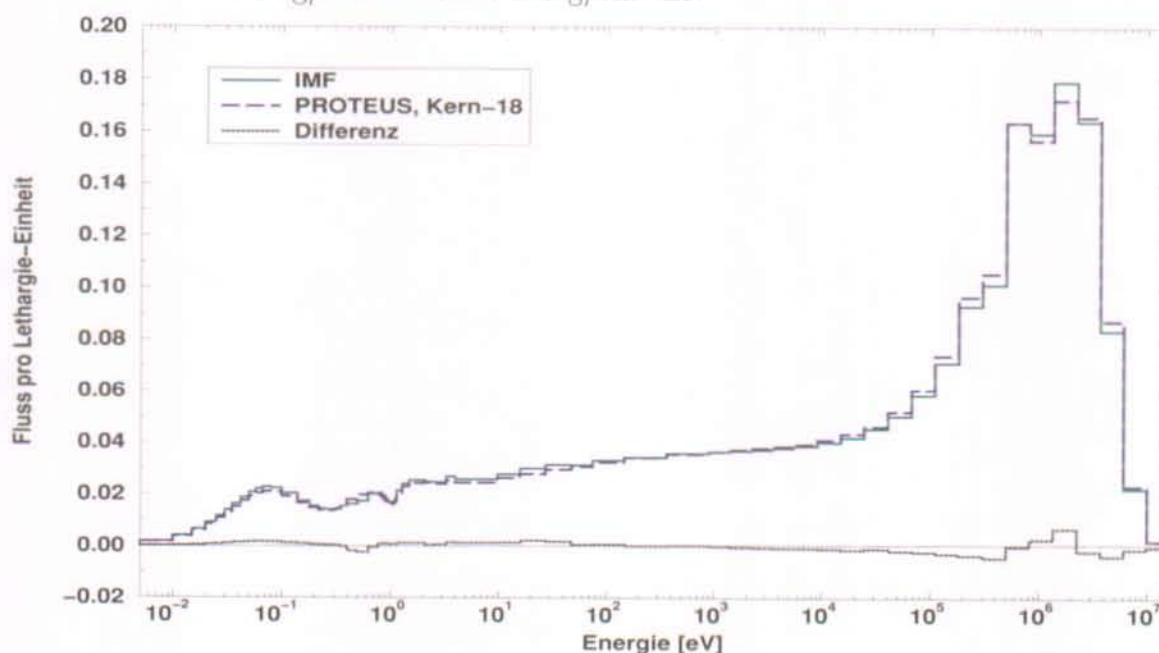
Die Testzone (1) im PROTEUS-Reaktor war mit 0.5 m Durchmesser und 0.84 m aktiver Höhe zu klein, um einen kritischen Reaktorzustand aufrecht zu erhalten. Deswegen ist sie von zwei Treiberzonen (3), (4) umgeben, durch die der Reaktor erst kritisch wird. Die beiden Treiberzonen bestehen aus 5 w% angereichertem UO₂ mit D₂O bzw. Graphit als Moderator. Damit in der Testzone ein möglichst ungestörtes epithermisches MOX-Spektrum vorherrscht, wurde die Testzone durch eine trockene Pufferzone (2) mit Natururanstäben von den beiden Treiberzonen spektral entkoppelt. Durch das Natururan werden die thermischen Neutronen aus den Treiberzonen absorbiert und nur wenig moderierte Spaltneutronen abgegeben.

Damit ergibt sich im Zentrum der Testzone ein nahezu ungestörtes Spektrum, das damit ungefähr dem eines einzonigen kritischen Reaktors im Grundmode entspricht. Dieser kann mit Zellcodes in sogenannten Grundmode-Berechnungen simuliert werden. Bei dieser Berechnungsmethode wird das geometrische Buckling so lange variiert, bis der effektive Multiplikationsfaktor gleich Eins ist.

7.1.2 Übertragbarkeit der PROTEUS-Messungen auf IMF-Systeme

Mit einem $V_m/V_b = 2.07$ entspricht das Moderationsverhältnis im PROTEUS-Kern 18 von herkömmlicher LWR. Das mit dem Zellprogramm von BOXER berechnete Spektrum von Kern 18 wird in Abbildung 7.2 mit dem ebenfalls mit BOXER berechneten Spektrum einer IMF-Zelle verglichen. Beide Berechnungen wurden im Grundmode, d. h. mit kritischem Buckling, sowie ohne Abbrand und im kalten Zustand¹¹ durchgeführt.

Abbildung 7.2: Vergleich berechneter Spektren von PROTEUS-Kern 18, MOX mit $0.94 \text{ g/cm}^3 \text{ Pu}$ und der verwendeten uranfreien IMF-Zelle mit $0.9 \text{ g/cm}^3 \text{ Pu}$ sowie $0.3 \text{ g/cm}^3 \text{ Er}$.



Es ist zu sehen, daß beide Spektren gut übereinstimmen. Die Differenzen im hohen Energiebereich sind auf die inelastische Streuung durch das ^{238}U im MOX zurückzuführen. Die Unterschiede im thermischen Energiebereich sind durch das Erbium im IMF und durch die unterschiedlich hohen Anteile an spaltbarem Plutonium - $0.6 \text{ g/cm}^3 \text{ Pu}_{fiss}$ in der IMF-Zelle und $0.68 \text{ g/cm}^3 \text{ Pu}_{fiss}$ im Fall von Kern 18 - erklärbar.

Abbildung 7.3 zeigt die energetische Verteilung der totalen Spaltraten für die beiden Brennstoffe. Für die Gesamtabsorption ergibt sich ein ähnliches Bild. Allerdings macht sich hier die Resonanz von ^{167}Er bei 0.45 eV mit umgekehrtem Vorzeichen bemerkbar, wie in Abbildung 7.4 zu sehen ist.

¹¹Die Brennstofftemperatur betrug 45°C und die Hüllrohr- und Moderatortemperatur lag bei 40°C

Abbildung 7.3: Energetische Verteilung der auf eins normierten totalen Spaltraten im MOX Kern 18 mit $0.94 \text{ g/cm}^3 \text{ Pu}$, verglichen mit der Verteilung in der uranfreen IMF-Zelle mit $0.9 \text{ g/cm}^3 \text{ Pu}$ sowie $0.3 \text{ g/cm}^3 \text{ Er}$.

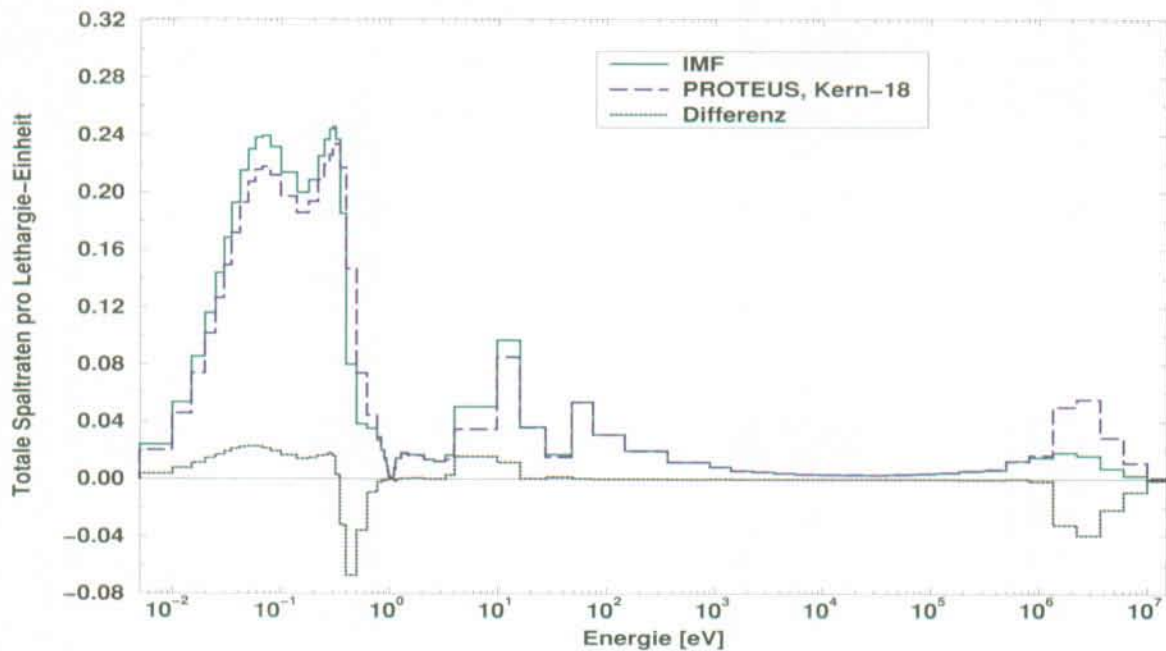
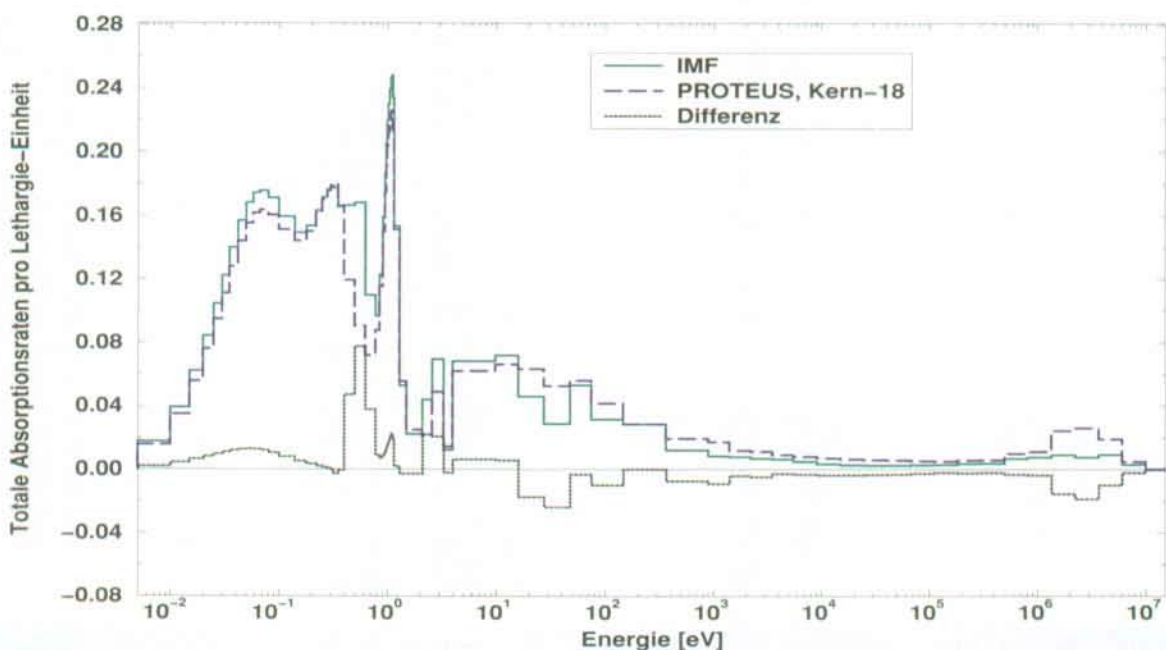


Abbildung 7.4: Energetische Verteilung der auf eins normierten Gesamtabsorption im MOX Kern 18 mit $0.94 \text{ g/cm}^3 \text{ Pu}$, verglichen mit der Verteilung in der uranfreen IMF-Zelle mit $0.9 \text{ g/cm}^3 \text{ Pu}$ sowie $0.3 \text{ g/cm}^3 \text{ Er}$.

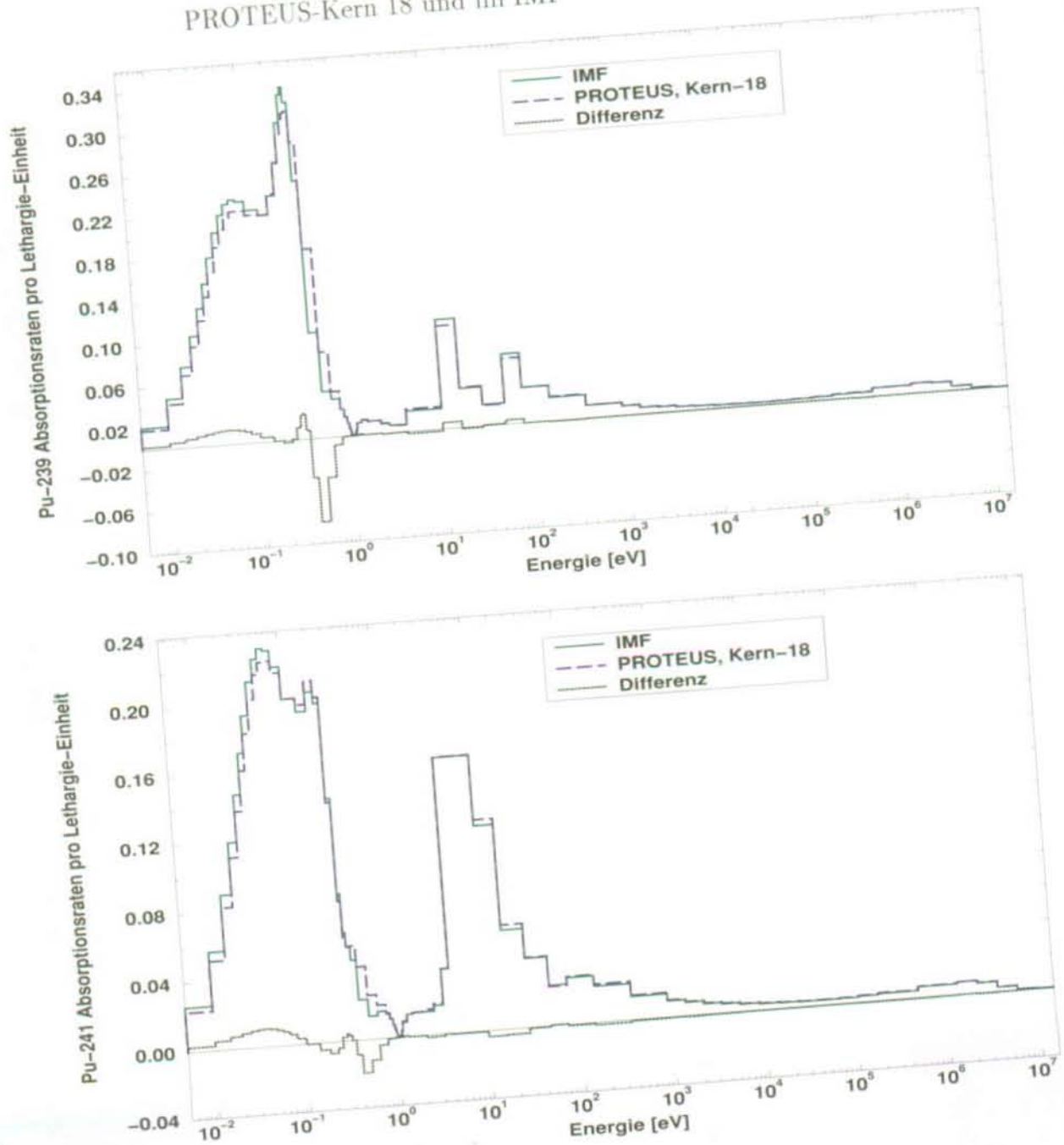


Der größte Teil der Spaltungen kommt in beiden Zellen aus ^{239}Pu und ^{241}Pu . Die Diskrepanz im oberen Energiegebiet erklärt sich durch die Spaltung in ^{238}U . Die Unterschiede

Programmvalidierung

in der Absorption zwischen 15 und 50 eV resultieren aus den Einfängen in den großen Resonanzen des ^{238}U zwischen diesen Energien. Die Abweichungen zwischen 0.3 und 0.7 eV sind auf die große Resonanz des ^{167}Er bei 0.45 eV zurückzuführen. Die anderen Abweichungen sind bedingt durch den Einfluß der unterschiedlichen Pu-Vektoren und durch Normierungseffekte. Eine ähnliche Situation ergibt sich für die Absorptionsraten von ^{239}Pu und ^{241}Pu , wie in Abbildung 7.5 dargestellt.

Abbildung 7.5: Energetische Verteilung der auf eins normierten Absorptionsraten von ^{239}Pu (obere Darstellung) und ^{241}Pu (untere Darstellung) in PROTEUS-Kern 18 und im IMF



Für beide Plutoniumisotope zeigt sich eine gute Übereinstimmung in den betrachteten Brennstoffen. Die Differenzen in den Absorptionen von ^{239}Pu und ^{241}Pu sind einzig mit der Anwesenheit des Erbiums in den Zellen mit IMF zu erklären.

Um Normierungsfehler zu vermeiden, wurden bei den PROTEUS-Experimenten, wie bei solchen integralen Untersuchungen üblich, nicht die einzelnen Reaktionsraten, sondern deren Verhältnisse zur Hauptspaltrate ^{239}Pu gemessen. Somit sind für die Übertragbarkeit auch die Reaktionsratenverhältnisse von größerem Interesse, wobei die PROTEUS-Kerne mit einem kleineren Moderationsverhältnis zur Validierung von Rechnungen mit verschiedenen Voidzuständen verwendet werden können [110]. In Tabelle 7.1 werden die mit BOXER berechneten Reaktionsratenverhältnisse der verschiedenen FDWR-PROTEUS-Kerne mit denen aus IMF-Zellen für gleiche Moderationsverhältnisse bzw. Voidzustände verglichen. Der Übersichtlichkeit halber werden für die einzelnen Reaktionsraten folgende Abkürzungen verwendet:

Einfang:	^{238}U	C_8	Spaltung:	^{235}U	F_5
(Capture)	^{239}Pu	C_9	(Fission)	^{238}U	F_8
	^{240}Pu	C_0		^{239}Pu	F_9
	^{242}Pu	C_2		^{241}Pu	F_1

Tabelle 7.1: Quotient aus IMF/PROTEUS von mikroskopischen Reaktionsratenverhältnissen aus BOXER-Rechnungen für verschiedene Voidzustände, entsprechend den Moderationsverhältnissen in den FDWR-PROTEUS-Kernen 7, 8, 13 und 18

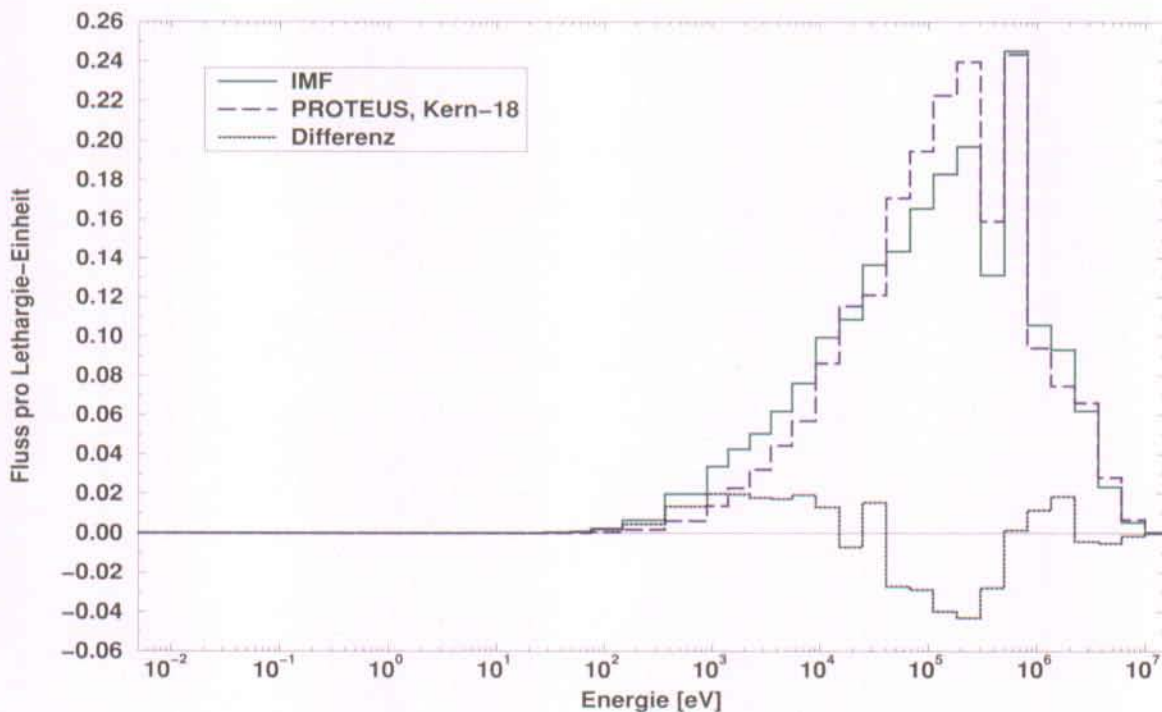
Kern [V_m/V_b] Void [%]	8	7	13	18
$^1\text{C}_9/\text{F}_9$	1.294	1.012	1.001	0.994
$^1\text{C}_0/\text{F}_9$	1.247	1.073	1.031	1.036
C_2/F_9	1.205	0.735	0.717	0.774
F_1/F_9	1.060	1.040	1.031	1.013

¹⁾ Nicht meßbares Reaktionsratenverhältnis

Trotz der verschiedenen Brennstoffzusammensetzungen von IMF und MOX stimmen die berechneten Reaktionsratenverhältnisse zum großen Teil gut überein. Die größeren Unterschiede in dem Reaktionsratenverhältnis C_2/F_9 lassen sich durch die verschiedenen Pu-Zusammensetzungen erklären. So ist der ^{242}Pu -Anteil im IMF mehr als doppelt so groß wie im MOX der FDWR-Kerne. Hierdurch ist die Selbstabschirmung in ^{242}Pu größer und C_2 in den IMF-Zellen entsprechend kleiner.

Die Differenzen von C_9/F_9 , C_0/F_9 und C_2/F_9 im 100 % Void-Fall begründen sich mit den in Abbildung 7.6 dargestellten Spektrumsunterschieden in der IMF-Zelle und dem Kern 8. Ursache für diese Unterschiede ist die Anwesenheit des ZrO_2 anstelle des UO_2 im IMF. Da Zirkonium rund 2.6 mal leichter ist als Uran, kommt es somit für 100 % Void durch die elastische Streuung am Zirkonium zu einem weicherem Spektrum in der IMF-Zelle als im Kern 8. Die Differenzen in den Reaktionsratenverhältnissen sind also erklärbar. Als Schlußfolgerung können die PROTEUS-Messungen als Bestätigung des verwendeten Programms zur Berechnung der Pu-Reaktionsraten im IMF bei verschiedenen Voidzuständen verwendet werden.

Abbildung 7.6: Vergleich berechneter Spektren von PROTEUS-Kern 8, MOX mit 0.94 g/cm^3 Pu, und der verwendeten uranfreien IMF-Zelle mit 0.9 g/cm^3 Pu sowie 0.3 g/cm^3 Er bei 100 % Void.



7.1.3 Korrekturen für die PROTEUS-Nachrechnungen

Aus verschiedenen Gründen ist es nicht ohne weiteres möglich, experimentell ermittelte Daten direkt mit Rechenergebnissen zu vergleichen. Um dennoch gemessene Reaktionsratenverhältnisse auf Zellrechnungen übertragen zu können, sind Korrekturfaktoren notwendig, mit denen die Rechenergebnisse an die realen Messbedingungen angepaßt werden.

7.1.3.1 Single-Zone-Faktoren

Die komplexe Struktur des PROTEUS-Reaktors läßt sich nur durch Ganzreaktorrechnungen genau darstellen. Im Gegensatz zu Zellrechnungen ist es damit möglich, den Einfluß der benachbarten Zonen auf die eigentliche Testzone zu berücksichtigen. Damit dieser Einfluß möglichst gering ist, wurden die FDWR-Experimente gemäß Kapitel 7.1.1 aufgebaut, so daß in der Mitte der Testzone ein nahezu ungestörtes Spektrum vorherrscht. Dies entspricht quasi einem einzonigen kritischen Reaktor im Grundmode. Dieser kann mit einfachen Zellcodes berechnet werden. Die kleinen Einflüsse der äußeren Zonen auf die Reaktionsratenverhältnisse in der Testzone können durch sogenannte Single-Zone-Faktoren (SZF) berücksichtigt werden. Sie ergeben sich aus:

$$SZF = \frac{\text{Reaktionsratenverhältnis im Kernzentrum aus der Ganzreaktorrechnung}}{\text{Reaktionsratenverhältnis der Zellrechnung im Grundmode}} \quad (7.1)$$

Durch Axmann konnte in [64] gezeigt werden, daß der Einfluß aus Querschnittsbibliotheken und Rechenprogrammen auf diese Faktoren gering ist. Aus diesem Grund werden die gemittelten SZF aus [108] in dieser Arbeit verwendet. Tabelle 7.2 faßt die hier eingesetzten Single-Zone-Faktoren zusammen.

Tabelle 7.2: Single-Zone-Faktoren der Reaktionsratenverhältnisse in den verschiedenen FDWR-PROTEUS-Kernen

Reaktionsraten- verhältnis	Single-Zone-Faktoren			
	Kern 8	Kern 7	Kern 13	Kern 18
F_5/F_9	0.996	1.000	1.000	1.000
C_8/F_9	0.983	1.000	1.000	1.001
F_8/F_9	0.997	0.995	0.997	1.008
F_1/F_9	0.995	1.000	1.000	n. ber.
C_2/F_9	1.000	1.001	1.000	n. ber.

Es ist gut zu erkennen, daß der größte Einfluß durch die Randzonen im trockenen Kern 8 auftritt. In allen anderen Kernen ist die Wirkung der Neutronen aus den Puffer- und Treiberzonen auf die Reaktionsratenverhältnisse relativ gering.

7.1.3.2 Heterogenitätseffekte in Kern 18

Um ein in LWR übliches Moderationsverhältnis von ungefähr zwei zu erhalten, wurde aus dem Gitter in Kern 13 jeder zweite Brennstab entfernt. Diese Heterogenität ist mit dem Zellprogramm von BOXER nicht exakt zu erfassen. Aus diesem Grund wurden innerhalb dieser Arbeit die in [112] berechneten Korrekturfaktoren für Kern 18 verwendet. Hiermit lassen sich die Ergebnisse aus den BOXER-Zellrechnungen auf die reale Geometrie umrechnen. Tabelle 7.3 gibt diese Faktoren als Quotienten der integralen Größen aus einer Rechnung mit realem Brennstabgitter zu Ergebnissen einer Zellrechnung mit homogenisiertem Gitter wieder.

Tabelle 7.3:

Aus [112] übernommene Korrekturfaktoren für die in Kern 18 auftretende Heterogenitätseffekte

Integrale Größe	
k_{∞}	1.004
F_5/F_9	1.006
C_8/F_9	0.984
F_8/F_9	1.004
F_1/F_9	1.004
C_2/F_9	0.974

7.1.4 Ergebnisse der PROTEUS-Nachrechnungen

In den meisten FDWR-PROTEUS-Kernen lagen die 1σ -Meßfehler für die k_{∞} Messungen innerhalb von $\pm 0.7\%$. Für Kern 18 ergab sich eine etwas größere Abweichung. Die Meßgenauigkeiten für die Reaktionsratenverhältnisse C_8/F_9 , F_8/F_9 und F_5/F_9 lagen unter $\pm 2\%$ sowie bei ± 3 bis 4% für F_1/F_9 und C_2/F_9 [111].

In Tabelle 7.4 werden die Meßergebnisse mit korrigierten BOXER-Rechnungen in Form von Verhältnissen zwischen Rechnung und Messung verglichen. Mit Abweichungen der BOXER-Resultate von den Meßwerten für k_{∞} der Kerne 7, 8, und 13 von weniger als 1 % können diese Eigenwerte befriedigend wiedergegeben werden. Für Kern 18 wird der Multipliktionsfaktor hingegen überschätzt, obwohl das für dieses MOX-Gitter wichtige meßbare Verhältnis C_8/F_9 überbewertet wird. Dies deutet auf kompensierende Effekte in der Berechnung der nicht direkt meßbaren Reaktionsraten, wie z.B. Einfänge in ^{239}Pu und ^{240}Pu , hin. Die guten Übereinstimmungen der berechneten und gemessenen Werte in Kern 18 von F_8/F_9 und F_5/F_9 lassen hingegen auf eine befriedigende Berechnung von F_9 schließen. Dagegen werden einige auf F_9 bezogene Reaktionsratenverhältnisse in Kern 13 überschätzt.

Innerhalb der Meßungenauigkeiten liegen die berechneten Verhältnisse von F_1/F_9 und C_2/F_9 mit Ausnahme von Kern 8, wo es für C_2/F_9 eine Abweichung zwischen Messung und Rechnung von rund 18 % gibt. Dies liegt an der unzureichenden Validierung der Grunddaten für ^{242}Pu im schnellen Energiebereich, wie in [64, 112] aufgezeigt wurde. Andererseits muß die praktische Bedeutung dieses Ergebnisses relativiert werden, da ^{242}Pu in den trockenen Kernen nur eine untergeordnete Rolle mit einem Anteil $< 0.3\%$ an der Gesamtabsorption spielt.

Tabelle 7.4: Verhältnis von Rechnung/Messung für k_∞ und Reaktionsraten-Verhältnissen aus BOXER-Rechnungen sowie PROTEUS-Messungen für die Kerne 8, 7, 13 und 18

Kern [V_m/V_b]	8 0.0	7 0.48	13 0.95	18 2.07
k_∞	0.998	0.991	1.001	1.022
F_5/F_9	0.986	1.022	1.027	0.986
C_8/F_9	0.953	1.023	1.057	1.051
F_8/F_9	1.019	1.037	1.046	1.001
F_1/F_9	0.985	0.992	1.013	1)
C_2/F_9	1.179	0.993	0.989	1)

1) nicht gemessen

Sehr ähnliche Ergebnisse von Nachrechnungen der PROTEUS-FDWR-Experimente wurden mit den Codes WIMSD4 [113] und KAPER4 [114] in [110] sowie MCNP4A [115], CASMO3 [37, 38] und SPEKTRA [64, 116] in [112] erzielt. Dabei wiesen alle Codes die gleichen Trends in den jeweiligen C/E-Werte für die verschiedenen Kerne auf. So wird z. B. in Kern 18 das k_∞ von allen Programmen um bis zu 3 % überschätzt.

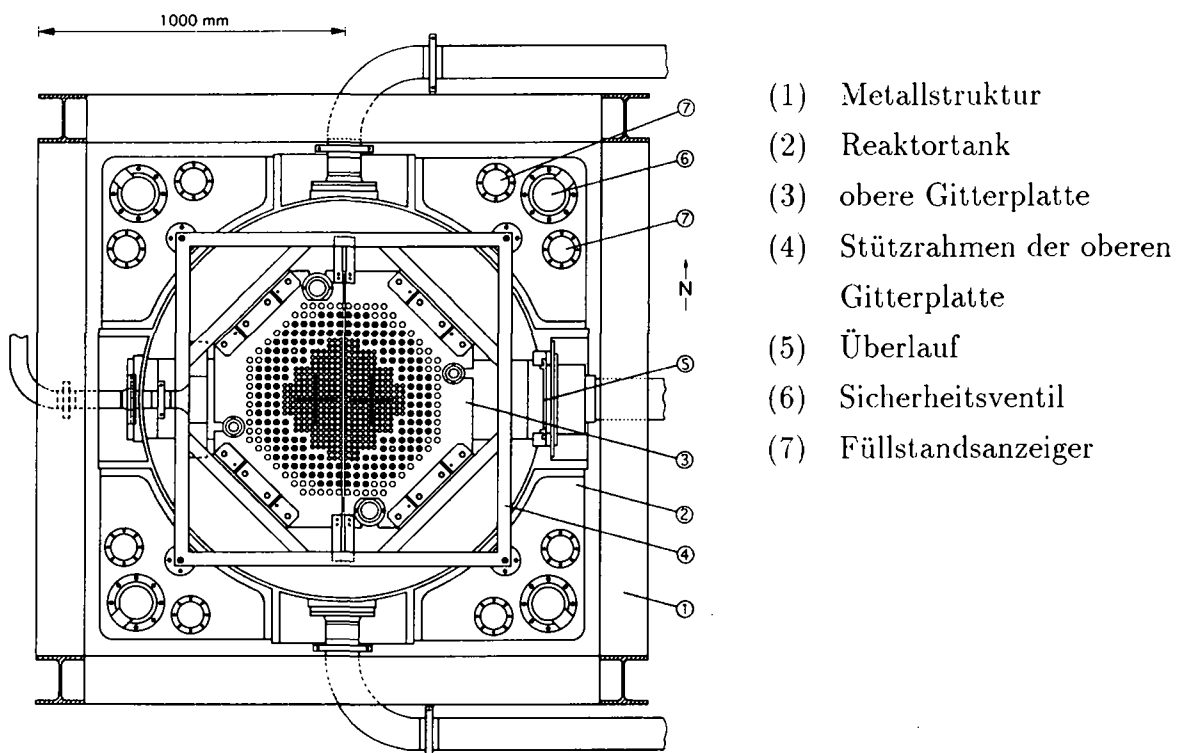
Unter Berücksichtigung der eingangs belegten Annahme, ist die PROTEUS-Kern-18-Konfiguration auch für die hier betrachteten IMF-Gitter repräsentativ, sofern es um von Plutonium bestimmte Eigenschaften, wie das Spektrum im thermischen Bereich sowie einige der wichtigen Reaktionsraten geht. Somit kann auf der Basis der global betrachteten guten Übereinstimmung zwischen den BOXER-Resultaten und den PROTEUS-Meßwerten davon ausgegangen werden, daß die entsprechenden Charakteristika der uranfreien Brennstoffe mit Hilfe der im Rahmen dieser Arbeit angewendeten Methodik gut wiedergegeben werden. Im Hinblick auf Berechnungen der Voidkoeffizienten zeigen die Ergebnisse der Kerne mit kleineren Moderationsverhältnissen, daß auch Untersuchungen von Zellen mit einem hohen Void-Anteil ihre Berechtigung haben.

Selbstverständlich tragen diese Untersuchungen auch zu einer Teilvalidierung der in dieser Arbeit betrachteten 100 %-MOX-Kerne bei. Zudem wird mit BOXER auch am WPPR-Benchmark, der „Working Party on Physics of Plutonium Recycling“, für LWR-MOX teilgenommen [117, 118]. Die hier gefundenen Ergebnisse zeigen ebenfalls eine gute Übereinstimmung mit den Mittelwerten der anderen Teilnehmern und den gegebenen Referenzwerten aus Monte-Carlo Rechnungen.

7.2 Reaktivitäts-Messungen im CROCUS-Reaktor

Im IMF werden abbrennbare Neutronengifte (BP) zur Kompensation der Überschubreaktivität am BOL verwendet. Sowohl die Datenbasis als auch die verwendeten Methoden waren zur Berechnung der zum Teil exotischen Neutronengifte nicht ausreichend qualifiziert. Um Aussagen über die Gültigkeit der hier gefundenen Ergebnisse bezüglich der BP machen zu können, wurden am in Abbildung 7.7 dargestellten Forschungsreaktor CROCUS der EPFL Reaktivitätsmessungen mit unterschiedlichen BP in Absorberstäben durchgeführt [119]. Basis für die Herstellung der zu untersuchenden Materialien waren die bei der Brennstoffauslegung in Kapitel 4 eingesetzten Neutronengifte und die verwendete inerte Matrix.

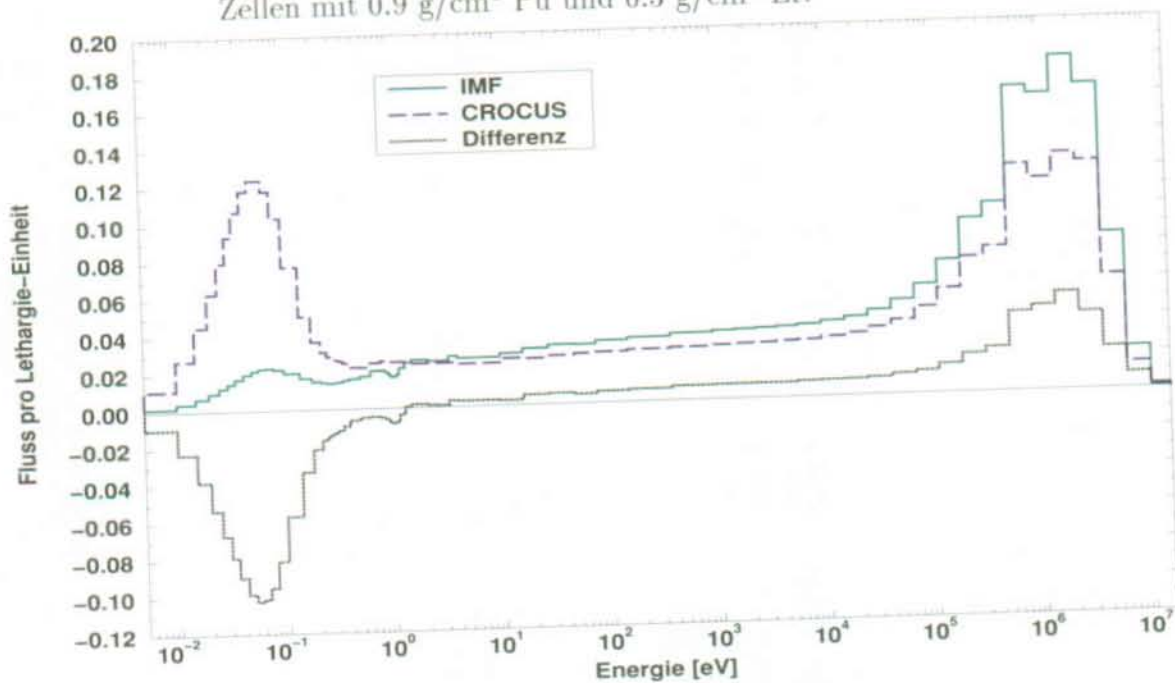
Abbildung 7.7: X-Y-Ansicht der CROCUS-Anlage an der EPFL



7.2.1 Übertragbarkeit der CROCUS-Messungen auf IMF-Systeme

In einem ersten Schritt muß geprüft werden, ob und inwieweit experimentelle CROCUS-Resultate auf die BOXER-Ergebnisse der Berechnung uranfreier Brennstoffe übertragbar sind. In Abbildung 7.8 wird das berechnete Spektrum einer im CROCUS gemessenen Absorberzelle dem Spektrum einer unendlichen Anordnung von IMF-Zellen gegenübergestellt. Die Absorberzelle besteht aus einem Absorberstab mit 0.3 g/cm^3 Er in $\sim 4.6 \text{ g/cm}^3$ ZrO_2 mit Hüllrohr und anteiligem Moderator. Die IMF-Zellen setzen sich aus 0.9 g/cm^3 Pu, 0.3 g/cm^3 Er in 5.0 g/cm^3 ZrO_2 als Brennstoff sowie Hüllrohr und Moderator gemäß Tabelle 4.1 zusammen. Alle Untersuchungen wurden für kalte BOL-Zustände, d. h. bei 20°C durchgeführt.

Abbildung 7.8: Vergleich berechneter Spektren einer Absorberzelle mit 0.3 g/cm^3 Er für den CROCUS-Reaktor mit einer unendlichen Anordnung von IMF-Zellen mit 0.9 g/cm^3 Pu und 0.3 g/cm^3 Er.

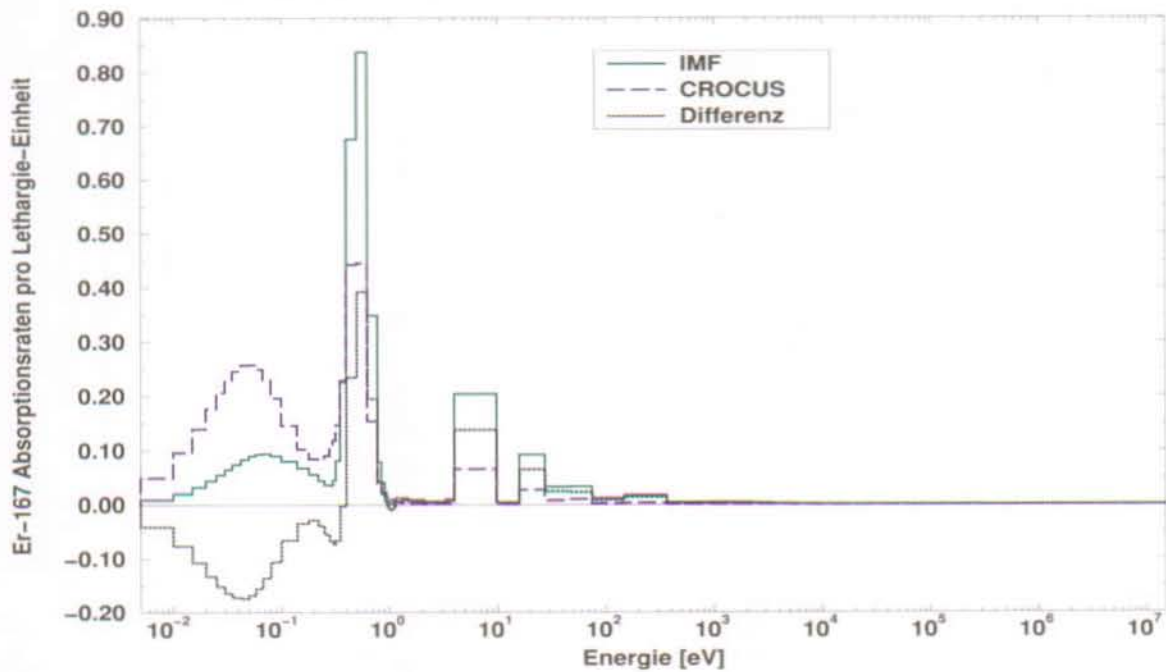


Das Spektrum der Absorberzelle wird von der energetischen Flußverteilung im CROCUS bestimmt und ist somit deutlich thermischer als das der IMF-Zellen. Allerdings sind bei den hier unternommenen Validierungsanstrengungen nicht die Flüsse, sondern hauptsächlich die Absorptionsraten des ^{167}Er von Interesse.

In Abbildung 7.9 werden die energetischen Verteilungen der Absorptionsraten von ^{167}Er aus der IMF-Zelle und aus der CROCUS-Absorberzelle gegenüber gestellt. Obwohl sich in

den Absorptions-Spektren die unterschiedlichen Neutronenflußverteilungen widerspiegeln, sind die verschiedenen spektralen Merkmale der Er-Absorption in den IMF-Zellen auch in dem CROCUS-Absorptionspektrum deutlich zu erkennen. Die relativen Gewichtungen sind jedoch unterschiedlich. So ist z. B. die relative Absorptionsrate unterhalb von 0.2 eV in der CROCUS-Absorberzelle größer als in der IMF-Zelle. Als Folge hiervon und auf Grund der Normierung auf die Gesamtrate, erscheint die Absorption in der Resonanz des ^{167}Er bei 0.5 eV gegenüber der Absorption im thermischen Teil des Spektrums der CROCUS-Absorberzelle kleiner als in den IMF-Zellen. Der relative Effekt der Resonanz bei 0.5 eV ist also im CROCUS kleiner als in den IMF-Zellen.

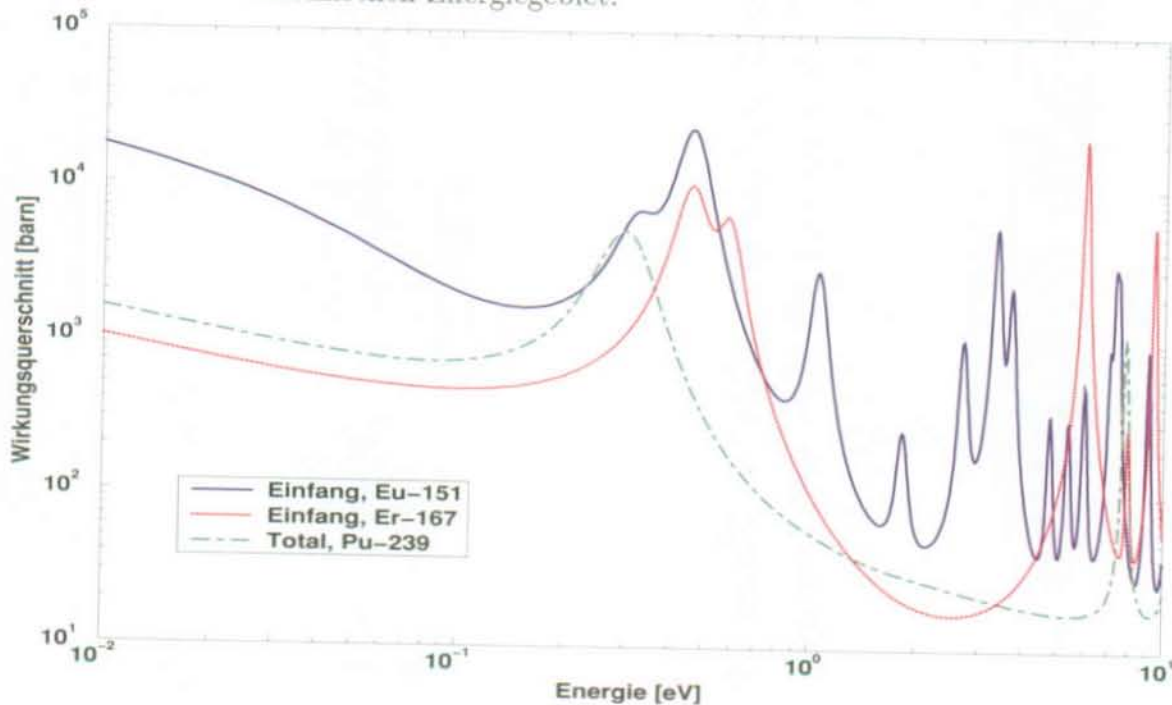
Abbildung 7.9: Vergleich der berechneten, auf eins normierten Absorptions-Spektren von ^{167}Er in einer Absorberzelle mit 0.3 g/cm^3 Er im CROCUS-Reaktor sowie einer unendlichen Anordnung von IMF-Zellen mit 0.9 g/cm^3 Pu und 0.3 g/cm^3 Er.



In der CROCUS-Absorberzelle fallen rund 22% der Gesamtabsorption der Zelle in diese Resonanz und damit ca. ein Drittel der Absorption des ^{167}Er . Es kann somit auf Grund der in Tabelle 7.5 (s. S. 108) dargestellten Ergebnisse davon ausgegangen werden, daß diese Resonanz durch die Gruppenstruktur in BOXER im thermischen Energiegebiet sowie der verwendeten Datenbibliothek ausreichend gut beschrieben wird. Damit darf angenommen werden, daß die Qualität der Resultate in den IMF-Zellen mit ihrer etwas größeren Gewichtung in dieser Resonanz auch hinreichend gut ist.

Die in Abbildung 7.9 angedeutete Differenz der Absorptionsraten zwischen der CROCUS-Absorberzelle und den IMF-Zellen für 0.3 eV ist auf den Einfluß der Resonanz des ^{239}Pu bei dieser Energie zurückzuführen. Um diesen Einfluß des Plutoniums im CROCUS simulieren zu können, wurde ein weiteres Neutronengift gesucht, welches eine ähnliche neutronenphysikalische Wirkung im thermischen Energiegebiet auf das Erbium hat wie das Plutonium. Als ein solches zweites Neutronengift wurde hier Europium verwendet. Zum Vergleich sind in Abbildung 7.10 die wichtigsten Wirkungsquerschnitte von Europium, Erbium und Plutonium wiedergegeben.

Abbildung 7.10: Vergleich punktwiser Querschnitte von ^{167}Er , ^{151}Eu und ^{239}Pu im thermischen Energiegebiet.

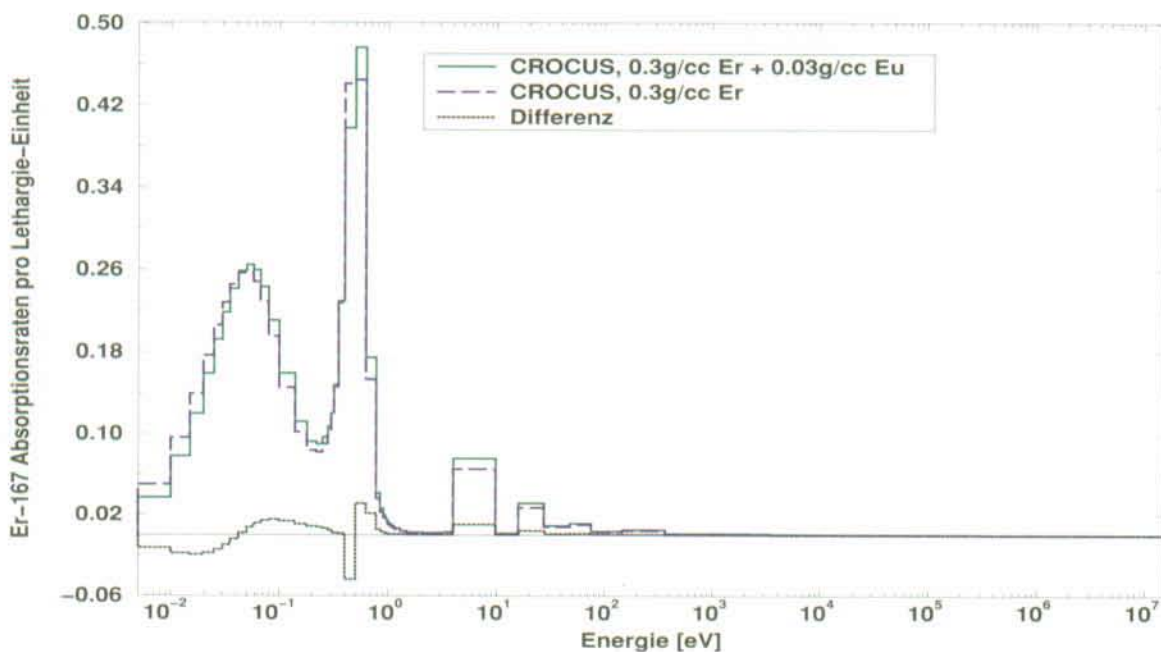


Gut zu erkennen ist die Überlappung der großen Resonanzen bei 0.297 eV für ^{239}Pu , bei 0.460 eV für ^{167}Er und bei 0.461 eV für ^{151}Eu . Dabei ist die Überlappung der Resonanzen zwischen Erbium und Europium sogar größer als zwischen Erbium und Plutonium. Dies läßt vermuten, daß bei einer richtigen Darstellung des Einflusses der Europiumresonanz auf Erbium auch der Einfluß von Plutonium auf Erbium wiedergegeben werden kann.

In Abbildung 7.11 ist für eine gemischte Er-Eu-Absorberzelle der Einfluß des Europiums auf die Absorption im Erbium wiedergegeben. Ähnlich wie in den IMF-Zellen, reduziert sich die Absorption im ^{167}Er unterhalb von 0.04 eV, und das Maximum der Absorption unterhalb 0.1 eV verschiebt sich hin zu höheren Energien. Als Folge des Einflusses der Eu-Resonanz bei 0.461 eV reduziert sich die Absorption im Erbium bei 0.46 eV, ähnlich

wie in den IMF-Zellen. Eine bessere Simulation der Pu-Effekte kann hier auch deshalb nicht erzielt werden, weil die Absorberzellen das Uran-Spektrum des CROCUS, dagegen die IMF-Zellen ihr eigenes ungestörtes Spektrum sehen. Auch eine IMF-Zelle an Stelle der Absorberzellen im CROCUS würde ein zu weiches Absorptionsspektrum aufweisen.

Abbildung 7.11: Vergleich der berechneten Absorptionsspektren von einer ^{167}Er -Zelle sowie einer Zelle mit einer Mischung aus ^{151}Eu und ^{167}Er im CROCUS-Reaktor.



So würde eine erfolgreiche Simulation der CROCUS-Messungen durch BOXER mit Mischungen aus Europium und Erbium sowie von Absorberstäben mit den einzelnen Neutronengiften darauf hindeuten, daß auch Mischungen aus Plutonium und Erbium richtig berechnet werden. Dies stellt natürlich keinen vollständigen Beweis für die richtige Berechnung von IMF im kalten BOL-Zustand dar. Hierfür bedarf es noch weiterer integraler Experimente, z. B. von Messungen mit IMF in einem ungestörten MOX-Spektrum, entsprechend den PROTEUS-FDWR-Experimenten bzw. Untersuchungen in einem ungestörten IMF-Spektrum.

7.2.2 Herstellung von Absorberpellets

Die genaue Kenntnis der in den Experimenten verwendeten Teilchendichten der verschiedenen abbrennbaren Gifte ist für die Nachrechnungen der Versuche von großer Wichtigkeit.

Eine Möglichkeit, die Teilchendichten zu bestimmen, bietet direkt das Herstellungsverfahren. Für die Bereitstellung von Absorberstäben für die CROCUS-Messungen wurden zuerst im Labor für Werkstoffe und Verfahren am PSI Pellets aus repräsentativen Mischungen von Zirkoniumoxid und den gewünschten Neutronengiften hergestellt. Die Pellets wurden anschließend an der EPFL in Hüllrohre aus Aluminium gepackt. Die Herstellung der Pellets unterteilte sich in folgende Einzelschritte:

- Berechnung der Gewichtsprozentage und Abwägen der Einzelkomponenten.
- Mischen der Einzelkomponenten in einer TURBULA Schüttelmaschine [120].
- Pressen der Pellets mit einer Pellet-Pressen Meyer CAUO 10 PMC 30 [121].
- Sintern der Pellets über acht Stunden bei 1200°C und anschließend über 10 Stunden bei 1600°C. Die Aufheizspanne betrug jeweils 5°C/Minute.
- Vermessen und Bestimmung von Dichte und Absorberkonzentration. Die Pellets hatten nach dem Sintern einen Durchmesser von rund 5.9 mm, eine Höhe von ~10 mm und eine Dichte von ca. 4.65 g/cm³.

Die Berechnung der erwünschten Menge des BP als Oxid erfolgte durch nachstehende Gleichung.

$$GP = \frac{\rho_{BP}}{M1} \cdot F \cdot M2 \cdot \frac{1}{\rho_{Pellet}} \cdot 100w\% \quad (7.2)$$

mit

GP : Anteil des Absorberoxids an der Pulvermischung in w%

ρ_{BP} : vorgegebene Absorberdichte im Pellet in g/cm³

$M1$: Molgewicht des Absorberelements in g/Mol

$M2$: Molgewicht des Absorbers als Oxid in g/Mol

ρ_{Pellet} : angenommene Dichte des gesinterten Pellets in g/cm³

F : Faktor, $F = 1$ für Oxide der Form LnO₂ und $F = 0.5$ für Oxide der Form Ln₂O₃

Unsicherheiten bei der Berechnung der Gewichtsanteile GP des Absorberoxids kamen durch die Annahmen über die Dichte des gesinterten Pellets. Aus diesem Grunde wurden für die ersten Pelletserien Vorversuche durchgeführt, so daß für die Herstellung der im CROCUS eingesetzten Pellets schon gemessene Dichten der gesinterten Pellets vorlagen.

Die größte Unsicherheit über die tatsächliche Absorberdichte in den Pellets kommt durch die Bestimmung der Pelletdichte nach dem Sintern. Der statistische Meßfehler aus den Meßreihen zur Dichtebestimmung lag unter 1%. Die Unsicherheit in den angegebenen Gewichtsprozenten der Komponenten in der Pulverherstellung liegt, auf Grund der eingesetzten Analysewaagen mit angegebenen Meßfehlern von $\pm 0.2\text{mg}$, im Bereich weniger Promille.

7.2.3 Ergebnisse der Reaktivitätsmessungen

Zwei verschiedene Arten von Messungen wurden durchgeführt. Mit dem einen Verfahren wurde die Reaktivitätskompensation des im Zentrum der Anordnung eingefahrenen Absorberstabs durch Variation des Wasserniveaus im Kern erzielt. Beim zweiten Verfahren wurde die Reaktivitätskompensation über die Änderung der Stellung von zwei Feinkontrollstäben am Kernrand erreicht. In beiden Fällen wurde die Reaktivitätszufuhr beim Ausziehen des zentralen Absorberstabes durch Messung der stabilen Reaktorperiode ermittelt. Hierfür wurde die Inhour-Gleichung mit auf JEF-1.1 basierten kinetischen Parametern für den CROCUS verwendet.

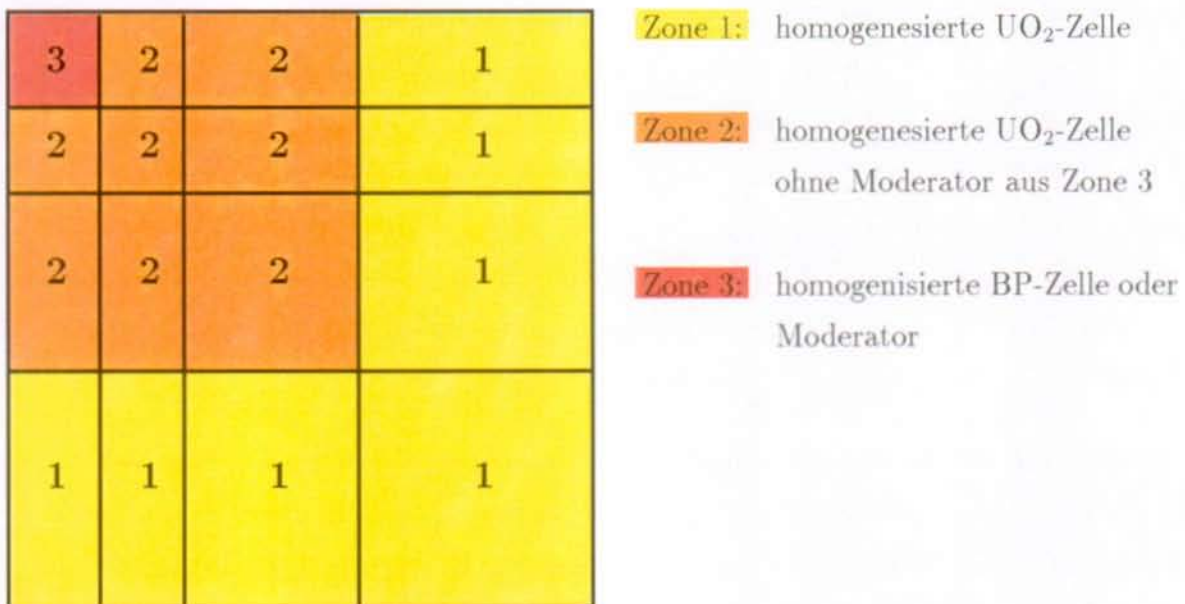
Bei der Auswertung von solchen gemessenen absoluten Reaktivitätswerten der einzelnen Absorberstäbe können systematische Fehler auftreten. So z. B. durch die zweidimensionale CROCUS-Modellierung, bei der die axiale Leckage über eine Bucklingkorrektur erfolgt oder durch Unsicherheiten in den Daten der verwendeten kinetischen Parameter. Um diese Fehler zu vermeiden, wurden alle gemessenen Reaktivitätswerte als Verhältnisse, bezogen auf den Wert eines Referenzstabes, betrachtet. Damit können die BOXER-Nachrechnungen der Experimente als Maß für die Güte der verwendeten Grunddaten verschiedener BP verwendet werden. Als Referenz dient ein Absorberstab, der durch Füllen eines Hüllrohrs mit in Wasser gelöster Borsäure hergestellt wurde. Die Verwendung von Bor als Referenz findet ihre Rechtfertigung in der Tatsache, daß Bor sich nahezu wie ein $1/v$ -Absorber mit sehr gut bekannten Querschnitten verhält.

Eine detaillierte Beschreibung der CROCUS-Anordnung und der verwendeten Meßverfahren für die Reaktivitätswerte der einzelnen Absorberstäbe ist in [119] gegeben.

Die CROCUS-Messungen wurden für eine ganze Reihe von Giften bzw. Stoffen durchgeführt, nämlich Dy, Er, Eu, Hf, Ho, ZrO_2 ohne BP und B. Alle diese BP bzw. Stoffe wurden auch bei der Brennstoffauslegung in Kapitel 4.1 betrachtet. Die gemessenen und berechneten Reaktivitätsverhältnisse stimmten meistens innerhalb der statistischen

Meßfehlergrenzen überein. Die 1σ -Meßfehler lagen dabei typischerweise bei 2 bis 3 %. Hier werden hauptsächlich die Ergebnisse der Analysen für Er, Eu und Mischungen dieser beiden Neutronengifte diskutiert, da, wie in Kapitel 7.2.1 dargestellt, diese Messungen direkt zur Validierung des in dieser Arbeit entwickelten IMF-Konzepts herangezogen werden können. Abbildung 7.12 zeigt schematisch einen Ausschnitt des in BOXER verwendeten Modells für die Berechnung der Absorberstäbe im CROCUS-Reaktor.

Abbildung 7.12: Ausschnitt des für die CROCUS-Nachrechnungen verwendeten zwei-dimensionalen Gitters in BOXER



In Tabelle 7.5 sind die Resultate der CROCUS-Nachrechnungen als Verhältnis von Rechnung zu Messung (C/E) wiedergegeben.

Tabelle 7.5: C/E-Verhältnisse der mit BOXER kalkulierten und im CROCUS gemessenen relativen¹⁾ Reaktivitätswerte der Absorberstäbe mit Er, Eu, und Mischungen aus Er+Eu. Die 1σ -Meßfehler betragen 2 bis 3 %

Er		Eu		Er + Eu	
BP-Dichte [g/cm ³]	C/E	BP-Dichte [g/cm ³]	C/E	BP-Dichten [g/cm ³]	C/E
0.28	1.014	0.0098	1.002	0.301/0.01	0.992
0.49	0.990	0.0198	0.989	0.299/0.02	0.987
0.76	1.008	0.0299	0.985	0.301/0.03	0.993

¹⁾ jeweils relativ zum Referenzabsorberstab mit Bor

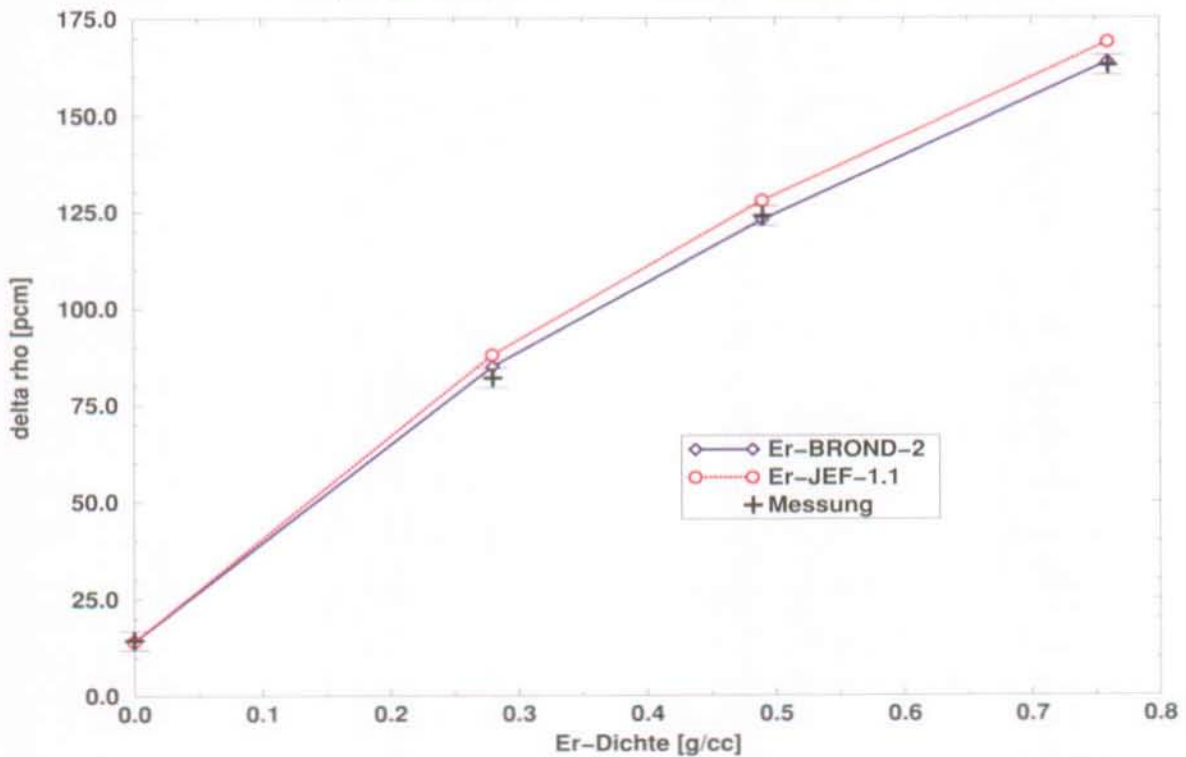
Die C/E-Werte zeigen, daß es mit BOXER und den verwendeten Daten möglich ist, in einem thermischen Spektrum die Reaktivitätswerte der verwendeten Neutronengifte gut zu berechnen. Die qualitativ gute Übereinstimmung in den Meßreihen zeigt, daß die Selbstabschirmungseffekte durch die verwendete Gruppenstruktur im thermischen Energiegebiet zufriedenstellend wiedergegeben werden. Im [119] werden zusätzlich zu den Fehlern der Meßwerte die Ungenauigkeiten der Eingabedaten, wie z. B. Giftdichte, Durchmesser der Absorberpellets, Durchmesser des Hüllrohrs angegeben. Dies hat jedoch auf die in Tabelle 7.5 dargestellten Resultate einen relativ kleinen Einfluß.

Somit kann davon ausgegangen werden, daß bei der Verwendung guter Querschnittsdaten die Wirkung von BP im BOL-Zustand richtig berechnet wird. Auch sind die Abweichungen in den C/E-Werten bei der Berechnung der Mischung aus Erbium und Europium nicht größer als bei der Berechnung der einzelnen Neutronengifte. Dies zeigt, daß es möglich ist, auch Überlappungen von Resonanzen mit der in BOXER verwendeten Gruppenstruktur richtig wiederzugeben. Obwohl dies noch kein endgültiger Beweis dafür ist, daß auch Mischungen aus Erbium und Plutonium richtig berechnet werden, gibt es dennoch Vertrauen in die angewandte Rechenmethode.

In dieser Arbeit wurden die Grunddaten für Erbium aus der BROND-2-Bibliothek verwendet, da in allen anderen Bibliotheken nur die Isotope ^{166}Er und ^{167}Er vorhanden sind. In Abbildung 7.13 sind die Ergebnisse der CROCUS-Berechnungen mit zwei verschiedenen Sätzen von Er-Daten sowie Messungen für die verschiedenen Er-Konzentrationen wiedergegeben. In der mit BROND-2 bezeichneten Rechnung wurden alle Er-Querschnitte der BROND-2-Bibliothek entnommen. Hingegen wurden für die JEF-1.1-Berechnungen ^{166}Er und ^{167}Er durch Querschnitte aus der JEF-1.1-Bibliothek ersetzt. Dies ist zulässig, da ca. 98.5 % der Absorption in Erbium auf diese beiden Isotope zurückzuführen sind.

Mit Differenzen von 3 bis 4 % sind die Abweichungen zwischen den Berechnungen mit unterschiedlichen Grunddaten für Erbium größer als die statistischen Fehler und die Differenz zwischen Messung und Rechnung mit BROND-2 Daten. Auch ist zu erkennen, daß die Übereinstimmung zwischen der Rechnung mit JEF-1.1-Daten und den Messungen wesentlich schlechter als bei der Rechnung mit BROND-2 ist. Somit kann davon ausgegangen werden, daß bei Verwendung von BROND-2-Daten für Erbium die Unsicherheit aus den Querschnittsdaten relativ klein ist. Die hier verwendeten Querschnitte für Erbium aus BROND-2 sollen zudem als Basis der neuen JEFF-3-Bibliothek verwendet werden [122].

Abbildung 7.13: Absolute Reaktivitätswerte von Erbium-Stäben im CROCUS-Reaktor als Funktion der Er-Dichte. Aufgetragen sind Meßwerte sowie Rechenwerte für ^{166}Er und ^{167}Er aus verschiedenen Grund-Daten. Die Fehlerbalken geben die statistische Meßunsicherheit an.



7.3 Inert-Matrix-Brennstoff-Benchmark

Mitte 1994 wurde von der Politechnischen Hochschule in Mailand (POLIMI), dem Japan Atomic Energy Research Institute in Tokai-mura, Japan (JAERI), und dem PSI ein numerischer Benchmark zu IM-Brennstoffen lanciert. Zusätzlich beteiligen sich z. Z. an diesem Benchmark das Commissariat à l'Énergie Atomique, Frankreich (CEA) und das Energieonderzoek Centrum in Petten, Niederlande (ECN) [123].

7.3.1 Benchmark-Beschreibung und Ergebnisse

Zweck dieses Benchmarks ist der Vergleich der verwendeten Methoden zur Berechnung uranfreier Brennstoffe, als Beitrag zur Validierung der bestehenden Methodik zur Analyse von IM-Brennstoff-Konfigurationen. Gegenstand der Untersuchung sind sechs Brennstoffzusammensetzungen, welche in Tabelle 7.6 zusammengefaßt sind.

Tabelle 7.6: Zusammensetzungen der sechs im Benchmark betrachteten Brennstoffe mit Reaktor (RG)- und Waffen-Plutonium (WG)

Brennstoff- Bezeichnung	Pu-Dichte [g/cm ³]	Inerte Matrix IM	Abbrennbarer Absorber BP
RG-1 / WG-1	0.5	Al ₂ O ₃ -ZrO ₂ -MgO	—
RG-2 / WG-2	0.6	Al ₂ O ₃ -ThO ₂ -MgO	—
RG-3	0.7	ZrO ₂	Er ₂ O ₃
RG-4	0.7	ZrO ₂	¹⁰ B

Bis zum jetzigen Zeitpunkt sind nur unendliche quadratische Anordnungen gleicher Zellen mit einem Volumenverhältnis $V_m/V_b = 1.9$ untersucht worden. Die Parameter der betrachteten Zellen sind in Tabelle 7.7 zu finden.

Tabelle 7.7: Geometrie und Zusammensetzung der innerhalb des Benchmarks verwendeten Zellen

Region der Zelle	Material	Durchmesser [mm]	Temperatur [°C]
Brennstoff	IM-Brennstoff	8.2	600
Hüllrohr	Zr	9.5	350
Moderator	H ₂ O	14.765	300

Es wurden die Eigenwerte k_∞ , die Abbrandverläufe, die Reaktionsraten der zehn wichtigsten Actiniden und der BP sowie Void-, Doppler- und Borkoeffizienten verglichen. Die von den Teilnehmern eingesetzten Programme und Daten sind Tabelle 7.8 zu entnehmen.

Tabelle 7.8: Verwendete Programme und Daten-Basis der verschiedenen Benchmarkteilnehmer

Nr.	Teilnehmer	Verwendetes Programm	Bibliothek der Grunddaten
1	CEA	APOLLO-2	JEF-2.2
2	ECN	SCALE	JEF-2.2
3	JAERI	SRAC-95	JENDL-3.2
4	POLIMI	WIMS	UKAEANDL ^{a)}
5	PSI	BOXER	JEF-1.1 ^{b)}

^{a)} Ti_{nat} , Mo_{nat} , ^{154}Gd , ^{156}Gd , ^{158}Gd , ^{237}U , ^{237}Np und ^{238}Pu stammen aus JEF-1 [124, 125]

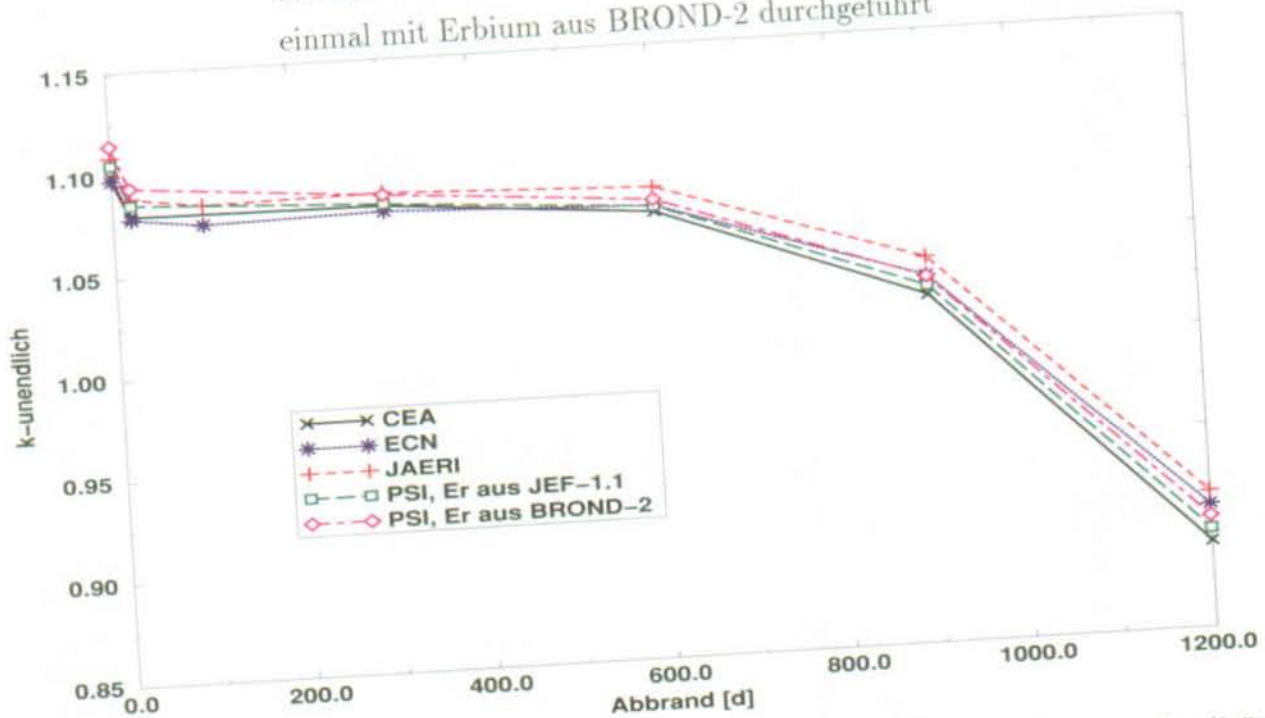
^{b)} Die Querschnitte von Zr basieren auf ENDF/B-IV

Damit eine konsistente auf JEF-1.1 beruhende Datenbasis besteht, wurden in [123] in den BOXER-Rechnungen für den Brennstoff RG-3 Erbiumdaten aus JEF-1.1 verwen-

det. Um eine bessere Vergleichsbasis zu den in dieser Arbeit gefundenen IMF-Ergebnissen zu haben, sind hier für RG-3 auch die Daten für ^{166}Er und ^{167}Er aus BROND-2 verwendet worden.¹²

Abbildung 7.14 zeigt den Verlauf der Eigenwerte über dem Abbrand der verschiedenen Benchmarkteilnehmer am Beispiel von RG-3. Am EOL beträgt die größte Differenz rund 2.7 % zwischen JAERI mit dem größten und dem CEA mit dem kleinsten Eigenwert.

Abbildung 7.14: Eigenwerte der Benchmarkteilnehmer über dem Abbrand für RG-3. Die BOXER-Rechnungen wurden einmal mit Erbium aus JEF-1.1 und einmal mit Erbium aus BROND-2 durchgeführt



Der parallele Verlauf der Abbrandkurven ist befriedigend und spiegelt die gute Qualität des in BOXER verwendeten und in Kapitel 3.2.2 beschriebenen Abbrandverfahrens wieder. Im Gegensatz zu den Rechnungen anderer Benchmarkteilnehmer, bei denen eine große Empfindlichkeit in den Ergebnissen bezüglich der Abbrandschrittweite festgestellt wurde, macht sich die in BOXER gewählte Schrittweite von 50 VLT kaum in den Ergebnissen bemerkbar. Für RG-3 wurden von POLIMI keine Ergebnisse erstellt, da auf der WIMS-Datenbibliothek Erbium nicht vorhanden ist. Für die anderen Benchmarkbrennstoffe gibt POLIMI am BOL die kleinsten Eigenwerte und zudem die größten Dopplerkoeffizienten an. Dies gilt insbesondere für die Brennstoffe mit RGPu. Der Grund hierfür liegt in der verwendeten WIMS-Datenbibliothek. In dieser Bibliothek wird die Resonanzselbstabschirmung der Transurane mit Ausnahme von ^{239}Pu nicht berücksichtigt, wobei die Resonanz bei 1.0 eV von ^{240}Pu auf Grund der Gruppenstruktur richtig dargestellt ist. Die

¹²Im Benchmark werden nur die Er-Isotope ^{166}Er und ^{167}Er berücksichtigt

Abweichungen in den Eigenwerten aller anderen Teilnehmer zum BOL bei allen Brennstofftypen sind nicht größer als 0.9 %.

Die Übereinstimmung bei der Berechnung einiger Reaktivitätskoeffizienten fällt dabei nicht so gut aus. Die größten Diskrepanzen treten bei den Voidkoeffizienten (VK) für hohe Voidanteile auf. Die für den Übergang von 0 zu 10% Void (VK(0-10%)) und von 0 zu 100% Void (VK(0-100%)) berechneten VK sowie die DK für einen Anstieg der Brennstofftemperatur von 600°C auf 900°C sind für RG-3 in Tabelle 7.9 wiedergegeben. Diese und alle folgende Untersuchungen der Reaktivitätskoeffizienten wurden für BOL-Konditionen durchgeführt.

Tabelle 7.9: Void- und Dopplerkoeffizient (VK und DK) für RG-3, aufgelistet nach Benchmarkteilnehmer und verwendeter Grunddatenbasis.

Teilnehmer Bibliothek	CEA JEF-2.2	ECN JEF-2.2	JAERI JENDL-3.2	PSI Ref ^a	PSI BROND-2 ^{a,b}
	[pcm/(%Void)]				
DK(600-900°C) [pcm/°C]	-1.63	-1.45	-1.73	-1.83	-1.80
VK(0-10%) [pcm/(%Void)]	-134.3	-137.0	-129.3	-137.0	-135.8
VK(0-100%) [pcm/(%Void)]	+130.5	+102.0	+137.8	+80.6	+100.6

^a JEF-1.1-Querschnittsdaten mit Zr aus ENDF/B-IV

^b Die Querschnitte von ¹⁶⁶Er und ¹⁶⁷Er kommen aus BROND-2

Die Dopplerkoeffizienten der Benchmarkteilnehmer weisen eine relativ gute Übereinstimmung auf, wobei die Temperaturrückkopplung durch das ECN etwas unter- und mit BOXER etwas überschätzt wird. Bei den Voidkoeffizienten ergeben sich für den Übergang von 0 zu 10% Void konsistente Ergebnisse, wogegen für den Übergang von 0 zu 100% Void die Unterschiede zwischen den Teilnehmern mit bis zu 60 pcm/(%Void) sehr groß erscheinen. Ein ähnliches Bild ergibt sich für RG-1. Die Voidkoeffizienten für diesen Brennstoff sind in Tabelle 7.10 dargestellt. Neben den Differenzen im Voidkoeffizienten für den Übergang von 0 zu 100% Void kommt es hier sogar zu einem Vorzeichenwechsel.

Tabelle 7.10: Voidkoeffizient (VK) für den Übergang von 0 zu 100% Void des Brennstoffs RG-1, aufgelistet nach Teilnehmer und verwendeter Grunddaten.

Teilnehmer Bibliothek	CEA JEF-2.2	ECN JEF-2.2	JAERI JENDL-3.2	PSI Ref ^a
VK(0-100%) [pcm/(%Void)]	+38.5	+24.5	+14.1	-6.7

^a Die Querschnitte von Zr basieren auf ENDF/B-IV

Um diese Unterschiede zu erklären und methodische Effekte von Einflüssen der Grunddaten zu trennen, wurden zum einen die Koeffizienten in die Beiträge der einzelnen Nuklide zerlegt und zum anderen der Benchmark mit dem Zellcode MICROX-2 [126] und Querschnitten aus verschiedenen Bibliotheken nachgerechnet [127].

Weitere Benchmarkresultate sind in [123] und [127] zusammengestellt. Der Einfluß der Grunddaten wird hier am Beispiel von RG-1 und RG-3 für den Übergang von 0 zu 100% Void wiedergegeben. Dabei ist RG-3 repräsentativ für den in dieser Arbeit entwickelten Inert-Matrix-Brennstoff.

7.3.2 Zerlegung der Koeffizienten

Allgemein sind Reaktivitätskoeffizienten definiert als $\frac{\delta \rho}{\delta x}$, wobei x die Brennstoff- oder, Moderator-temperatur, der Voidanteil oder die Menge gelöstes Bor sein kann [63]. Häufig wird dabei ein Reaktivitätskoeffizient nach folgender Gleichung berechnet:

$$\begin{aligned} \frac{\delta \rho}{\delta x} &\approx \frac{\Delta \rho}{\Delta x} \\ &= \left(\frac{1}{k_0} - \frac{1}{k_1} \right) \cdot \frac{1}{\Delta x} \end{aligned} \quad (7.3)$$

mit $\Delta x = x_1 - x_0$, wobei der Index 0 den Ausgangszustand und der Index 1 den Zustand nach der Änderung bezeichnet. Werden unendliche Anordnungen betrachtet, gilt mit $k = k_\infty$:

$$\Delta \rho = \frac{A_0}{P_0} - \frac{A_1}{P_1} \quad (7.4)$$

$$= \frac{A_0 \cdot P_1 - A_1 \cdot P_0 - A_0 \cdot P_0 + A_0 \cdot P_0}{P_0 \cdot P_1} \quad (7.5)$$

$$\Delta \rho = \frac{1}{P_1} \cdot \left[\frac{\Delta P}{k_0} - \Delta A \right] \quad (7.6)$$

wobei P und A die Gesamtproduktion bzw. Gesamtabsorption im jeweiligen Zustand ist. Erfolgt die Normierung für beide betrachteten Zustände auf den gleichen Wert einer

integralen Größe, wie z. B. der Leistung, so kann aus Gleichung 7.6 auch der Reaktivitätskoeffizienten-Beitrag des Nuklids i für die Energiegruppe g wie folgt berechnet werden:

$$\alpha_{i,g} = \frac{1}{\Delta x} \cdot \frac{1}{P_1} \cdot \left[\frac{\Delta P_{i,g}}{k_0} - \Delta A_{i,g} \right] \quad (7.7)$$

Der Gesamtkoeffizient $C^x = \frac{\Delta \rho}{\Delta x}$ ergibt sich nach Gleichung 7.8 als Summe aller Einzelkoeffizienten $\alpha_{i,g}$ mit:

$$C^x = \sum_{i,g} \alpha_{i,g} \quad (7.8)$$

wobei sich der Gesamtbeitrag eines Nuklids aus

$$\alpha_i = \sum_g \alpha_{i,g} \quad (7.9)$$

berechnet. Innerhalb des Benchmarks sind die Koeffizienten definiert als:

$$C^x = \frac{\Delta \rho}{\Delta x} \cdot k_1 \quad (7.10)$$

so daß sich die Koeffizienten-Beiträge der Nuklide mit

$$\alpha_i = \frac{k_1}{\Delta x} \cdot \frac{1}{P_1} \cdot \left[\frac{\Delta P_i}{k_0} - \Delta A_i \right] \quad (7.11)$$

oder auch als Beitrag pro Nuklid und Energiegruppe mit

$$\alpha_{i,g} = \frac{k_1}{\Delta x} \cdot \frac{1}{P_1} \cdot \left[\frac{\Delta P_{i,g}}{k_0} - \Delta A_{i,g} \right] \quad (7.12)$$

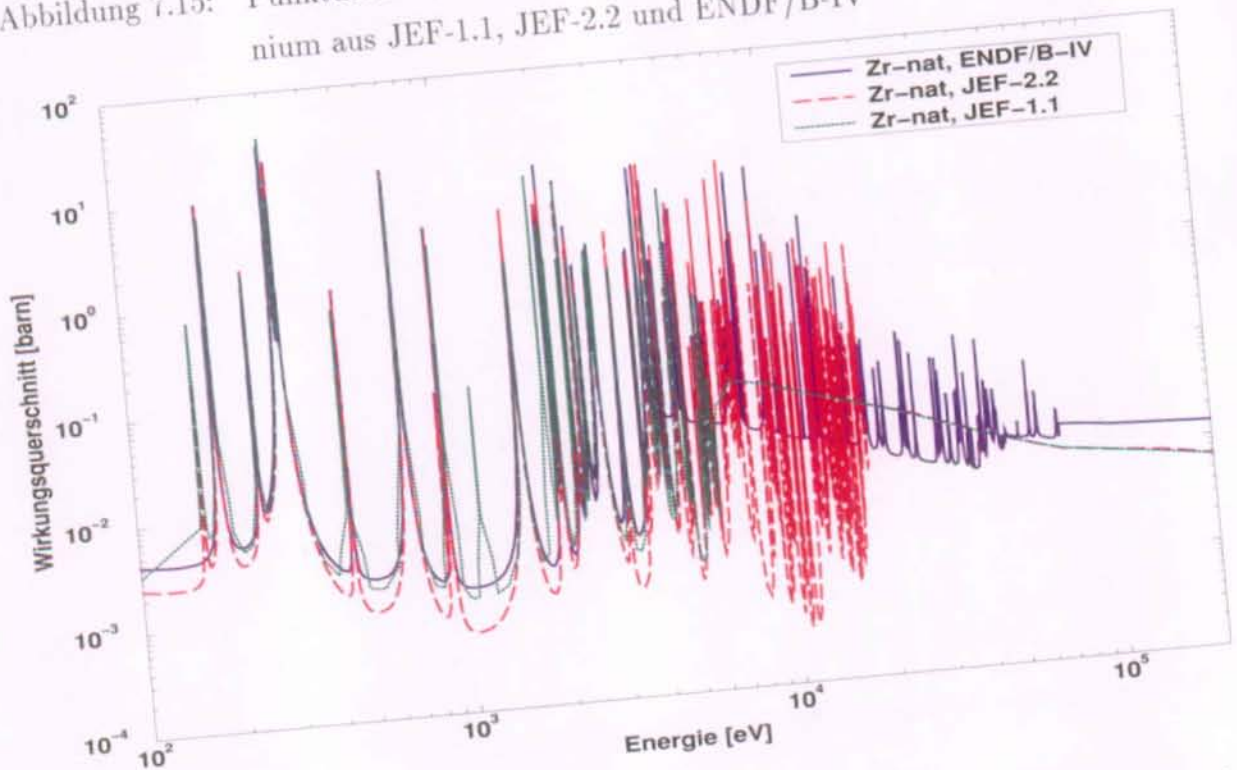
berechnen lassen. Die Aufspaltung der Koeffizienten nach Energiegruppen ist hier der Vollständigkeit halber wiedergegeben. Betrachtet werden innerhalb dieser Arbeit nur die Koeffizientenbeiträge pro Nuklid, da dies zur Aufspaltung der Differenzen in den

Ergebnissen der Benchmarkteilnehmer in Daten- und Methodeneffekte völlig ausreichend ist. Bei der Zerlegung der Koeffizienten wurde davon ausgegangen, daß die Leistung für alle Zustände konstant ist. Alle Reaktionsraten wurden somit für die Zerlegung auf die Leistung normiert.

7.3.3 Datenstudien am Beispiel von Voidkoeffizienten

Die meisten Querschnitte der in BOXER verwendeten Nuklide basieren auf der JEF-1.1-Bibliothek. Eine Ausnahme stellt hierbei Zirkonium dar. Die Querschnittsdaten dieses Nuklids stammen aus ENDF/B-IV. Die in Abbildung 7.15 dargestellten Querschnittsverläufe aus den Bibliotheken JEF-1.1 und ENDF/B-IV weisen Unterschiede besonders im dargestellten Resonanzbereich auf.

Abbildung 7.15: Punktdaten der Einfangquerschnitte über der Energie für Zirkonium aus JEF-1.1, JEF-2.2 und ENDF/B-IV



Der Resonanzbereich des Zirkoniums aus JEF-1.1¹³ endet bei rund 6 keV und der des Zirkoniums aus JEF-2.2 bei rund 20 keV, während die unaufgelösten Resonanzen der ENDF/B-IV¹⁴ Daten erst bei ca. 70 keV beginnen und der mittlere Querschnitt fast doppelt so groß ist, wie der des Zirkoniums aus JEF-1.1 bzw. aus JEF-2.2.

¹³Ein ähnlicher Verlauf ergibt sich für die Zirkoniumdaten aus JENDL-3.2

¹⁴Die Zirkoniumdaten aus ENDF/B-V und ENDF/B-VI weisen vergleichbare Querschnitte auf.

Um die Auswirkung dieser verschiedenen Zr-Daten als auch die der verschiedenen Er-Daten zu untersuchen, wurde der Benchmark mit dem Zellcode MICROX-2 und JEF-1.1-Daten für alle Nuklide berechnet. Eine zweite Rechnung erfolgte mit Zirkonium aus ENDF/B-IV und allen anderen Querschnitten aus JEF-1.1. Diese zweite Benchmarkrechnung mit MICROX-2 und JEF-1.1-Daten sowie Zirkonium aus ENDF/B-IV wird im folgenden als **Referenz** für den Brennstoff RG-1 bezeichnet, da sie der verwendeten Datenbasis der in BOXER eingesetzten Grunddaten entspricht. Im Fall von RG-3 werden in der Referenz-Rechnung mit MICROX-2 zusätzlich ¹⁶⁶Er und ¹⁶⁷Er aus BROND-2 verwendet.

Es ist sowohl mit BOXER als auch mit MICROX-2 möglich, Erbiumdaten aus JEF-1.1 und BROND-2 zu verwenden. Hierdurch besteht die Möglichkeit, zum einen den Einfluß dieser unterschiedlichen Erbiumdaten auf die Koeffizienten von RG-3 zu zeigen, und zum anderen die Übertragbarkeit von Dateneffekten zu belegen. In Tabelle 7.11 sind die Ergebnisse der MICROX-Rechnungen sowie die der BOXER-Rechnungen mit Erbium jeweils aus JEF-1.1 bzw. BROND-2 zusammengestellt.

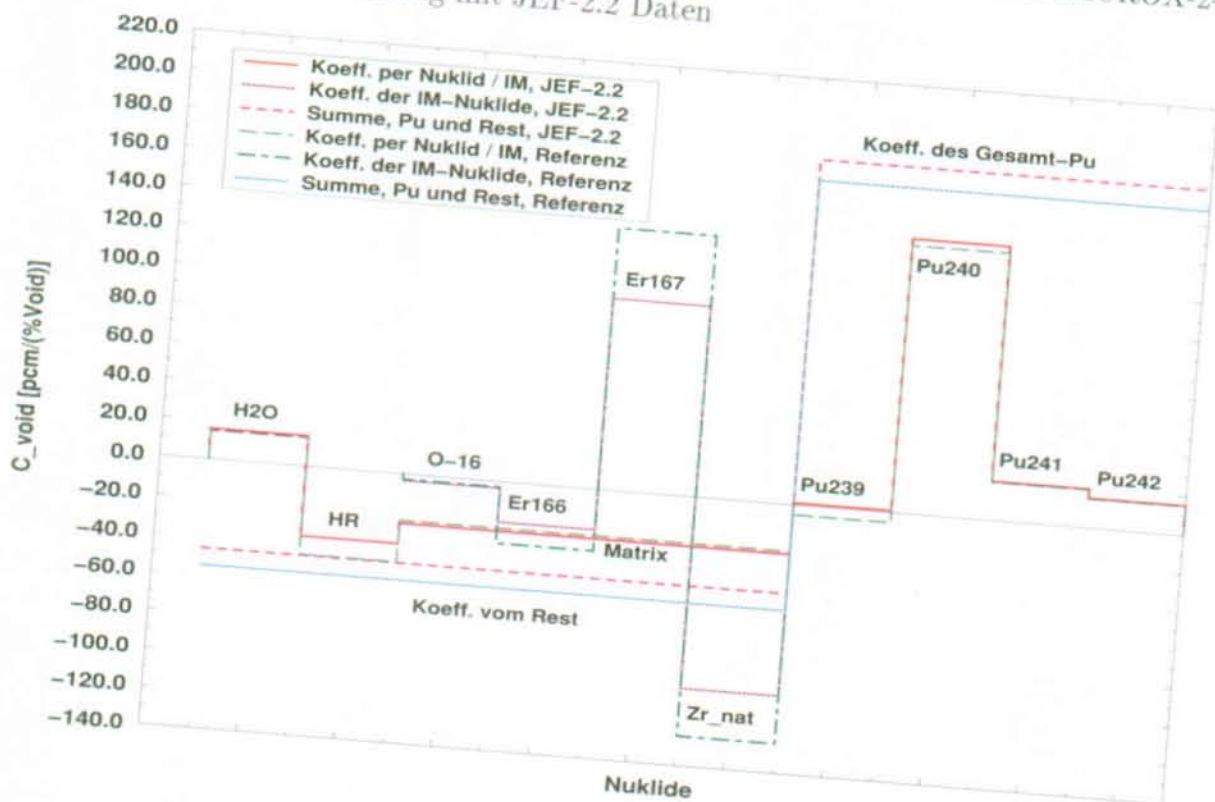
Tabelle 7.11: Voidkoeffizient (VK) für den Übergang von 0 zu 100% Void des Brennstoffs RG-3 aus Rechnungen mit BOXER und MICROX-2 für verschiedene Er-Grunddaten.

Programm Erbium aus	MICROX-2			BOXER		
	BROND-2	JEF-1.1	Differenz	BROND-2	JEF-1.1	Differenz
VK(0-10%) [$\frac{pcm}{\%Void}$]	-135.2	-135.0	-0.2	-135.8	-137.4	1.6
VK(0-50%) [$\frac{pcm}{\%Void}$]	-118.9	-120.7	1.8	-123.6	-126.6	3.0
VK(0-95%) [$\frac{pcm}{\%Void}$]	81.7	59.1	22.6	61.9	42.3	19.6
VK(0-100%) [$\frac{pcm}{\%Void}$]	112.4	86.1	26.3	100.6	80.6	20.0

Die Ergebnisse zeigen, daß sowohl die Unterschiede aus den Programmen als auch die aus den Daten für Voidanteile bis zu 50 % relativ klein sind. Zudem bewirken die verschiedenen Querschnittsdaten auch bei hohen Voidanteilen in den Programmen ähnliche Differenzen, so daß diese als programmunabhängig angesehen werden können und somit auch auf andere Codes übertragbar sind. Alle folgenden Vergleiche mit unterschiedlichen Daten basieren auf Rechnungen mit MICROX-2.

In Abbildung 7.16 sind die Koeffizientenbeiträge der einzelnen Nuklide für RG-3 der Referenz- und der MICROX-2-Rechnung mit JEF-2.2 Daten wiedergegeben.

Abbildung 7.16: Anteile der Nuklide am Voidkoeffizienten für den Übergang von 0 zu 100% Void im Fall RG-3 für die Referenz- und die MICROX-2-Rechnung mit JEF-2.2 Daten



Der Anteil des Zirkoniums an der Gesamtabsorption der Zelle beträgt für 0 % Void rund 1.2 %. Dieser Absorptionsbeitrag steigt mit zunehmendem Void auf rund 13 % bis 16 % für 100% Void, je nach verwendetem Datensatz. Dies erklärt die negativen Koeffizientenbeiträge des Hüllrohrs (HR) und des Zirkoniums in der Matrix. Die größten positiven Beiträge zum Voidkoeffizienten kommen vom ^{167}Er und vom ^{240}Pu , da in beiden Fällen die großen Resonanzen im thermischen Energiegebiet jetzt nicht mehr zum Tragen kommen.

Die größten Unterschiede zwischen den verwendeten Datensätzen in den Beiträgen zum Voidkoeffizienten ergeben sich für das Zirkonium mit $-34.2 \text{ pcm}/(\% \text{Void})$ und das ^{167}Er mit $+36.4 \text{ pcm}/(\% \text{Void})$, wobei sich diese Differenzen, da sie verschiedene Vorzeichen aufweisen, fast ausgleichen.

In Tabelle 7.12 werden diese Ergebnisse der VK mit denen der anderen Benchmarkteilnehmer, die JEF-2.2-Daten in den Rechnungen verwendet haben, zusammengefaßt.

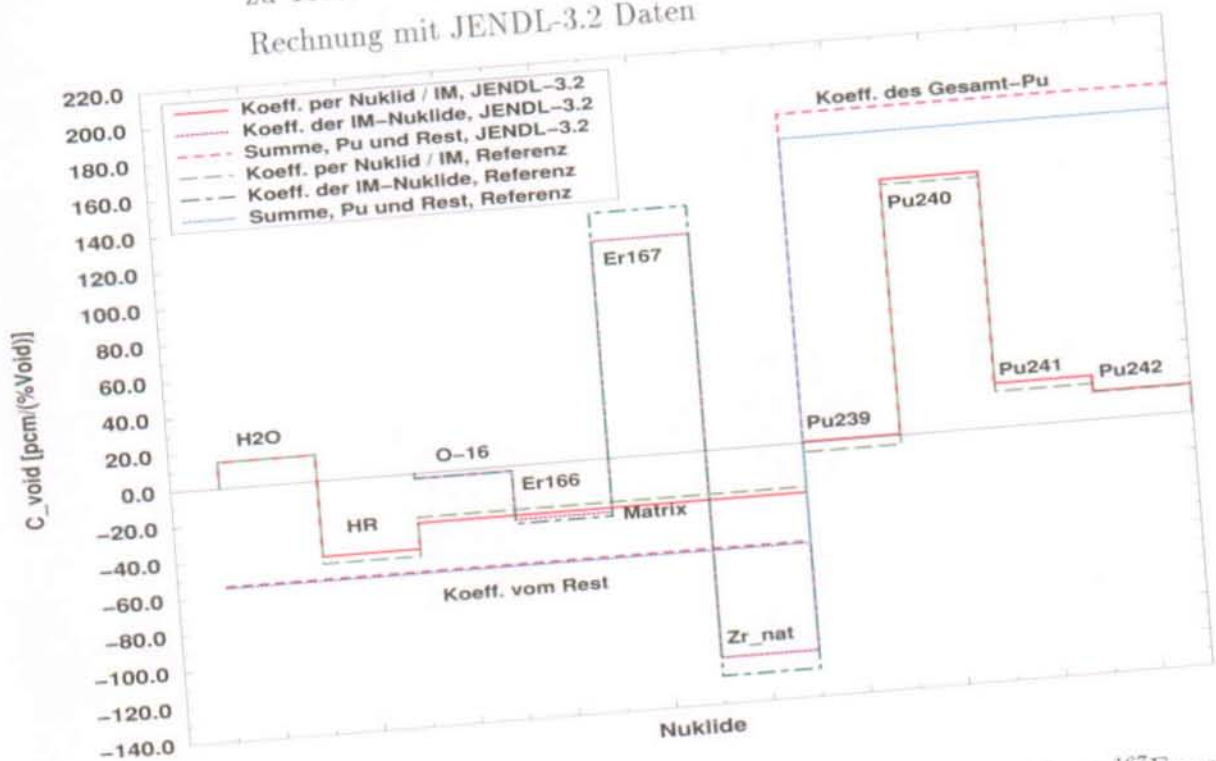
Tabelle 7.12: Vergleich der Voidkoeffizienten (VK) für RG-3 beim Übergang von 0 zu 100 % Void der Rechnungen mit JEF-2.2-Daten.

Teiln. o. Prog. Bibliothek	CEA JEF-2.2	ECN JEF-2.2	BOXER Ref. ^a	Differenz aus den Daten ^b	BOXER JEF-2.2 ^c
	[pcm/(%Void)]				
VK	+130.5	+102.0	+100.6	+19.9	+120.5

^a JEF-1.1-Daten mit Zr aus ENDF/B-IV und Er aus BROND-2
^b Basierend auf MICROX-2-Rechnungen, Differenz aus Referenz und JEF-2.2
^c BOXER-Ref. mit Korrektur entsprechend der Differenz aus den Daten

Die Unterschiede zwischen der CEA und dem ECN sind methodisch bedingt, da in beiden Fällen die gleiche Datenbasis verwendet wird. Das „korrigierte“ BOXER-Ergebnis liegt zwischen diesen beiden Resultaten. Die Koeffizientenbeiträge für RG-3 der Referenzrechnung und der MICROX-Rechnung mit JENDL-3.2 Daten sind in Abbildung 7.17 dargestellt.

Abbildung 7.17: Anteile der Nuklide am Voidkoeffizienten für den Übergang von 0 zu 100% Void im Fall RG-3 für die Referenz- und die MICROX-Rechnung mit JENDL-3.2 Daten



Auch hier kommen die größten Beiträge zum Voidkoeffizienten vom Zirkonium, ¹⁶⁷Er und ²⁴⁰Pu, wobei sich die Unterschiede im Zirkonium und im Erbium wieder gegeneinander aufheben. Die verbleibenden Differenzen kommen somit hauptsächlich aus dem Plutonium. Tabelle 7.13 faßt diese Ergebnisse mit denen von JAERI zusammen.

Tabelle 7.13: Vergleich der Voidkoeffizienten (VK) für RG-3 beim Übergang von 0 zu 100 % Void der Rechnungen mit JENDL-3.2-Daten.

Teiln. o. Prog. Bibliothek	JAERI JENDL-3.2	BOXER Ref. ^a	Differenz aus den Daten ^b	BOXER JENDL-3.2 ^c
	[pcm/(%Void)]			
VK	+137.8	+100.6	+15.0	+115.6

^aJEF-1.1-Daten mit Zr aus ENDF/B-IV und Er aus BROND-2

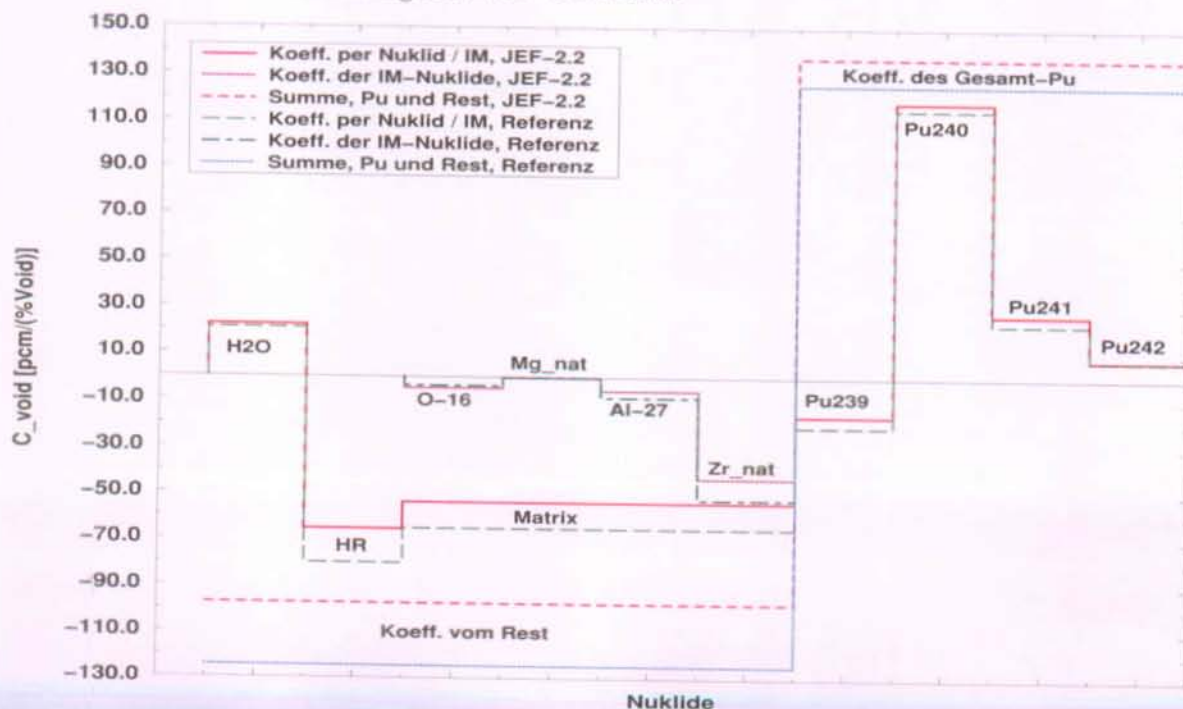
^bBasierend auf MICROX-2-Rechnungen, Differenz aus Referenz und JENDL-3.2

^cBOXER-Ref. mit Korrektur entsprechend der Differenz aus den Daten

In diesem Fall gibt das korrigierte BOXER-Ergebnis nicht den von JAERI berechneten Voidkoeffizienten wieder. Die verbleibende Differenz läßt sich also nur mit den unterschiedlichen Methoden in BOXER und SRAC-95 begründen, wobei JAERI für RG-3 die positivsten VK aller Benchmarkteilnehmer angibt. Die Unsicherheiten von den Methoden beträgt somit rund 22 pcm/(%Void) und ist in diesem Fall damit etwas größer als die aus den Daten mit 15 pcm/(%Void). Ein etwas anders Bild ergibt sich für RG-1. Hier lassen sich die Unterschiede in den Ergebnissen relativ eindeutig durch die jeweils verwendeten Daten erklären.

In Abbildung 7.18 wird die Referenzlösung mit einer MICROX-2-Rechnung mit JEF-2.2 Daten für RG-1 beim Übergang von 0 zu 100 % Void verglichen.

Abbildung 7.18: Anteile der Nuklide am Voidkoeffizienten für den Übergang von 0 zu 100% Void im Fall RG-1 für die Referenz- und die MICROX-Rechnung mit JEF-2.2 Daten



Die Differenz zwischen der Referenzlösung und der JEF-2.2-Rechnung beträgt für die Pu-Isotope ~ 12 pcm/(%Void) und für die restlichen Nuklide der RG-1-Zelle ~ 27 pcm/(%Void). Zusammen ist dies ein Unterschied von 39 pcm/(%Void), welcher nur aus der Verwendung verschiedener Daten herrührt. Hierdurch läßt sich das BOXER-Ergebnis mit $C_{Void}^{100} = -6.7$ pcm/(%Void) in ein Ergebnis überführen, das zwischen dem Wert der CEA und dem des ECN liegt, so wie in Tabelle 7.14 zusammengestellt.

Tabelle 7.14: Vergleich der Voidkoeffizienten (VK) für RG-1 beim Übergang von 0 zu 100 % Void der Rechnungen mit JEF-2.2-Daten.

Teiln. o. Prog. Bibliothek	CEA JEF-2.2	ECN JEF-2.2	BOXER Ref. ^a	Differenz aus den Daten ^b	BOXER JEF-2.2 ^c
	[pcm/(%Void)]				
VK	+38.5	+24.5	-6.7	+39.0	+32.3

^a JEF-1.1-Daten mit Zr-Querschnitten aus ENDF/B-IV

^b Basierend auf MICROX-2-Rechnungen, Differenz aus Referenz und JEF-2.2

^c BOXER-Ref. mit Korrektur entsprechend der Differenz aus den Daten

Der Unterschied zwischen der CEA mit $C_{Void}^{100} = 38.5$ pcm/(%Void) zu dem ECN-Ergebnis mit $C_{Void}^{100} = 24.5$ pcm/(%Void) beruht auf unterschiedlichen Methoden. Des weiteren wurde festgestellt, daß das k_{∞} der JEF-2.2-Rechnung mit MICROX für 0% Void ~ 0.35 % unter dem Referenzwert lag. Dies resultiert aus dem weniger reaktiven ^{239}Pu aus JEF-2.2 gegenüber dem aus JEF-1.1 [127].

Ein analoges Bild, wie für den Vergleich mit JEF-2.2 ergibt sich für JENDL-3.2 aus den Ergebnissen von JAERI. Resultate der MICROX-Rechnung mit JENDL-3.2 Daten für RG-1 beim Übergang von 0 zu 100 % Void sind in Abbildung 7.19 dargestellt.

Die Differenz der Koeffizientenbeiträge der Pu-Isotope gegenüber der Referenzrechnung beträgt ~ 15 pcm/(%Void), der der restlichen Nuklide der Zelle ~ 9 pcm/(%Void). Werden diese 24 pcm/(%Void) zum BOXER-Ergebnis hinzuaddiert, so liegt der auf JENDL-3.2 korrigierte BOXER-Koeffizient nur 3.2 pcm/(%Void) über dem Wert von JAERI, wie Tabelle 7.15 zu entnehmen ist. Diese kleine Differenz von ~ 3 pcm/(%Void) kann somit auf die unterschiedlichen Programme zurückgeführt werden, ist aber prinzipiell vernachlässigbar.

Abbildung 7.19: Anteile der Nuklide am Voidkoeffizienten für den Übergang von 0 zu 100% Void im Fall RG-1 für die Referenz- und die MICROX-Rechnung mit JENDL-3.2 Daten

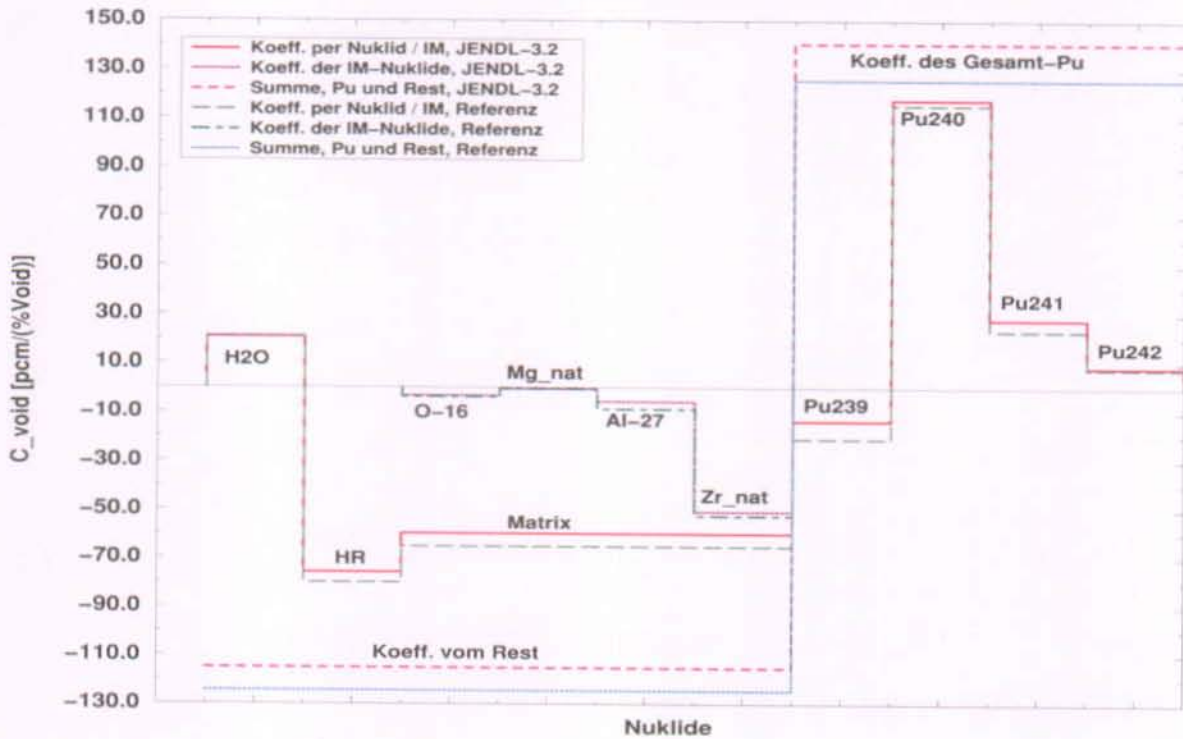


Tabelle 7.15: Vergleich der Voidkoeffizient (VK) für RG-1 beim Übergang von 0 zu 100% Void der Rechnungen mit JENDL-3.2.

Teiln. o. Prog. Bibliothek	JAERI JENDL-3.2	BOXER Ref. ^a	Differenz aus den Daten ^b	BOXER JENDL-3.2 ^c
	[pcm/(%Void)]			
VK	+14.1	-6.7	+24.0	+17.3

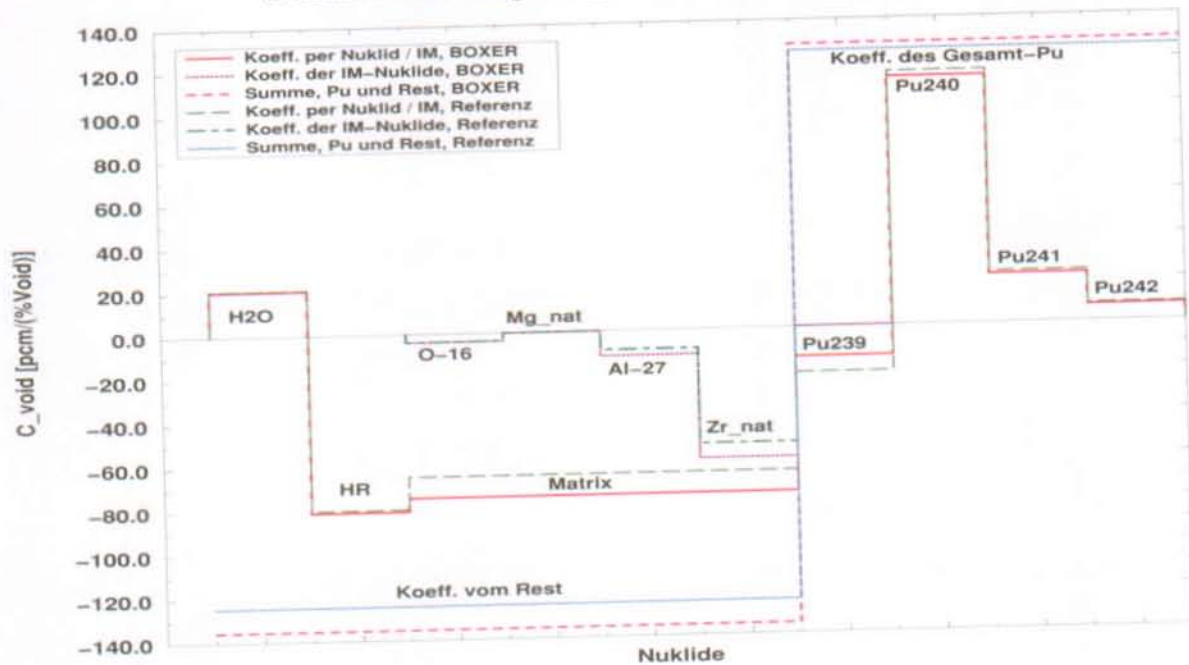
^a JEF-1.1-Daten mit Zr-Querschnitten aus ENDF/B-IV

^b Basierend auf MICROX-2-Rechnungen, Differenz aus Referenz und JENDL-3.2

^c BOXER-Ref. mit der Korrektur entsprechend der Differenz aus den Daten

Abbildung 7.20 belegt schließlich einen reinen Methodenvergleich zwischen den mit BOXER und mit MICROX berechneten nuklidweisen Koeffizientenbeiträge für RG-1 beim Übergang von 0 zu 100 % Void. In beiden Programmen wurden dabei die gleichen Grunddaten verwendet.

Abbildung 7.20: Anteile der Nuklide am Voidkoeffizienten für den Übergang von 0 zu 100% Void im Fall RG-1 für die MICROX-Referenz- und die BOXER-Rechnung mit gleichen Grunddaten



Für die Beiträge zum Voidkoeffizienten der Pu-Isotope ergibt die BOXER-Rechnung einen um rund 3 pcm/(%Void) positiveren und für die der restlichen Nuklide mit -11 pcm/(%Void) einen negativeren Wert. Diese Differenzen basieren zum größten Teil auf Unterschieden in den Reaktionsraten von ²³⁹Pu und Zirkonium im epithermischen Energiegebiet oberhalb der punktweisen Resonanzrechnung in BOXER und MICROX. Eine Erklärung hierfür könnte in der feineren Gruppenstruktur von MICROX-2 im Vergleich zu BOXER in eben diesem Energiegebiet liegen. Um diese Unterschiede genau zu quantifizieren, sind weitere Untersuchungen notwendig. Andererseits stellt eine so gute Übereinstimmung zwischen zwei verschiedenen Programmen ein befriedigendes Ergebnis dar; besonders dann, wenn die Schwankungsbreite der Ergebnisse, bedingt durch die unterschiedliche Prozessierung der Querschnittsdaten, berücksichtigt wird. Eine ausführliche Zusammenfassung aller Datenstudien ist in [127] zu finden und kann hier auf Grund des Umfangs nicht wiedergegeben werden.

7.4 Resümee der Validierung

Die Ergebnisse der Validierung zeigen, daß die verwendeten Methoden und Daten für die Beschreibung von uranfreien Systemen hinreichend gut sind.

Für den kalten BOL-Zustand werden mit BOXER die direkt meßbaren Plutoniumreaktionsraten im Rahmen der Meßgenauigkeit der PROTEUS-FDWR-Experimente gut wieder-

gegeben. Eine Übertragung der Ergebnisse aus Kapitel 7.3 auf die BOXER-Nachrechnungen der PROTEUS-Messungen in Kapitel 7.1 würde zu einer gewissen Verbesserung der BOXER-Resultate führen. Die Differenz zwischen Messungen und Rechnungen für k_{∞} im PROTEUS-FDWR-Kern 18 würden beim Einsatz von JEF-2.2 an Stelle von JEF-1.1 Daten etwas kleiner werden, da die Spaltquerschnitte von ^{239}Pu in der JEF-2.2 Bibliothek kleiner sind als in JEF-1.1.

Die Ergebnisse der CROCUS-Nachrechnungen stärken das Vertrauen in die Einsetzbarkeit von BOXER bei der Behandlung von Brennstoffen mit hohem BP-Anteil. So konnte gezeigt werden, daß Selbstabschirmungseffekte und der Einfluß von Europium (als Substitut für Plutonium) auf Erbium im thermischen Energiegebiet richtig wiedergegeben werden. Allerdings bedarf es hier noch weiterer Messungen, um dies auch für BP in IMF-Spektren zu bestätigen.

Der Benchmarkvergleich gibt schließlich eine zusätzliche Validierungsgrundlage für Vollzustände mit Abbrand. Die gute Übereinstimmung der Ergebnisse der verschiedenen Benchmarkteilnehmer bei der Abbrandrechnung läßt darauf schließen, daß die in Kapitel 5.3 berechneten Zykluslängen für die IMF-Kerne richtig sind. Der leicht negative Dopplerkoeffizient von BOXER für RG-3 gegenüber den Werten der anderen Benchmarkteilnehmer kann dazu führen, daß der Dopplerkoeffizient in den IMF-Kernen etwas weniger negativ bewertet werden muß. Die Voidkoeffizienten für große Voidanteile weisen die größten Diskrepanzen aller berechneten Reaktivitätskoeffizienten auf. Durch Datenstudien mit MICROX-2 und durch die Aufteilung der Koeffizienten in die Beiträge der einzelnen Nuklide konnte gezeigt werden, daß diese Diskrepanzen maßgeblich auf Datenunterschiede für Zirkonium und Erbium im schnellen Energiegebiet zurückzuführen sind.

Für die Referenzrechnung mit RG-3 ergibt sich hier eine maximale Unsicherheit aus den Daten von rund +20 pcm/(%Void). Wird diese Differenz zusammen mit dem maximalen Unterschied aus den Methoden von +22 pcm/(%Void) bei der Brennstoffauslegung in Kapitel 4 berücksichtigt, so steigt der Voidkoeffizient für die Er-Zelle aus Tabelle 4.3 von -29 auf +13 pcm/(%Void)¹⁵. Allerdings gilt dies nur für den frischen Brennstoff. Mit dem Abbrand wird der Voidkoeffizient stark negativ, so daß diese Unsicherheiten vernachlässigbar werden. Der Voidkoeffizient des Gleichgewichtskerns mit RG-IMF aus Kapitel 5 wird in [77] für den Übergang von 0 zu 100 % Void zum Zyklusbeginn mit -120 pcm/(%Void) und zum Zyklusende mit -403 pcm/(%Void) berechnet. Somit ergibt sich für Vollkerne im Gleichgewicht über den gesamten Voidbereich und zu jedem Zeitpunkt immer ein

¹⁵In dieser Änderung wurde die Empfindlichkeit der Migrationfläche bezüglich der Daten nicht berücksichtigt

negativer Voidkoeffizient, auch unter Berücksichtigung der hier aufgezeigten maximalen Unsicherheit von +42 pcm/(%Void).

Wie mit RG-3 und RG-1 gezeigt, führen insbesondere die hier verwendeten Zirkoniumdaten aus ENDF/B-IV zu einem negativeren Voidkoeffizienten mit BOXER für den Übergang von 0 zu 100% Void. Dabei sprechen zwei Gründe für die Verwendung dieser Zirkoniumdaten¹⁶:

- Zum einen ist der Resonanzbereich des Zirkoniums aus ENDF/B-IV auch für höhere Energien aufgelöst als der in JEF-1.1, JEF-2.2 oder JENDL-3.2, wie in Abbildung 7.15 dargestellt.
- Zum anderen konnte in [127] gezeigt werden, daß es bei der Generierung der Querschnittsdaten aus JEF und JENDL-3.2 für Zirkonium zu Fehlern kommt. So stimmt z. B. für das von allen Benchmarkteilnehmern verwendete natürliche Zirkonium im MeV-Bereich die Summe aus den partiellen Querschnitten nicht mit dem totalen Querschnitt überein.

Dies sind keine endgültigen Beweise für die Richtigkeit der hier verwendeten Daten, allerdings zeigen diese Hinweise, daß diese Daten keine gravierenden Mängel aufweisen bzw. nicht zu großen Unsicherheiten in den Ergebnissen der Auslegungsrechnung führen sollten. Um endgültig Gewißheit über solche datenbedingten Effekte zu erzielen, bedarf es jedoch kritischer Experimente, ähnlich der FDWR-PROTEUS-Versuche.

¹⁶Gleiches gilt auch für die Zirkoniumdaten aus ENDF/B-V und ENDF/B-VI [127]

8 Zusammenfassung

In dieser Arbeit wurde ein uranfreier Pu-Vollkern für den Einsatz in einem bestehenden LWR konzipiert, mit dem Ziel effektiv Plutonium abzubauen. In einem ersten Schritt wurde hierfür der aus Plutonium, einem abbrennbaren Neutronengift und einer neutronenphysikalisch und chemisch inerten Matrix bestehende Brennstoff ausgelegt. In die Auslegung flossen sowohl neutronenphysikalische als auch materialtechnische Aspekte ein. Für die neutronenphysikalische Auslegung mittels Zell- und zweidimensionalen Brennelementberechnungen waren dabei Kriterien wie:

- Abbrandverhalten,
- Reaktivitätskoeffizienten,
- Kontrollanforderungen und
- Kontrollabsorberwerte

entscheidend. Insbesondere wurden im Rahmen dieser Arbeit die wichtigsten neutronenphysikalischen Auslegungsdaten wie die Plutoniumdichte, die Art des abbrennbaren Giftes und dessen Dichte im Brennstoff festgelegt. Mit dem Brennstoff wird es möglich sein, einen LWR-Vier-Zonenkern mit Zykluslängen von 325 bis 350 Vollasttagen zu betreiben. Es zeigte sich, daß für die geforderten Standzeiten von ca. 1400 Vollasttagen rund 0.9 g/cm^3 Plutonium aus abgebranntem UO_2 -Brennstoff im uranfreien Brennstoff benötigt werden. Um eine Vergleichsbasis zu erstellen, wurden neben den verschiedenen Zusammensetzungen uranfreier Brennstoffe auch ein UO_2 -Brennstoff und ein MOX-Brennstoff betrachtet.

Neutronenphysikalisch lassen sich die meisten abbrennbaren Neutronengifte in zwei Kategorien einteilen. Zu der einen Kategorie gehören abbrennbare Gifte wie Bor, Cadmium, Europium oder Gadolinium mit sehr großen thermischen Absorptionsquerschnitten. Zudem weisen die Einfangprodukte der absorbierenden Nuklide dieser Gifte in der Regel kleine Absorptionsquerschnitte auf, so daß sich mit diesen abbrennbaren Absorbern ein gutes Abbrandverhalten einstellt. Allerdings weisen uranfreie Brennstoffe mit diesen Neutronengiften im frischen Brennstoff nur sehr wenig negative, oder gar positive Reaktivitätskoeffizienten auf.

In die zweite Kategorie von abbrennbaren Neutronengiften fallen Elemente wie Dysprosium, Hafnium, Holmium, Indium, Lutetium oder Rhodium. Diese Absorber zeigen alle ein sehr schlechtes Abbrandverhalten auf, da die entstehenden Einfangprodukte in der Regel auch Neutronengifte sind. Somit ist die Restabsorption dieser Nuklide und deren

Einfangprodukte so groß, daß ein effizienter Abbau des Plutoniums nicht möglich ist. Andererseits gibt es hier Absorber, welche zu Reaktivitätskoeffizienten im uranfreien Brennstoff führen, die denen von UO_2 -Brennstoff vergleichbar sind.

Einer der wenigen Absorber, der beiden Anforderungen genügt, ist Erbium. Mit einem uranfreien Brennstoff aus 0.9 g/cm^3 Plutonium und 0.3 g/cm^3 Erbium scheint es möglich zu sein, sowohl das Plutonium effektiv abzubrennen, als auch die Sicherheitsanforderungen in bestehenden LWR zu erfüllen.

Die uranfreien Pu-Brennstoffe weisen reduzierte Kontrollstabwerte sowie weniger negative Brennstofftemperatur- und Voidkoeffizienten als die Referenzbrennstoffe insbesondere am BOL auf. Mit dem Abbrand erhöhen sich die Kontrollabsorberwerte, und die Voidkoeffizienten werden deutlich negativer. Dies erklärt sich durch die starke Spektrumsänderung dieser Brennstoffe mit dem Abbrand. Durch den Abbau des abbrennbaren Giftes sowie des Plutoniums sinkt der thermische Absorptionsquerschnitt, so daß der thermische Neutronenfluß im uranfreien Brennstoff mit dem Abbrand steigt. In herkömmlichen Brennstoffen wie UO_2 oder MOX wird dagegen der thermische Absorptionsquerschnitt und in Folge auch das Spektrum durch das ^{238}U vergleichsweise konstant gehalten, so daß sich Reaktivitätskoeffizienten und Kontrollabsorberwerte mit dem Abbrand relativ wenig verändern. Die über den Abbrand gemittelten Kontrollstabwerte des vorgeschlagenen uranfreien Brennstoffs aus $1.02 \text{ g/cm}^3 \text{ PuO}_2$, $0.343 \text{ g/cm}^3 \text{ Er}_2\text{O}_3$ in einer inerten ZrO_2 -Matrix liegen zwischen den Werten von UO_2 und MOX. Gleichzeitig sinken z. T. die Kontrollanforderungen. Dies erklärt, warum ein uranfreier Vollkern in einigen Fällen sicherheitstechnische Vorteile gegenüber einem MOX-Kern aufzeigt.

Die Auswahl der inerten Matrix wurde hauptsächlich durch Materialeigenschaften bestimmt. Der Großteil der Untersuchungen hierzu wurde im Labor für Werkstoffe und nukleare Verfahren des PSIs durchgeführt. Auswahlkriterien für die Trägermatrix waren:

- Keinen oder nur einen geringen Einfluß der Matrix auf die Neutronenphysik, also neutronisch inert
- Chemische Inertheit gegenüber den im Reaktor befindlichen Materialien und Komponenten
- Unlöslichkeit in Wasser, damit eine direkte Endlagerung des abgebrannten Brennstoffs möglich wird
- Materialeigenschaften wie Wärmeleitfähigkeit, spezifische Wärme und Wärmeausdehnung sollten, bei Einhaltung aller Auslegungsgrenzen einen normalen Reaktor-

betrieb ohne Leistungsabsenkung zulassen

- Sowohl Plutonium, abbrennbare Gifte sowie Spaltprodukte sollten von der Matrix aufgenommen werden können
- Die Herstellung des Brennstoffs sollte mit den bestehenden Verfahren zur Brennstoffherstellung machbar sein.

Ein aussichtsreiches Material findet sich in Y_2O_3 stabilisiertem ZrO_2 . Vorteile sind, daß ZrO_2 auch durch PuO_2 und Er_2O_3 zu einer kubisch festen Lösung stabilisiert wird. Zudem wird ein Großteil der Spaltprodukte von dieser Matrix aufgenommen und wirkt ebenfalls stabilisierend auf sie. Damit liegt ein Brennstoff vor, der während des gesamten Abbrands bei allen vorkommenden Temperaturen einphasig ist. Ein weiterer Vorteil ist die große Hitzebeständigkeit mit einem Schmelzpunkt von über $2700^\circ C$. Die quasi völlige Unlöslichkeit von ZrO_2 in Wasser, Säuren und Basen läßt keine Komplikationen im Reaktorbetrieb erkennen, favorisiert ZrO_2 somit auch für die direkte Endlagerung und senkt die Proliferationsrisiken. Einziger Nachteil könnte die niedrige Wärmeleitfähigkeit sein, die kleiner als bei UO_2 und MOX ist. Allerdings wirkt die Wärmeübertragung in diesem Material nicht nur durch Wärmeleitung sondern auch durch Strahlung, wobei dieser Einfluß noch nicht quantifiziert ist. Zudem erscheint es möglich, die Wärmeleitfähigkeit durch die Zugabe von anderen Stoffen, wie z.B. metallischem Zirkonium, anzuheben. Hierzu sind laufende Untersuchungen abzuschließen. Endgültigen Aufschluß darüber, ob ZrO_2 als inerte Matrix verwendet werden kann, können nur Bestrahlungsexperimente uranfreier Brennstoffe geben, bei denen, unter anderem, die Brennstofftemperatur über einen größeren Abbrandzeitraum gemessen wird.

Für alle weiteren Arbeiten wurde der Inert-Matrix-Brennstoff (IMF) aus ZrO_2 als inerte Matrix mit 1.02 g/cm^3 PuO_2 als Brennstoff und 0.343 g/cm^3 Er_2O_3 als abbrennbarem Gift verwendet. Um gleiche mittlere Brennstofftemperaturen im IMF wie im UO_2 zu erreichen, fanden für die Ganzkernsimulationen Hohlpellets Verwendung. Es wurden vier Gleichgewichtskerne mit Plutoniumbrennstoff entworfen und mit einem existierenden UO_2 -Kern verglichen. Zwei der Pu-Kerne enthielten MOX- und zwei IMF-Brennstoff jeweils einmal mit Waffen¹⁷- und einmal mit Reaktor-Plutonium.

Die Borkonzentration liegt in den IMF-Kernen und dem MOX-Kern mit Waffen-Plutonium am Zyklusanfang bei rund 1200 ppm, wobei im MOX-Kern Gd-haltige Stäbe verwendet werden. Die Konzentration des Bors im Moderator des MOX-Kernes mit Reaktor-Plutonium liegt mit rund 1500 ppm etwas höher.

¹⁷Für Waffenplutonium wurde eine kleinere Plutoniumdichte im IMF verwendet

Die Plutoniumreduktion ist in beiden IMF-Kernen mit rund 140 kg pro $TW_e h$ 2.4 bis 3.3 mal so groß wie in den MOX-Kernen mit rund 58 kg pro $TW_e h$ beim Einsatz von Reaktor- und ca. 42 kg pro $TW_e h$ bei Waffen-Plutonium. Toxizitätsvergleiche zwischen dem Kern mit IMF-Reaktor-Plutonium und dem MOX-Kern zeigen, daß - bedingt durch den größeren Plutoniumabbau - die Radiotoxizität des abgebrannten IMFs nach z. B. 10^5 Jahren um rund einen Faktor 1.5 kleiner ist als die vom abgebrannten MOX-Brennstoff. In diesem Vergleich wurde auch der Abfall aus den UO_2 -Kernen, die das Plutonium für den MOX- bzw. IMF-Kern erbrütet haben, mit einbezogen. Der Vergleich zeigt ferner, daß der Einsatz plutoniumverbrennender Systeme, gegenüber der direkten Endlagerung von abgebranntem Brennstoff aus UO_2 -Kernen, das Gefährdungspotential dieser Abfälle verringert.

Die Leistungsverteilung in den IMF-Kernen ist am Anfang des Zyklus flacher als die in den UO_2 - oder MOX-Kernen. Auf Grund der starken Zunahme des thermischen Flusses mit dem Abbrand in den IMF-Zellen kommt es insbesondere im IMF-Kern mit Waffen-Plutonium zu einem Anstieg der nodalen und stabweisen Leistungsdichte. Im IMF-Kern mit Reaktor-Plutonium bleiben die Leistungsspitzen dagegen relativ konstant, während sowohl in den MOX-Kernen als auch in dem UO_2 -Kern die Leistungsspitzen mit dem Abbrand kleiner werden. Dabei sind die maximalen Stabileistungen im IMF-Kern mit Reaktor-Plutonium aber stets geringer als im UO_2 -Kern.

Auf Grund der weniger negativen Void- und Moderator Temperaturkoeffizienten in den IMF-Kernen sowie der Zunahme der Kontrollstabwirksamkeit mit dem Abbrand bei IMF-Brennstoffen sind die Abschaltmargen für den Übergang von heißer Vollastleistung zu heißer Nullastleistung in diesen Kernen günstiger als im UO_2 -Kern. Besonders in dem MOX-Kern mit Reaktor-Plutonium machen sich die betragsmäßig größeren Koeffizienten und die kleinere Stabwirksamkeit bei der Abschaltmarge bemerkbar. So wird am Ende des Zyklus in diesem Kern nicht ganz die geforderte Abschaltmarge von -1% erreicht. Auf Grund des größeren Anteils spaltbarer Nuklide im Waffen-Plutonium ist der Plutoniumanteil im Brennstoff des zweiten MOX-Kerns kleiner als im MOX-Kern mit Reaktor-Plutonium. Hieraus resultieren ein thermischeres Spektrum und damit größere Stabwerte. Dies führt im MOX-Kern mit Waffen-Plutonium zu gleich großen Abschaltmargen wie im UO_2 -Kern.

Für die in dieser Arbeit auf statischer Basis betrachteten Transienten eines Steuerstabauswurfs und eines Frischdampfleitungsbruchs ergibt sich ein ähnliches Bild. Zwar sind die kinetischen Parameter in den Plutonium-Kernen um die Hälfte kleiner als im UO_2 -Kern, dafür sind aber auch die Stabwerte in diesen Kernen nur halb so groß als im Vergleichskern

mit UO_2 -Brennstoff. Unter Berücksichtigung des Fahrsystems der Steuerstäbe des betrachteten Reaktors wird keiner der fünf Kerne durch den Auswurf des effektivsten Steuerstabes prompt kritisch.

Die Untersuchungen zum Frischdampfleitungsbruch ergeben ähnliche Ergebnisse, wie für den Übergang von heißer Vollastleistung zu heißer Nullastleistung. Nur im Fall des MOX-Kerns mit Reaktor-Plutonium ist es nicht möglich, den Kern allein durch das Einfahren der Kontrollstäbe bei einem Frischdampfleitungsbruch unterkritisch zu halten. Bei den IMF-Kernen, dem MOX-Kern mit Waffen-Plutonium und dem UO_2 -Kern läßt sich dagegen diese Transiente allein mit den Steuerstäben beherrschen.

Der Ersteinsatz eines Vollkerns mit IMF-Brennstoff ist kein realistisches Szenarium. Aus diesem Grunde wurden in einem weiteren Schritt dieser Arbeit IMF-Brennelemente für den Einsatz in einer UO_2 -Umgebung optimiert. Hierfür wurde die Plutoniumdichte in den Randstäben reduziert und die Dichte der abbrennbaren Neutronengifte in diesen Stäben erhöht, wobei in den vier Eckstäben zusätzlich Gadolinium eingesetzt wurde. Desweiteren wurde der Plutoniumgehalt in den restlichen Brennstäben heraufgesetzt und ein zusätzliches Wasserloch in der Mitte des Brennelements eingeführt. Diese optimierten IMF-Brennelemente sind anschließend in dem Referenzkern mit UO_2 -Brennstoff eingesetzt worden, ohne daß nennenswerte Leistungsspitzen in den Brennelementen mit IMF-Brennstoff aufgetreten sind. Somit erscheint es auch möglich, den IMF-Brennstoff als Teilbeladung, ähnlich wie MOX-Brennstoff, in UO_2 -Kernen einzusetzen. Mit Beladungen von 20 bis 25% IMF-Brennstoff ließe sich so schon eine Plutoniumreduktion in Mischkernen erzielen.

Alle Untersuchungen wurden mit dem LWR-Code-System ELCOS durchgeführt. Dieses Codesystem ist hauptsächlich für die Berechnung von Uran-Systemen verifiziert. Am Anfang dieser Arbeit lagen somit noch wenige Validierungsergebnisse für IMF vor.

Die relativ gute Übereinstimmung der Spektren von Kern 18 des experimentellen FDWR-PROTEUS-Programms und der untersuchten uranfreien Zellen läßt eine Übertragbarkeit der in Kern 18 gemessenen integralen Größen auf die IMF-Zelle zu. So lassen sich indirekt einige der Plutoniumreaktionsraten im frischen IMF an Hand der Vergleiche zwischen den rechnerischen und experimentellen Ergebnissen jenes Programms überprüfen.

Über die Berechnungsgenauigkeit von abbrennbaren Giften mit BOXER lagen bisher ebenfalls wenige Ergebnisse vor. So wurden im Rahmen dieser Arbeit Experimente am Forschungsreaktor CROCUS der EPFL durchgeführt, bei denen die Reaktivitätswerte verschiedener abbrennbarer Gifte im UO_2 -Kern dieser Anlage gemessen wurden. Alle

Meßergebnisse konnten im Rahmen der Meßgenauigkeit mit BOXER wiedergegeben werden. Insbesondere die gute Wiedergabe der Meßreihen mit Erbium, Europium und einer Mischung aus Erbium und Europium deuten darauf hin, daß mit BOXER nicht nur die Wirkung des Erbiums im IMF sondern auch der Einfluß des Plutoniums auf diesen Absorber richtig erfaßt wird. Bei diesen Meßreihen wurde Europium als Substitut für Plutonium verwendet, da Europium im thermischen Energiegebiet einen ähnlichen Einfluß auf Erbium wie Plutonium hat.

Alle diese Messungen geben allerdings nur Ergebnisse für kalte Bedingungen und für frischen Brennstoff wieder. Aus diesem Grund wurde mit BOXER an einem internationalen numerischen Benchmark zur Berechnung von uranfreien Brennstoffen teilgenommen. Die gute Übereinstimmung der meisten Resultate von BOXER mit den anderen Teilnehmern stärkt das Vertrauen in die im Rahmen dieser Arbeit erzielten Ergebnisse der Abbrandrechnungen. Allerdings zeigten sich größere Unterschiede bei der Berechnung des Übergangs von 0 zu 100 % Void. Diese Diskrepanzen sind zum größten Teil auf Unsicherheiten in den Daten von Zirkonium und Erbium im schnellen Energiebereich zurückzuführen. Es konnte gezeigt werden, daß der in dieser Arbeit verwendete Datensatz von genügend guter Qualität ist, und daß selbst unter pessimistischen Annahme der Voidkoeffizient für den Übergang von 0 zu 100 % Void eines IMF-Gleichgewichtskerns mit Reaktor-Plutonium immer negativ bleibt. Jedoch bedarf es noch weiterer Experimente, insbesondere für die verwendeten IMF-Brennstoffe, um der Validierung von BOXER für die Berechnung von uranfreien Brennstoffen eine genügend breite Basis zu geben.

Die erzielten Ergebnisse der Ganzkernrechnungen zeigen, daß mit uranfreien Brennstoffen eine effektive Reduktion von Plutonium in bestehenden DWR möglich ist. Auch scheint der Einsatz von IMF-Vollkernen gegenüber MOX-Vollkernen gewisse sicherheitstechnische Vorteile zu bieten. Insofern könnte IMF-Brennstoff zur Regulierung der heute vorkommenden großen Mengen an Plutonium wesentlich wirksamer als MOX sein. Wird allerdings von einer langfristigen CO₂-freien Energieversorgung mit Kernenergie ausgegangen, so ist MOX vor allem in Zusammenhang mit schnellen Brutreaktoren ein notwendiger Brennstoff um den Brennstoffkreislauf effektiv zu schließen und damit eine bessere Uranausnutzung zu erzielen. Kurz- und mittelfristig bleibt jedoch die Reduktion von überschüssigem Plutonium und die damit verbundene Verkleinerung des Risikopotentials, wie etwa Toxizitäts- und Proliferationsrisiken, eine wichtige Anforderung an die Kerntechnik. Der Einsatz uranfreier Pu-Brennstoffe in bestehenden LWR kann hierzu einen wichtigen Beitrag liefern.

9 Ausblick

Die hier durchgeführte Beladepplan-Optimierung basiert, wie heute noch weitgehend üblich, auf der Erfahrung und der Intuition der jeweiligen Bearbeiter. Durch numerische Optimierungen wäre es eventuell möglich, Kernkonfigurationen mit uranfremen Brennstoffen zu entwickeln, mit denen mehr Plutonium abgebaut und größere Sicherheitsmargen realisiert werden könnten.

Die analytischen Untersuchungen dieser Arbeit wurden für stationäre Reaktorzustände durchgeführt. Um endgültig beurteilen zu können, ob IMF-Kerne in LWR einsetzbar sind, müssen noch neben einer Reihe von Experimenten detaillierte Sicherheitsuntersuchungen mit Hilfe von Transienten-Codes durchgeführt werden. Folgende Parameter des hier verwendeten IMF-Brennstoffs sollten dabei im Vordergrund stehen:

- Die niedrige Wärmeleitfähigkeit und die damit verbundenen hohen Brennstofftemperaturen,
- der gegenüber UO_2 -Brennstoff positivere Doppler- bzw. Brennstofftemperaturkoeffizient und
- die kleinen kinetischen Parameter.

In einem ersten Schritt wären die Transienten zu identifizieren, die zu einem prompt kritischen Zustand in einem IMF-Kern führen könnten. Für die Berechnung dieser Transienten wäre ein Modell für die Ermittlung der Brennstofftemperatur der IMF-Brennstoffe zu entwickeln. Um hier einen ersten Eindruck über die Abbrandabhängigkeit der Wärmeleitfähigkeit zu bekommen, könnten IMF-Proben mit geringerem Plutoniumgehalt und einer chemisch repräsentativen Mischung der beim Abbrand entstehenden Actiniden und Spaltprodukte erstellt werden. Von diesen Proben könnte dann an Stelle von IMF mit Abbrand, die Wärmeleitfähigkeit gemessen werden. Somit ließen sich mit relativ geringem Aufwand quasi abbrandabhängige Daten zur Berechnung der Brennstofftemperatur erstellen und damit als kritisch identifizierte Transienten nachrechnen.

Ein erstes Bestrahlungsexperiment, bei dem der hier entwickelten uranfrem Brennstoff eingesetzt werden soll, ist im Forschungsreaktor in Halden¹⁸ geplant. Innerhalb dieses Experiments werden die Zentraltemperatur sowie die Spaltgasfreisetzung in Abhängigkeit von Abbrand und Stabileistung gemessen. Verglichen werden Brennstoffe aus MOX und IMF unterschiedlicher Herstellung. Hiermit werden erste experimentelle Ergebnisse zum Bestrahlungs- und Temperaturverhalten des neuen Brennstoffs bereitgestellt werden.

¹⁸Schwerwassermoderierter Siedewasserreaktor mit Naturumlauf in Halden, Norwegen

Literatur

- [1] —
Kernkraftwerke 1995: Weltübersicht,
Atomwirtschaft-Atomtechnik 3/96, S. 209-221, 1996
- [2] Tillessen U.:
Im pazifischen Asien dynamische Kernenergieentwicklung,
Atomwirtschaft-Atomtechnik 7/96, S. 463-467, 1996
- [3] Graul, H.:
Recent Developments in World Uranium Supply and Demand,
Nuclear Europe Worldscan, Vol. XVII, Nr. 3-4, S. 28-29, 1997
- [4] Barral, J.C.:
Plutonium Recycling in PWR;
Operating Experience with MOX Fuel by EDF,
Vortrag im Rahmen der Frédéric Joliot Summer School, 1996
- [5] Eidgenössische Energieforschungskommission CORE:
Konzept der Energieforschung des Bundes 1996 - 1999,
Bundesamt für Energieforschung, Oktober 1995
- [6] Albright, D. u.a.:
World Inventory of Plutonium and Highly Enriched Uranium, 1992
Oxford University Press, 1993
- [7] Statistics SDT/92/10:
Utilization of Military Materials Originating from Disarmament,
Uranium Institute, London, 1992
- [8] —
Management and Disposition of Excess Weapons Plutonium
Committee on International Security and Arms Control,
National Academy of Sciences,
National Academy Press, Washington, D.C.; 1996
- [9] Burtak, F.:
Friedliche Verwertung von Plutonium aus Kernwaffen,
Atomwirtschaft-Atomtechnik 6/96, S. 396-400, 1996

- [10] Naughton, W.F.:
Disposition of Weapon-Grade Plutonium in Commercial Light-Water Reactors,
Nuclear News, S. 24-26, 1996
- [11] Phlippen, P.W.; Lypsch, F.; Lizana, P.; Rütten, H.J.:
Gefährdungspotential radioaktiver Abfälle;
Auswirkungen der Entwicklung der ICRP-Richtlinien auf die Bewertung,
Atomwirtschaft-Atomtechnik 6/95, S. 384-389, 1995
- [12] Giraud, J.-P.; Devezeaux de Lavergne, J.-G.:
Kostenvorteile durch Wiederaufarbeitung,
Atomwirtschaft-Atomtechnik 5/97, S. 303-306, 1997
- [13] Bergeron, J.; Lenain, R.; Loubiere, S.:
100% Plutonium Recycling Feasibility in a 900 MWe PWR Core,
Proc. Int. Conf. on Physics of Reactors, PHYSOR'90, Marseille, 1990
- [14] Saphier, D.; Nisan, S.; Raymond, P.:
Increasing the Moderating Ratio for Plutonium Burning in PWR,
Proc.; 18th INS Meeting, Tel-Aviv, 1994
- [15] Saphier, D.; Raymond, P.:
Optimal Thermal-Hydraulic Design for the Highly Moderated MOX Fueled PWR,
Proc.; 18th INS Meeting, Tel-Aviv, 1994
- [16] Yoriyaz, H.; Grimm, P.:
A First Study for a 100% MOX BEZNAU-II Core,
Technische Mitteilung, TM-41-94-09, PSI, 1994
- [17] Oldekop, W.:
Einführung in die Kernreaktor- und Kernkraftwerkstechnik -
Teil II, Wärmetechnik - Werkstoffe - Sicherheit - Reaktortypen
Verlag Karl Thiemig, München, 1975
- [18] Paratte, J.M.; Foskolos, K.; Grimm, P.; Maeder, C.:
Das PSI-Codesystem ELCOS zur stationären Berechnung von Leichtwasserreaktoren,
Proc. Jahrestagung Kerntechnik'88, Travemünde, 1988
- [19] Wydler, P.:
Studien zur Uranausnutzung in verschiedenen Reaktorsystemen,
Persönliche Mitteilung, 1997

- [20] Stanculescu, A.; Garnier, J.C.; Rouault, J.; Kiefhaber, E.; Sunderland, R.:
Plutonium Burning and Minor Actinides Transmutation in Fast Reactors:
First Results Obtained Within the Frame of the CAPRA Programme,
Proc. Int. ENS Nuclear Congress ENC'94, Lyon, 1994
- [21] Kadi, Y.; Wydler, P.; Caro, M.; Pelloni, S.; Ahmed, S.:
A Study for the Transmutation Performance of Externally Driven
Sub-Critical Assemblies,
Proc. Int. Conf. on Future Nuclear Systems GLOBAL'93, Seattle, 1993
- [22] Bevilacqua, F.:
System 80 NSSS Combines Proven and New Features,
Nuclear Engineering International, 22 (265), S. 39-44, 1977
- [23] Grimm, P.:
Full MOX Core Capability in System 80TM Reactors:
A Literature Study and Control Rod Worth Estimates,
Technische Mitteilung, TM-41-94-25, PSI, 1994
- [24] Schlosser, G.J.; Bender, D.:
Plutoniumrückführung in Druck- und Siedewasserreaktoren;
Fortschrittliche MOX-BE-Auslegung,
Atomwirtschaft-Atomtechnik 3/95, S. 170-173, 1995
- [25] Schlosser, G.J.; Bender, D.:
Advances in MOX Fuel Design for PWRs and BWRs,
Proc. TOPFUEL'95, Würzburg, 1995
- [26] Schlosser, G.J.; Krebs, W-D.; Urban, P.:
Experience in PWR and BWR Mixed-Oxide Fuel Management,
Nucl. Technol. 102 S. 54, 1993
- [27] Stoll, W.:
Ziel und Umsetzung der Entsorgung von Brennelementen,
Atomwirtschaft-Atomtechnik 2/94, S. 128-135, 1994
- [28] Michaelis, H.; Salander, C.:
Handbuch Kerntechnik;
Kompendium der Energiewirtschaft und der Energiepolitik
Verlags- und Wirtschaftsgesellschaft der Elektrizitätswerke m.b.H.;
ISBN 3-8022-0426-3, 1995

- [29] Akie, H.; Muromura, T.; Takano, H.; Matsuura, S.:
A New Concept of Once-Through Burning for Nuclear Warheads Plutonium,
Proc. Int. Conf. Emerging Nuclear Systems, ICENES'93, Makuhari, Japan, 1993
- [30] Akie, H.; Muromura, T.; Takano, H.; Matsuura, S.:
A New Fuel Material for Once-Through Weapons Plutonium Burning,
Nuclear Technology, 107, S. 182, 1994
- [31] Muromura, T.; Nitani, N.; Akie, H.; Takano, H.:
Plutonium Rock-Like Fuel Integrated R&D,
IAEA Technical Committee Meeting on: " Unconventional Options for
Plutonium Disposition", Obninsk, 1994
- [32] Akie, H.; Nitani, N.; Muromura, T.; Ohmichi, T.:
Plutonium Burning of Inert Matrix Fuel with Rock-Like Structure in LWR,
Proc. Int. Conf. on Evaluation of Emerging Nuclear Fuel Cycle Systems,
GLOBAL'95, Versailles, 1995
- [33] Lombardi, C.; Mazzola, A.:
Plutonium Burning via Thermal Fission in Unconventional Matrices,
IAEA Technical Committee Meeting on: " Unconventional Options for
Plutonium Disposition", Obninsk, 1994
- [34] Lombardi, C.; Mazzola, A.:
Plutonium Annihilation in PWRs via Non-Fertile Inert Matrices,
Proc. Int. Conf. on Evaluation of Emerging Nuclear Fuel Cycle Systems,
GLOBAL'95, Versailles, 1995
- [35] Chodak, P.:
Destruction of Plutonium using Non-uranium Fuels in
Pressurized Water Reactor Peripheral Assemblies,
Dissertation, Dept. of Nucl. Engineering, MIT, 1996
- [36] Puill, A.; Bergeron, J.:
Improved Plutonium Consumption in a Pressurized Water Reactor,
Proc. Int. Conf. on Evaluation of Emerging Nuclear Fuel Cycle Systems,
GLOBAL'95, Versailles, 1995
- [37] Knott, D.; Forssén, B.H.; Edenius, M.:
CASMO-4: A Fuel Assembly Burnup Program - Methodology,
Studsvik/SOA-95/2, 1996

- [38] Smith, K.:
Modern Reactor Core Design Codes and Comparison to Measured Data,
Proc. Math. Methods and Supercomputing in Nuclear Applications,
Vol.1, S. 479, Karlsruhe, Deutschland, 1993
- [39] Paratte, J.M.; Foskolos, K.; Grimm, P.; Hollard, J.M.:
ELCOS: The PSI Code System for LWR Core Analysis;
Part I: User's Manual for the Library Prerparation Code ETOBOX
PSI Bericht Nr. 96-02, 1996
- [40] Kinsey, R.:
Data Formats and Procedures for the Evaluated Nuclear Data File, ENDF/B-V,
BNL 50496, ENDF-102, Brookhaven National Laboratory, 1979
- [41] Paratte, J.M.; Grimm, P.; Hollard, J.M.:
ELCOS: The PSI Code System for LWR Core Analysis;
Part II: User's Manual for the Assembly Code BOXER,
PSI Bericht Nr. 96-08, 1996
- [42] Grimm, P.; Maeder, C.; Paratte, J.M.:
CORCOD User's Manual,
Technische Mitteilung, TM-41-91-22, PSI, 1991
- [43] Maeder, C.; Foskolos, K.; Grimm, P.; Paratte, J.M.:
Benützeranleitung des Leichtwasserreaktor-Simulationscodes SILWER,
Technische Mitteilung, TM-45-82-55, PSI, 1982
- [44] Rose, P.F.; Dunford, C.L.:
ENDF-102, Data Formats and Procedures for the Evaluated Nuclear Data File,
ENDF/B-6, BNL-NCS-44945, 1990
- [45] —
Data Formats and Procedures for the Evaluated Nuclear Data File ENDF,
National Nuclear Data Center, BNL-NCS-50496, ENDF-102, 1975
- [46] Rowlands, J.; Tubbs, N.:
The Joint Evaluated File: A New Data Resource for Reactor Calculations,
Proc. Int. Conf. on Nuclear Data for Basic and Applied Science, Santa Fe, 1985

- [47] Kikuchi, Y.; u.a.:
Present Status and Benchmark Test of JENDL-2,
Proc. Int. Conf. on Nucl. Data for Science and Technology, S. 695, Antwerpen, 1982
- [48] Blokhin, A.I.; Fursov, B.I.; Ignatyuk, A.V.; Koshcheev, V.N.;
Kulikov, E.V.; Kuzminov, B.D.; Manokhin, V.N.; Nikolaev, M.N.:
Current Status of Russian Evaluated Neutron Data Libraries
(Files BROND-2, FOND and ABBN-90)
Proc. Int. Conf. on Nucl. Data for Science and Technology,
Vol. 2, S. 695, Gatlinburg, 1994
- [49] MacFarlane, R.E.; Muir, D.W. Boicourt, R.M.:
The NJOY Nuclear Data Processing System,
Volumes I-IV, LA-9303-M, ENDF-324, 1982
- [50] Drake, M.K.:
Data Formats and Procedures for the ENDF Neutron Cross Section Library,
BNL 50274, ENDF-102, Brookhaven National Laboratory, 1970
- [51] Emendörfer, D.; Höcker, K.H.:
Theorie der Kernreaktoren;
Band1: Der stationäre Reaktor,
Bibliographisches Institut, Mannheim, 1982
- [52] Paratte, J.M.:
Elargissement Doppler des Résonances Résolues en ETOBOX,
EIR-Bericht Nr. 552, 1985
- [53] Paratte, J.M.:
Interpolation des sections efficaces moyennes des résonances non résolues,
Technische Mitteilung, TM-45-84-38, PSI, 1984
- [54] Paratte, J.M.:
Calcul du Spectre Fin et Intégration des Sections Efficaces de Résonance dans les
Cellules,
EIR-Bericht Nr. 602, 1986
- [55] Paratte, J.M.:
Amélioration de la convergence du programme bidimensionnel CODIFF,
Technische Mitteilung, TM-PII-795, PSI, 1979

- [56] Maeder, C.:
QP1, a Transport Programm in X-Y Geometry Based on Function Expansions
in Angle and Space,
EIR-Bericht Nr. 290, 1975
- [57] Maeder, C.:
Neue Abbrand- und Homogenisierungsmodelle in BOXER,
Technische Mitteilung, TM-45-80-26, PSI, 1980
- [58] Askew, J.R.; Fayers, F.J.; Kemshell, P.B.:
A General Description of the Lattice Code WIMS,
J. Brit.Nucl.Energy Soc.; 5, S. 564, 1966
- [59] Bondarenko, I.I.:
Group Constants for Nuclear Reactor Calculations,
Consultants Bureau, New York, 1964
- [60] Berger, H.D.:
Neutronenphysikalische Untersuchungen zu einem
Fortgeschrittenen Druckwasserreaktor mit hoher Konversion,
Dissertation, TU Braunschweig, IfRR, 1984
- [61] Paratte, J.M.:
Calcul du burnup dans le code de boîtes BOXER: Théorie du module TIMESTEP,
Technische Mitteilung, TM-PH-635 , PSI, 1977
- [62] Grimm, P.:
Abbrandrechnung mit dichteabhängigen Wirkungsquerschnitten in BOXER,
Technische Mitteilung, TM-45-81-45, PSI, 1981
- [63] Oldekop, W.:
Einführung in die Kernreaktor- und Kernkraftwerkstechnik, Teil I,
Verlag Karl Thiemig, München, 1975
- [64] Axmann, J.K.:
Validierung des DITUBS-Programmsystems zur neutronenphysikalischen Berech-
nung hochkonvertierender DWR auf Basis der PROTEUS-Phase-II-Experimente,
Dissertation, TU Braunschweig, IfRR, 1992

- [65] Davierwalla, D.M.:
REGSTEP - Stepwise Multivariate Polynomial Regression with Singular Extensions,
EIR-Bericht Nr. 333, 1977
- [66] Maeder, C.; Varadi, G.:
Thermische Betriebs- und Sicherheitsgrenzen für Leichtwasserreaktoren,
Technische Mitteilung, TM-45-83-15, PSI, 1983
- [67] Maeder, C.:
A Nodal Diffusion Method with Legendre Polynomials,
Topical Mtg. on "Advances in Reactor Physics",
CONF 780401, S. 121, Gatlinburg, 1978
- [68] Makai, M.; Maeder, C.:
SEXI - A Fast Diffusion Program Based on Exponential
and Trigonometric Interpolation,
EIR-Bericht Nr. 401, 1980
- [69] Makai, M.; Maeder, C.:
A Fast Nodal Neutron Diffusion Method for Cartesian Geometry,
Nuclear Science and Engineering 84, S. 390, 1983
- [70] Foskolos, K.; Güntay, S.; Varadi, G.:
Die Core-Thermohydraulik-Moduln des LWR-Simulationscodes SILWER,
EIR-Bericht Nr. 442, 1982
- [71] P. Grimm, M. Aboudy, A. Galperin, M. Segev:
A Test of Main Stream Pin Power Reconstruction Methods,
Nuclear Science and Engineering Vol. 122, S. 395, 1996
- [72] Grimm, P.; Paratte, J.M.:
PWR Core Follow Calculations using the ELCOS Code System,
Proc. Int. Conf. Physics of Reactors:
"Operation, Design and Computation", Marseille, 1990
- [73] Paratte, J.M.; Chawla, R.:
On the Physics Feasibility of LWR Plutonium Fuels without Uranium,
Ann. Nucl. Energy Vol 22, No.7, S. 471-481, 1995

- [74] Y. Kikuchi u. a.:
Present Status and Benchmark Tests of JENDL-2,
Proc. Int. Conf. on Nuclear Data for Science and Technology,
Antwerpen, Belgium, S. 615, 1982
- [75] Bouchard, J.:
Influence des Stratégies du Cycle du Combustible
sur le Choix des Réacteurs de Nouvelle Génération,
Proc. Int. ENS Topical Mtg. on Next Generation LWRs,
TOPNUX'93, La Hague, 1993
- [76] Kasemeyer, U.; Paratte, J.M.; Chawla, R.:
Reactor Physics Characteristics of Possible Fuel Materials for Plutonium-
Incinerating LWRs,
IAEA Tech. Committee Meeting. on: " Unconventional Options for
Plutonium Disposition", Obninsk, 1994
- [77] Kasemeyer, U.; Paratte, J.M.; Grimm, P.; Chawla, R.:
Comparison of PWR Core Characteristics for 100% Pu-containing Loadings,
Zur Veröffentlichung an Nuclear Technology gesendet, November 1996
- [78] Degueldre, C.; Kasemeyer U.; Botta, F.:
Study of Plutonium Incineration in LWRs Employing a Uranium Free Fuel
'Inert Matrix - Burnable Poison - Actinide' Approach,
Technische Mitteilung, TM-43-95-12, PSI, 1995
- [79] Degueldre, C.; Kasemeyer U.; Botta, F.; Ledergerber G.:
Plutonium Incineration in LWRs by a Once-Through Cycle with a Rock-Like Fuel,
Materials Research Society Symp. Proc. Vol. 412, S. 15-23, 1996
- [80] Weast R.C.:
CRC Handbook of Chemistry and Physics,
Chemical Rubber Publishing Company, 1981
- [81] —
Gmelin; Handbuch der anorganischen Chemie,
Springer Verlag, Berlin, 1974
- [82] Holleman, A.F.; Wiberg, E.:
Holleman-Wiberg Lehrbuch der anorganischen Chemie,
Walter de Gruyter & Co, Berlin 1976

- [83] Touloukian, Y.; Powell, R.W.; Ho, C.Y. Klemens P.G.:
Thermophysical Properties of Matter;
The TPRC Data Series, Vol 2, IFI, Plenum, New York, 1970
- [84] Touloukian, Y.; Liley, P.; Saxena, S.:
Thermophysical Properties of Matter;
Thermal Expansion, Vol 3, IFI, Plenum, New York, 1977
- [85] Touloukian, Y.; Kirby, R.; Taylor, R.; Lee, T.:
Thermophysical Properties of Matter;
Thermal Expansion, Vol 13, IFI, Plenum, New York, 1977
- [86] Ikegami, T.; Koizumi, M.:
Plutonium Fuel without Uranium,
PNC, Oarai Engineering Center, Japan, 1994
- [87] Berman, R.; Bleiberg, M.; Yenscavich W.:
Fission Fragment Damage to Crystal Structures,
J. Nucl. Mat. 2, S. 129 - 140, 1960
- [88] Yokokawa, H.; Sakai, N.; Kawada, T.; Dokiya, M.;
Phase Diagram Calculations for ZrO₂ Based Ceramics;
Thermodynamic Regularities in Zirconate and Solubilities
of Transition Metal Oxides,
J. Austral. Ceram. Soc. 28(1) S. 1-94, 1992
- [89] Ledergerber, G.; Degueldre, C.; Kasemeyer, U.; Stanculescu, A.;
Paratte, J.M.; Chawla, R.:
Using Civilian Plutonium in LWRs with an Inert Matrix Fuel (IMF),
Proc. Int. Conf. on Future Nuclear Systems GLOBAL'97, Yokohama, 1997
- [90] Pietsch, E.; u. a.:
Gmelins Handbuch der anorganischen Chemie, achte Auflage
Verlag Chemie, GmbH, Weinheim/Bergstraße, 1958
- [91] Kasemeyer, U.; Chawla, R.; Grimm, P.; Paratte, J.M.:
Conceptual Study for a PWR Core Employing Uranium-Free Plutonium Fuel,
Proc. Int. Conf. on Evaluation of Emerging Nuclear Fuel Cycle Systems,
GLOBAL'95, Versailles, 1995

- [92] Holzgrewe, F.; Kallfelz, J.M.; Zimmermann, M.A.; Maeder, C.; Schmocker, U.:
Investigations Related to Increased Safety Requirements for
Reactivity Initiated Accidents,
Proc. CSNI Specialist Meeting on Transient Behaviour of
High Burnup Fuel, S. 335, Cadarache, 1995
- [93] Beitz, W.; Küttner, K.-H.:
DUBBEL, Taschenbuch für den Maschinenbau,
15. Auflage, Springer-Verlag, Berlin, 1983
- [94] Touloukian, Y.; Ho, C.Y.; Bayco, E.H.:
Thermophysical Properties of Matter;
The TPRC Data Series, Vol 5, IFI, Plenum, New York, 1970
- [95] Stumm, W.; Morgan, J.:
Aquatic Chemistry,
J. Wiley & Sons, New York, 1981
- [96] Wesolowski, D.; Palmer, D.:
Aluminium Speciation and Equilibria in Aqueous Solution:
V. Gibbsite solubility at 50°C and pH 3-9 in 0.1 molal NaCl solutions
(a general model for aluminium speciation; analytical methods),
Geochim. Cosmochim. Acta 58 (14) 2947-2969, 1994
- [97] Adair, J.; Denkwicz, R.; Arriagada, F.:
Precipitation and in-situ transformation in the hydrothermal
synthesis of crystalline zirconia dioxide.
In Messing et al:
Ceramic transactions, Vol. 1,
Ceramic Powder Sciences II, Part A, S. 135 - 145, 1988
- [98] Paratte, J.M.; Kasemeyer, U.; Grimm, P.; Degueldre, C.; Chawla, R.:
Characteristics of Plutonium Burning MOX and Uranium-Free PWRs,
Proc. Workshop on Advanced Fuel Cycles, PSI Villigen, 1995
- [99] Rudneva, .V.; Kagramanian, V.; Murogov, V.; Poplavski, V.; Chaudat, J.P.;
Faure, C.; Grouiller, J.P.; Zaetta, A.; Sicard, B.:
The "AIDA MOX" Program: Strategic Approaches to Plutonium Utilization
Proc. Int. Conf. on Evaluation of Emerging Nuclear Fuel Cycle Systems,
GLOBAL'95, Versailles, 1995

- [100] Axmann, J.K.; Bolloni, H.-W.; Van de Velde, A.; Berger, H.-D.; Maar, H.-U.:
Results of the PRIMO System on the Basis of Evolutionary Algorithms with
Heuristics for Nuclear Fuel Management Optimizations,
Kerntechnik, Vol. 62, Nr. 1, Carl Hanser Verlag, München, 1997
- [101] Kasemeyer, U.:
Entwicklung von parallelisierbaren Evolutionsalgorithmen zur Optimierung
von Wiedereintrittsbahnen geflügelter Raumtransporter,
Diplomarbeit R 9214, TU Braunschweig, IfRR, 1992
- [102] —
Annual Limits on Intake of Radionuclides by Workers
Based on the 1990 Recommendations,
ICRP-Publication 61, Annals of the ICRP 22, No. 4, 1991
- [103] —
Limits for the Intake of Radionuclides by Workers,
ICRP-Publication 30 Part 4, An Addendum, Annals of the ICRP 19 (4), 1988
- [104] Ankney R. D.; Biswas D.:
Weapons Grade Plutonium Disposition in Existing Westinghouse PWRs,
Trans. Am. Nucl. Soc., Vol. 71, S. 488, 1994
- [105] Urban, P.; Bender, D.; Schlosser, G.:
Siemens - Competency in Design and Delivery of MOX Fuel Assemblies,
The Nuclear Engineer, Vol. 37, Nr. 6, 1996
- [106] Pelloni, S.; Grimm, P.; Mathews, D.R.; Paratte, J.M.:
Validation of Light Water Reactor Calculation Methods and
JEF-1 Based Data Libraries by TRX and BAPL Critical Experiments,
Nuclear Technology, Vol. 94, S. 15-27, 1991
- [107] Chawla, R.; Böhme, R.; Alfonso, J.; Axmann, J.K.; Berger, H.-D.,
Hager, H.; Pelloni, S.; Seiler, R.; Williams, T.:
Analysis of PROTEUS Phase II experiments in Support of Light Water
High Conversion Reactor Design,
Kerntechnik 57 S. 14, Carl Hanser Verlag, München, 1992

- [108] Berger, H.-D.; Böhme, R.; Chawla, R.; Hager, H.; Köberl, O.; Seiler, R.; Williams, T.:
Dokumentation der PROTEUS-FDWR Phase II-Experimente,
Technische Mitteilung, TM-41-93-05, PSI, 1993
- [109] Yoriyaz, H.; Grimm, P.:
Recalculation of BEZNAU-II 16th Cycle Using ELCOS,
Technische Mitteilung, TM-41-94-06, PSI, 1994
- [110] Böhme, R.; Berger, H.-D.; Chawla, R.; Hager, H.; Seiler, R.; Williams, T.:
Void Coefficient Analysis of an LWR Lattice Experiment with
High-Enrichment MOX Fuel,
Nuclear Engineering and Design 168, S. 271 - 279, 1997
- [111] Böhme, R.; Berger, H.-D.; Chawla, R.; Hager, H.; Seiler, R.; Williams, T.:
Neutron Balance Investigations for a High Enrichment
MOX-LWR Lattice under Normal and Voided Conditions,
Proc. Int. Conf. on Reactor Physics and Reactor Computations, Tel Aviv, 1994
- [112] Lehmann, S.:
Analyse der Genauigkeit neutronenphysikalischer Rechenprogramme beim Einsatz
von Mischoxid-Brennstoffen in Kernreaktoren anhand experimenteller und
rechnerischer Vergleichsdaten,
Dissertation, TU Braunschweig, IfRR, 1996
- [113] Halsall, M.J.:
A Summary of WIMSD4 Input Options,
Rep., AEEW-M 1327, UKAEA, 1980
- [114] Böhme, R.; Fischer, E.A.:
The Fast Reaktor Cell Code KAPER4,
Rep., KFK 4435, Kernforschungszentrum Karlsruhe, 1988
- [115] Briesmeister, J.F. (Ed.):
MCNP - A General Monte Carlo N-Particle Transport Code Version 4A,
Los Alamos National Laboratory LA-12625-M, Los Alamos, 1993
- [116] Berger, H.D.:
Erstellung eines BASIC-Programms zur Berechnung der energetischen
Neutronenverteilung in Leichtwasserreaktoren,
Diplomarbeit K7812 am IfRR, TU Braunschweig, 1978

- [117] —
Physics of Plutonium Recycling,
Vol.I, Issues and Perspectives
NEA, OECD, 1995
- [118] —
Physics of Plutonium Recycling,
Vol.II, Plutonium Recycling in Pressurized-Water Reactors
NEA, OECD, 1995
- [119] Pralong, Ch.:
Etude de réactivité sur le réacteur CROCUS pour différentes
concentrations de poisons consommables dans une matrice inerte,
Diplôme d'ingénieure physicienne, EPFL, 1997
- [120] —
Betriebsanleitung Schüttelmischer
TURBULA® *SYSTEMSCHATZ* TYP T2 C,
W.A. Bachofen AG, Basel, 1995
- [121] Heimgartner, P.:
Pellet-Presser Meyer CAUO 10 PMC 30,
Standort: HL, Labor 212b,
Technische Mitteilung, TM-43-95-43, PSI, 1995
- [122] Pelloni, S.:
Mitteilungen über in JEFF-3 verwendete Querschnittsdaten,
Persönliche Mitteilung, 1997
- [123] Paratte, J.M.; Akie, H.; Chawla, R.; Delpech, M.;
Kasemeyer, U.; Kloosterman, J.L.; Konings, R.; Lombardi, C.;
Mazzola, A.; Takano, H.:
Benchmark Comparison of Calculations of LWR Fuel Cells
with Uranium-Free Fuels,
Proc. Int. Conf. on Future Nuclear Systems GLOBAL'97, Yokohama, 1997
- [124] Halsall, M.J.; Taubman, C.J.:
The '1986' WIMS Nuclear Data Library,
AEEW-R 2133, Reactor Physics Division, AEE Winfrith, 1986

- [125] Story, J.S. u. a.:
Evaluation, Storage and Processing of Nuclear Data for Reactor Calculations,
3rd Geneva Conference on Peaceful Uses of Atomic Energy, S. 168, 1964
- [126] Mathews D. R.; Koch P.:
MICROX-2. An Improved Two-Region Flux Spectrum Code for the Efficient Calculation of Group Cross Sections,
GA-A15009, Vol.1, UC-77, 1979
- [127] Pelloni, S.; Kasemeyer, U.; Paratte, J.M.:
Impact of Methods and Nuclear Data on Physics Aspects of Uranium-Free Cells,
Technische Mitteilung, TM-41-97-15, PSI, 1997
- [128] Seelmann-Eggebert, W.; Pfennig, G.; Münzel, H.; Klewe-Nebenius, H.:
Karlsruher Nuklidkarte, 5. Auflage
Gersbach und Sohn Verlag, München, 1981

A Danksagung

Die vorliegende Arbeit entstand während meiner Tätigkeit am Paul Scherrer Institut (PSI) in Würenlingen mit Unterstützung des UAK der Überlandwerke.

Ich bedanke mich ganz herzlich bei allen, die zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen haben.

Insbesondere bedanke ich mich für die Unterstützung bei folgenden Personen:

- Prof. Dr. R. Chawla, der diese Arbeit angeregt, ihre Entstehung mit Interesse verfolgt und durch zahlreiche Diskussionen gefördert hat;
- J.M. Paratte, der durch viele fruchtbare Diskussionen, Anregungen und durch sein kollegiales Verhalten zum Gelingen der Arbeit sowie zu einem guten Arbeitsklima wesentlich beigetragen hat;
- P. Grimm und Dr. S. Pelloni, die mich mit Engagement unterstützt und somit auch maßgeblich zum Projekt „Fortgeschrittene Brennstoffzyklen“ (AFC), in dem meine Arbeit eingebettet war, beigetragen haben;
- Dr. A. Stanculescu und G. Ledergerber, als Projektleiter von AFC, und PD Dr. C. Degueudre, die mit dazu beigetragen haben, daß diese Arbeit in einem interdisziplinären Umfeld durchgeführt werden konnte;
- M. Zimmermann, der durch viele Diskussionen für eine bessere Einbettung der Sicherheits- und Transientenbetrachtungen in die Arbeit beitrug; zudem für seinen unermüdlichen Einsatz für eine gute Ausstattung mit Hardware, ohne die viele Probleme gar nicht berechenbar gewesen wären;
- P. Jacquemoud, der durch seinen Einsatz stets für einen reibungslosen Betrieb der Rechenanlagen gesorgt hat;
- P. Heimgartner, der mich in die Herstellung der Pellets für die CROCUS-Experimente eingeführt und mich dabei tatkräftig unterstützt hat;
- Frau C. Pralong und R. Früh für die Durchführung der CROCUS-Experimente;
- PD Dr. J. K. Axmann, Frau D. Burkhardt und Dr. A. Stanculescu für das Korrekturlesen der Arbeit.

Ebenfalls danke ich den Herren Prof. Dr. K. Kern, Dr. C. Maeder, Prof. Dr. W. Oldekop, J.M. Paratte und Prof. Dr. G. Sarlos für das Korreferat.

B Lebenslauf

Persönliche Daten

Name : Kasemeyer
 Vorname : Uwe
 Straße : Fröhlichstraße 33
 PLZ/Wohnort: 5200 Brugg
 Geburtsdatum : 08.08.1962
 Geburtsort : Gießen
 Familienstand : ledig

Schulbildung

1969 - 1973 Grundsule Burgsteinfurt
 1973 - 1974 Gymnasium Burgsteinfurt
 1974 - 1980 Private Realschule Laasphe
 1980 - 1983 Gymnasium Holzminden

Studium

1983-1992 Maschinenbaustudium,
 Technische Universität Braunschweig
 07.05.92 Diplom, Diplom-Note: gut

Praktikum

1983 Günter Rüger,
 Spezialmaschinenbau, Holzminden
 1991 Paul-Scherrer-Institut
 Würenlingen, Schweiz:
 Auswertung und Fehleranalyse von Meßergebnissen
 im Forschungsreaktor PROTEUS sowie die Zusammen-
 stellung der erhaltenen Ergebnisse.

Berufliche Tätigkeiten

- 1987-1991 Wissenschaftliche Hilfskraft am
Institut für Raumflug- und Reaktortechnik sowie am
Institut für Allgemeine Mechanik und Festigkeitslehre:
Entwicklung und Implementierung von Programmen
auf der IBM 3090-600J der TU Braunschweig und
auf der CRAY X-MP der TU Berlin.
- 1992-1993 Wissenschaftliche Hilfskraft mit Diplom am
Institut für Raumflug- und Reaktortechnik und
am Rechenzentrum der TU Braunschweig:
Implementierung der PVM-Version 2.4.1 auf Work-
stations HP9000/400 und HP9000/700 sowie die Ent-
wicklung paralleler Bildverarbeitungsverfahren
für Echtzeit-Animationen.
Optimierung von Satelliten-Konstellationen für
LEO-Kommunikationssysteme durch parallelisierte
Evolutionsalgorithmen unter Verwendung von PVM.
Portierung von Programmen von der IBM 3090-600J
auf HP-Workstation sowie deren Parallelisierung
auf Workstation-Clustern mittels PVM.
- 1993 Wissenschaftlicher Mitarbeiter am regionalen Rechen-
zentrum für Niedersachsen, Universität Hannover:
Implementierung und Einführung von PVM auf den
SUN-Workstation-Clustern des RRZN sowie Test und
Inbetriebnahme einer KSR-1 mit 16 Rechenknoten.
- seit Dez. 1993 Wissenschaftlicher Mitarbeiter am Paul Scherrer Institut:
Dissertation über die Konzeption eines uranfreien
LWR-Kernes zur Plutoniumverbrennung
Entwicklung eines uranfreien Pu-Brennstoffes zur effizienten
Plutoniumverbrennung. Der Brennstoff soll in existierenden
LWRen eingesetzt werden können, ohne deren Anlagekomponenten
zu verändern.
Berechnung und Vergleich sicherheitstechnisch relevanter
Parameter von einem eingesetzten Reaktor-Kern mit Kernen,
welche uranfreie Brennstoffe enthalten.

Herstellung von Absorberstäben im HOT-Labor am PSI.
 Zur Validierung der verwendeten Methoden und Daten werden
 im Forschungsreaktor CROCUS der EPFL in Lausanne Reaktivitäts-
 messungen mit diesen Absorberstäben von Diplomanten
 durchgeführt.
 Betreuung und Administrierung eines Workstation-Clusters in
 Zusammenarbeit mit einer zweiten Person.

Veröffentlichungen

- 1988 U. Kasemeyer:
 2-dim. Lösung der Multigruppendifusionsgleichung
 zur Berechnung von hochkonvertierenden Reaktoren
 Siemens/KWU-Seminar, Erlangen
- 1990 U. Kasemeyer:
 Beispiele zur Rechenzeit- und Speicherplatzoptimierung
 Workshop zur Vektor- und Parallelverarbeitung
 Rechenzentrum der TU Braunschweig
- 1993 J.K. Axmann, U. Kasemeyer:
 DIBU, a Two-Dimensional Vectorized Diffusion Code for the
 Evaluation of the PROTEUS-PHASE-II High-Converter Experiments
 M&C + SNA 93 Karlsruhe
- 1993 U. Kasemeyer:
 Parallelisierung mit PVM auf Workstations
 unterschiedlicher Hardware an der TU Braunschweig
 Workshop über Wissenschaftliches Rechnen
 Schwerpunkt: Parallelisierung
 Technische Universität Braunschweig
- 1994 U. Kasemeyer, J.M. Paratte, R. Chawla:
 Reactor Physics Characteristics of Possible Fuel Materials for
 Plutonium-Incinerating LWRs
 IAEA Technical Committee Meeting on: " Unconventional Options for
 Plutonium Disposition", 7-11 November 1994, Obninsk, Rußland.

- 1995 J.M. Paratte, U. Kasemeyer, P. Grimm, C. Degueldre, R. Chawla:
Characteristics of Plutonium-Burning MOX and Uranium-Free PWRs
Proc. Workshop on Advanced Fuel Cycles, PSI Villigen (1995)
- 1995 U. Kasemeyer, R. Chawla, P. Grimm, J.M. Paratte:
Conceptual Study for a PWR Core Employing Uranium-Free
Plutonium Fuel
Proc. Int. Conf. on Evaluation of Emerging Nuclear
Fuel Cycle Systems (GLOBAL'95), Versailles (1995)
- 1995 C. Degueldre, U. Kasemeyer, F. Botta, G. Ledergerber:
Plutonium Incineration in LWRs by a Once-Through Cycle with
a Rock-Like Fuel
Materials Research Society Symp., Proc. Vol. 412, S. 15-23, 1996
- 1996 U. Kasemeyer, J.M. Paratte, P. Grimm, R. Chawla:
Comparison of PWR Core Characteristics for
100 % Pu-Containing Loadings
An Nuclear Technology zur Veröffentlichung gesendet, Nov. 1996
- 1997 J.M. Paratte, H. Akie, R. Chawla, M. Delpech, U. Kasemeyer,
C. Lombardi, A. Mazzola, H. Takano:
Benchmark Comparisons of Fuel Cell Calculations for
Pu-Burning LWRs
Proc. of GLOBAL'97, Yokohama, Japan, 5.-10.10.1997
- 1997 G. Ledergerber, C. Degueldre, U. Kasemeyer, A. Stanculescu,
J.M. Paratte, R. Chawla:
Using Civilian Plutonium in LWRs with an Inert Matrix Fuel
Proc. of GLOBAL'97, Yokohama, Japan, 5.-10.10.1997
- 1997 C. Pralong, R. Früh, O.P. Joneja, U. Kasemeyer, R. Chawla:
Reactivity Effects of Burnable Poisons Proposed for
Pu-Incinerating LWR Fuels,
Zur Präsentation an der ICENES'98 in Tel Aviv eingereicht, 1997