

Entwicklung und Validierung eines
Programmsystems für Zellabbrandrechnungen
plutoniumhaltiger Brennstoffe

Christoph Pistner

Diplomarbeit, Mai 1998

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	1
2	Hintergrund	3
2.1	Perspektiven der nuklearen Abrüstung	3
2.2	Kernwaffenfähige Materialien	4
2.2.1	Uran	4
2.2.2	Plutonium	6
2.3	Plutoniumentsorgung	7
2.3.1	Zielsetzung und <i>Spent Fuel Standard</i>	8
2.3.2	Beurteilungskriterien für Entsorgungsoptionen	9
2.3.3	Formulierung der Aufgabenstellung	10
3	Grundlagen und Begriffe	13
3.1	Elementare Definitionen	13
3.1.1	Wirkungsquerschnitt und Neutronenfluß	13
3.1.2	Multiplikationsfaktor k_∞	14
3.2	Änderung der Brennstoffzusammensetzung	15
3.2.1	Die Abbrandgleichungen	15
3.2.2	Effektiver mikroskopischer Wirkungsquerschnitt	16
3.2.3	Totaler Neutronenfluß und Leistungsdichte	17
3.2.4	Abbrand	17
3.3	Bestimmung effektiver Wirkungsquerschnitte	18
3.3.1	Zusammenhang zwischen Brennstoffzusammensetzung und effektiven Wirkungsquerschnitten	18
3.3.2	Monte-Carlo-Methode	23
3.3.3	Das Programmpaket MCNP4A	26
3.4	Abbrandrechnungen	30
4	Zellabbrandrechnungen	33
4.1	Näherungen zur Lösung der Abbrandgleichungen	34
4.1.1	Ortsabhängigkeit der Abbrandgleichungen	34
4.1.2	Zeitabhängigkeit von effektiven mikroskopischen Wirkungsquerschnitten und Neutronenfluß	37

4.2	Iterationsverfahren	40
4.3	Die Behandlung von Aktiniden und Spaltprodukten	42
4.3.1	Die Abbrandgleichungen für die Gruppe der Aktinide	44
4.3.2	Spaltrate und nuklidspezifische Spaltenergiefreisetzung	46
4.3.3	Spaltprodukte	48
5	Validierung des Programmsystems	55
5.1	NEA Benchmark	56
5.1.1	Zielsetzung und Teilnehmer	56
5.1.2	Benchmark Spezifikationen	56
5.2	Zusammenstellung der Ergebnisse	59
5.2.1	Multiplikationsfaktor k_{∞}	59
5.2.2	Totaler Neutronenfluß	59
5.2.3	Effektive Wirkungsquerschnitte	59
5.2.4	Nuklidkonzentrationen	60
5.3	Diskussion	74
5.3.1	Multiplikationsfaktoren k_{∞}	74
5.3.2	Totaler Neutronenfluß	75
5.3.3	Effektive Wirkungsquerschnitte	75
5.3.4	Nuklidkonzentrationen	76
5.3.5	Zusammenfassung	78
6	Mischoxidbrennstoff mit Waffenplutonium	79
6.1	Parameter einer WPu-MOX Strategie	80
6.2	Ergebnisse	81
6.2.1	Multiplikationsfaktor k_{∞}	81
6.2.2	Isotopenvektor	82
6.2.3	Umsatzraten	83
6.2.4	Zusammenfassung	86
7	Zusammenfassung und Ausblick	89
	Literaturverzeichnis	93
	A Spaltprodukte	97
	B Multiplikationsfaktoren k_{∞}	99
	C Effektive Wirkungsquerschnitte	101
	D Brennstoff-Zusammensetzungen	107
D.1	Aktinide	107
D.2	Spaltprodukte	110

Kapitel 1

Einleitung

Aber das Merkwürdigste, ja das Unbegreiflichste ist wohl das, wie die Autoren auf solche Themen kommen. Ich muß schon sagen, völlig unbegreiflich ist mir das ... Ich kann das einfach nicht verstehen.

N. Gogol über A. und B. Strugatzki.

Vor dem Hintergrund großer Mengen überschüssigen Plutoniums aus den militärischen Beständen der USA und der ehemaligen Sowjetunion aber auch wachsender Mengen separiert gelagerten Plutoniums aus der zivilen Kernenergienutzung findet seit einigen Jahren eine intensive Diskussion über mögliche Entsorgungsszenarien für waffentaugliches separiertes Plutonium statt.

Einen Überblick über die Problematik der Plutoniumentsorgung und diskutierte Lösungsansätze gibt Kapitel 2. Wird das Ziel einer dauerhaft kernwaffenfreien Welt angestrebt, so stellt sich insbesondere die Frage nach der Möglichkeit der Eliminierung kernwaffenfähiger Materialien. Hieraus leitet sich die Fragestellung nach dem Potential reaktorbasierter Konzepte zur Beseitigung von Plutonium ab.

Um reaktorbasierte Optionen zur Eliminierung von Plutonium aus dem militärischen und zivilen Bereich bewerten zu können, sollen spezielle Brennstoffe für den Einsatz in bestehenden oder zu entwickelnden Reaktoren untersucht werden, welche auf eine möglichst vollständige Beseitigung des Plutoniums ausgerichtet sind.

Für die Beurteilung des Potentials solcher Eliminierungsszenarien ist es notwendig, Abbrandrechnungen für in Frage kommende Brennstoffe durchzuführen. In Kapitel 3 werden daher einige grundlegende Begriffe aus der Reaktorthorie zusammengestellt, welche für die Untersuchung des Abbrandverhaltens von Brennstoffen relevant sind.

Von besonderer Bedeutung für die zeitliche Entwicklung der Nuklidzusammensetzung eines Brennstoffs bei Bestrahlung im Reaktor sind hierbei die effektiven Wirkungsquerschnitte für Neutronenreaktionen. Da für neuartige Brennstofftypen nicht auf bereits existierende Bibliotheken effektiver Wirkungsquerschnitte in üblichen Abbrandprogrammen zurückgegriffen werden kann, wird im Rahmen dieser Arbeit das Monte-Carlo Programm MCNP4A, welches mittlerweile vielfältigen Einsatz für die

Lösung von Neutronen- und Elektronentransportproblemen am Institut für Kernphysik der Technischen Universität Darmstadt gefunden hat, für die Berechnung der benötigten Wirkungsquerschnitte verwendet.

Zur Lösung der Abbrandgleichungen, welche die zeitliche Änderung der Nuklidkonzentrationen bestimmen, werden eigene Routinen auf der Basis von *Mathematica* entwickelt. Kapitel 4 beschreibt das hierbei zugrundegelegte Verfahren zur Berechnung des Abbrandes und diskutiert die vorgenommenen Näherungen und deren Motivation.

Zur Validierung des aus den *Mathematica*-Routinen und MCNP4A gebildeten Programmsystems zur Durchführung von Zellabbrandrechnungen wird in Kapitel 5 ein Vergleich mit anderen Abbrandprogrammen durchgeführt. Diesem liegt ein Benchmark der Nuclear Energy Agency (NEA) zugrunde, in welchem der Abbrand von Brennstoffen mit hohem Plutoniumgehalt untersucht wurde.

Ein Konzept zur Eliminierung von Plutonium unter Verwendung spezieller Brennstoffe ohne Brutmaterialien, welche besonders hohe Umsatzraten des zu eliminierenden Materials erwarten lassen, soll in einer weiteren Arbeit ausführlicher untersucht werden [G1a 98]. Um ein derartiges Szenario vergleichend diskutieren zu können, wird in Kapitel 6 die Verwendung von waffengrädigem Plutonium in Mischoxid(MOX)-Brennstoffen für kommerzielle Leichtwasser-Reaktoren als Referenzfall untersucht und die damit erreichbaren Umsatzraten werden bestimmt.

Kapitel 2

Hintergrund

„I checked it very thoroughly“, said the computer, „and that quite definitely is the answer. I think the problem, to be quite honest with you, is that you’ve never actually known what the question is.“

Douglas Adams, *The Hitch Hiker’s Guide to the Galaxy*.

2.1 Perspektiven der nuklearen Abrüstung

Bedingt durch die Entspannung des Ost-West-Konflikts und gefördert durch die Auflösung der ehemaligen UdSSR ist es in der unmittelbaren Vergangenheit zu bedeutenden Abrüstungserfolgen im Bereich nuklearer Waffen gekommen. Hierdurch stellt sich historisch erstmalig die Situation, daß es zu einem erklärten Überschuß an kernwaffenfähigen Materialien im Besitz der Kernwaffenstaaten kommt, für welche geeignete Entsorgungskonzepte zu entwickeln sind.

Über die derzeitige Situation hinaus haben sich bereits durch den Artikel VI des nuklearen Nichtverbreitungsvertrages (NVV) die Unterzeichnerstaaten verpflichtet, Verhandlungen zu Abschaffung aller Kernwaffen zu führen.¹ Diese Verpflichtung wurde auch in einem Gutachten des Internationalen Gerichtshofs bestätigt, in dem weiterhin der Einsatz von Kernwaffen und die Drohung mit diesen als generell im Widerspruch zum Völkerrecht eingeschätzt wurde (siehe beispielsweise [IAL 97]).

Ist das Ziel weitergehender Abrüstungsverhandlungen daher die kernwaffenfreie Welt, so stellt sich in bisher einmaliger Weise die Frage nach dem langfristig verantwortungsvollen Umgang mit nicht länger benötigten kernwaffenfähigen Materialien.

¹„Article VI: Each of the Parties to the Treaty undertakes to pursue negotiations in good faith on effective measures relating to cessation of the nuclear arms race at an early date and to nuclear disarmament, and on a treaty on general and complete disarmament under strict and effective international control.“ [NPT 68]. Dies wurde auch durch eine Erklärung über „Prinzipien und Zielsetzung nuklearer Abrüstung und Nichtweiterverbreitung“ auf der Überprüfungs- und Verlängerungskonferenz der Parteien des NVV hingewiesen, welche vom 17. April bis 12. Mai 1995 in New York abgehalten wurde.

Ziel dieses Kapitels ist es daher, in die Problematik der Entsorgung kernwaffenfähiger Materialien einzuführen, sowie einen Überblick über die Diskussion der hierfür bislang vorgeschlagenen Optionen zu geben. Soll über dauerhaft proliferations sichere Maßnahmen insbesondere im Kontext einer kernwaffenfreien Welt nachgedacht werden, so gewinnen Eliminierungsoptionen von Waffenplutonium eine besondere Bedeutung, da durch die Vermeidung der zeitlich praktisch unbegrenzten Lagerung waffenfähiger Materialien eine besondere Proliferationssicherheit erzielt werden könnte.

2.2 Kernwaffenfähige Materialien

Die wesentliche Voraussetzung für den Bau einer Kernwaffe ist der Besitz einer hinreichenden Menge an waffenfähigem Spaltmaterial. Hierzu zählen bislang nur hochangereichertes Uran (Highly Enriched Uranium, HEU) und Plutonium.² Die Kontrolle und Überwachung waffenfähigen Spaltmaterials ist daher zentraler Baustein des NVV.

2.2.1 Uran

Natururan ist aufgrund seiner Isotopenzusammensetzung nicht waffenfähig.³ Erst durch eine Anreicherung des ^{235}U -Gehalts kann Uran für Kernwaffen verwendet werden. Diese Tatsache soll hier kurz erläutert werden. Sowohl ^{235}U als auch ^{238}U sind durch schnelle Neutronen spaltbar. Der Wirkungsquerschnitt für die Spaltung von ^{238}U fällt jedoch bei einer Neutronenenergie von ca. 1,1 MeV zu niedrigeren Energien um über fünf Größenordnungen ab, dort dominiert daher der Wirkungsquerschnitt für Neutroneneinfang (siehe Abb. 2.1). Die aus einer Kernspaltung entstehenden Neutronen weisen eine Energieverteilung der Form

$$p(E) = C \exp\left(-\frac{E}{a}\right) \sinh(bE) \quad (2.1)$$

auf (Wattspektrum), d. h. die Wahrscheinlichkeit das ein Neutron mit einer Energie im Intervall E bis $E + dE$ erzeugt wird, beträgt $p(E)dE$.⁴ Diese Verteilung besitzt ein

²Auch das Wasserstoff-Isotop Tritium spielt als Neutronenervielfältiger bei fortgeschrittenen Waffensystemen eine große Rolle, ist jedoch ohne Uran oder Plutonium bislang nicht für den Bau einer Kernwaffe ausreichend. Neben Uran und Plutonium könnten prinzipiell auch andere Aktinide als Spaltmaterial verwendet werden. Über einen derartigen Einsatz ist jedoch bislang nichts bekannt [Gsp 98].

³Generell wird Uran aufgrund seines Anreicherungsgrades von ^{235}U in ^{238}U unterschieden. Natururan enthält 0.71 wt% ^{235}U , unter niedrig angereichertem Uran (low enriched uranium, LEU) versteht man Uran bis zu einem Anreicherungsgrad von 20 wt%, bei einer höheren Anreicherung handelt es sich um HEU. Waffengrädiges HEU weist i. d. R. eine Anreicherung von über 90 wt% auf. Schließlich entsteht beim Anreicherungsprozeß entsprechend abgereichertes Uran mit einem ^{235}U -Anteil unter 0.71 wt%.

⁴Die Konstanten a und b sind abhängig vom spaltenden Nuklid und der Energie des die Spaltung induzierenden Neutrons, die Konstante C dient der Normierung; für die Spaltung von ^{238}U durch Neutronen der Energie 1 MeV sind $a = 0.89506 \text{ MeV}$ und $b = 3.2953 \text{ MeV}^{-1}$ [Bri 93].

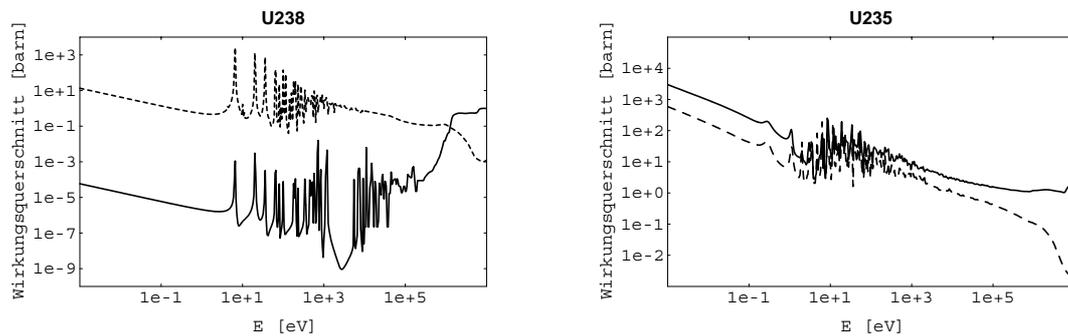


Abbildung 2.1: Wirkungsquerschnitte für Spaltung (—) und Neutroneneinfang (- -) in ^{238}U und ^{235}U in Abhängigkeit von der Neutronenenergie. Daten aus [JEF 94].

Maximum bei einer wahrscheinlichsten Energie von ca. 0.7 MeV. Mittelt man die energieabhängigen Wirkungsquerschnitte von ^{238}U für Neutronen mit einer solchen Energieverteilung, so ergibt sich unter Berücksichtigung der zur Spaltung konkurrierenden Prozesse Neutroneneinfang und inelastische Neutronenstreuung, daß es für ^{238}U nicht möglich ist, eine kritische Anordnung zu erhalten (siehe auch [Gar 94]). Erst ab einem Anreicherungsgrad von 20 % ^{235}U gilt Uran als waffenfähig (die kritische Masse beträgt dann etwa 1500 kg [Gla 98]).⁵

Das für den militärischen Bereich erzeugte hochangereicherte Uran stellt die größte Menge waffenfähigen Materials dar.⁶ Soll hochangereichertes Uran für Kernwaffen untauglich gemacht werden, so ist dies jedoch durch eine Vermischung mit natürlichem oder abgereichertem Uran möglich. Eine Rückführung in den militärischen Bereich würde dann eine erneute Anreicherung voraussetzen, wie sie bei der Erzeugung von hochangereichertem Uran benötigt wird. Die hierfür benötigte Technologie ist zwar verbreitet, gilt jedoch als überwachbar und bietet daher eine verhältnismäßig hohe Proliferationsresistenz.

Die technische Schwierigkeit der Urananreicherung stellt aber bis heute eine wesentliche Hürde für die Produktion kernwaffentauglichen Urans dar.

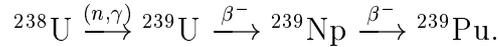
Durch die Änderung der Isotopenzusammensetzung kann HEU daher auf verhältnismäßig einfache Weise in einen nicht-kernwaffenfähigen Zustand überführt werden. Daher steht für die Entsorgung überschüssigen HEUs eine relativ einfache Option zur Verfügung. Für den Fall von Plutonium ergibt sich jedoch eine andere Situation.

⁵Die für eine Kernwaffe benötigten Mengen lassen sich durch die nackte kritische Masse abschätzen, d. h. die Masse, bei welcher eine reine metallische Kugel ohne Neutronenreflektor gerade kritisch wird. Für HEU (95 wt% ^{235}U , 5 wt% ^{238}U) ergibt sich ein Wert von 52 kg.

⁶Insgesamt existieren ca. 2000 Tonnen HEU im militärischen Bereich, welchen ca. 20 Tonnen für die zivile Nutzung gegenüberstehen. Diese beschränkt sich auf den Einsatz als Brennstoff in Forschungsreaktoren.

2.2.2 Plutonium

In Kernreaktoren entsteht nach Neutroneneinfang in ^{238}U und zwei anschließenden β^- -Zerfällen ^{239}Pu :



Aus diesem entstehen durch sukzessive Neutroneneinfänge neue Plutoniumisotope und hieraus nach radioaktiven Zerfällen Americium- und Curiumisotope. Im Gegensatz zum Uran ist Plutonium praktisch jeder Isotopenzusammensetzung waffenfähig (Zusammensetzungen siehe Tab. 2.1). Zwar ist auch für Plutonium der Grad der Waffenfähigkeit

wt%	^{238}Pu	^{239}Pu	^{240}Pu	^{241}Pu	^{242}Pu	$^{241}\text{Am}^7$
RPu	1.30	60.30	24.30	5.60	5.00	3.50
WPu	0.01	93.82	5.80	0.13	0.02	0.22

Tabelle 2.1: Isotopenzusammensetzung von Plutonium aus kommerziellem Leichtwasserreaktor-Brennstoff bei einem Abbrand von 33 MWd/kg (Reaktorplutonium, RPu) und waffengrädigem Plutonium (Waffenplutonium, WPu) nach [NAS 95].

von der Isotopenzusammensetzung abhängig, jedoch beeinflußt diese im wesentlichen nur qualitative Eigenschaften und nicht die prinzipielle Verwendbarkeit. Dennoch wird üblicherweise zwischen Waffenplutonium (WPu), welches einen möglichst hohen Anteil an ^{239}Pu aufweisen soll, und Reaktorplutonium (RPu) unterschieden.⁸

Dabei beeinträchtigt der Gehalt an ^{238}Pu über die starke Wärmeentwicklung (560 Watt/kg) die technische Handhabbarkeit des Materials. Weiterhin hat sowohl der Gehalt an ^{238}Pu wie ^{240}Pu durch den hohen Neutronenhintergrund aus spontanen Spaltungen (2600 bzw. 910 n/(ms·kg)) Einfluß auf die Frühzündwahrscheinlichkeit und beeinträchtigt damit die Vorhersagbarkeit der erzielten Sprengkraft. Schließlich hängt auch die maximal zu erwartende Energiefreisetzung bei vorgegebener Plutoniummasse und Kompaktierungsgeschwindigkeit von der Isotopenzusammensetzung ab (für eine ausführlichere Diskussion dieser Problematik siehe z. B. [Kan 89], [Mar 93], [Gar 94] und [NAS 94]).

Für die Entsorgung von Plutonium steht daher keine einfache Möglichkeit zur Verfügung, wie dies bei HEU der Fall ist, so daß die Entwicklung von Entsorgungsoptionen für überschüssiges Waffenplutonium eine zentrale Rolle für die Unumkehrbarkeit und Dauerhaftigkeit von Abrüstungserfolgen spielt. Auch wenn in diesem Kontext

⁷Auch nach der Abtrennung von Plutonium aus dem abgebrannten Brennstoff entsteht ^{241}Am durch den β^- -Zerfall des ^{241}Pu mit einer Halbwertszeit von 14 Jahren. Die angegebenen Konzentrationen basieren auf einem mittleren Alter des Waffenplutoniums von 20 Jahren und des Reaktorplutoniums von ca. 10 Jahren.

⁸Die nackte kritische Masse von ^{239}Pu beträgt ca. 10 kg [Gla 98]. Als eine signifikante Menge definiert die *International Atomic Energy Agency* (IAEA) 8 kg Plutonium.

primär von militärischem Plutonium gesprochen wird, darf jedoch nicht übersehen werden, daß die wachsenden Bestände von zivilem abgetrenntem Plutonium eine ähnliche Proliferationsgefahr darstellen (eine Abschätzung der existierenden Plutoniuminventare gibt Tab. 2.2). Auch für diese muß untersucht werden, ob geeignete Entsorgungsstrategien gefunden werden können.

	Inventar [t]	Jahr
Militärisch	251.3 ±30.9	(1993)
Zivil	846.2 1 384.6 2 125.0	(1993) (2000) (2010)
Davon abgetrennt (für MOX-Produktion)	158.2 294.3 450.0 ±150	(1993) (2000) (2010)
Davon gelagert	138.7 240.0 230.0 ±75	(1993) (2000) (2010)

Tabelle 2.2: Weltinventar an Plutonium (Prognosen für 2000 und 2010).
Alle Angaben nach [Alb 96].

2.3 Plutoniumentsorgung

Es soll nun versucht werden, einen Überblick über die prinzipiellen Möglichkeiten zur Plutoniumentsorgung zu geben und Kriterien für einen Vergleich verschiedener Optionen zu nennen. Die wesentlichen Aussagen basieren hierbei auf einer umfassenden Studie der US National Academy of Sciences (NAS) [NAS 94]. Daran anschließend soll die im weiteren Verlauf dieser Arbeit untersuchte Fragestellung motiviert und eine Aufgabenstellung formuliert werden.

2.3.1 Zielsetzung und *Spent Fuel Standard*

Die Optionen zum zukünftigen Umgang mit Plutonium lassen sich prinzipiell in drei getrennte Kategorien in Abhängigkeit vom angestrebten Ziel einteilen:

Unbegrenzte Lagerung: Alle kernwaffenfähigen Materialien verbleiben zur zeitlich unbegrenzten Lagerung. Diese hat dann unter hohen Sicherheitsstandards stattzufinden, welche etwa mit dem Standard bei der Lagerung von Kernwaffen (*Stored Weapon Standard*, SWS) übereinstimmen müsste. Dennoch sollte das Plutonium nicht in der Form von Kernwaffen gelagert werden, da die hierbei vorhandenen sensiblen Informationen über das Design einer Kernwaffe eine internationale Kontrolle der Lagerung verhindern würde. Auch kann durch einfache Maßnahmen wie die Überführung des Plutoniums in PuO_2 die unmittelbare Wiederverwendung des Plutoniums verhindert werden.

Begrenzte Zugänglichkeit: Durch physikalische, chemische oder radiologische Barrieren wird der Zugriff auf das kernwaffenfähige Material erschwert. Dies kann beispielsweise durch eine Bestrahlung des Plutoniums in Reaktoren (z. B. in der Form von Plutonium-Uran Mischoxid(MOX)-Brennstoffen) erreicht werden, aber auch durch eine Mischung mit radioaktiven Abfällen und anschließender Immobilisierung (beispielsweise durch Verglasung). Weitere Möglichkeiten bestehen in der Lagerung in tiefen Bohrlöchern oder unter dem Meeresgrund sowie in der Durchführung unterirdischer Kernexplosionen mit dem Ziel, verbleibendes kernwaffenfähiges Material zusammen mit hochradioaktiven Spaltprodukten in das umgebende Gestein einzuschmelzen.

In diesem Kontext wurde von der NAS der Begriff des Abgebrannte Brennelemente Standards (*Spent Fuel Standard*, SFS) eingeführt [NAS 94], welcher später vom US-Department of Energy (DoE) übernommen und präzisiert wurde [DoE 96]. Er verlangt, Plutonium in einen Zustand zu überführen, in welchem es mindestens so unattraktiv und unzugänglich für die Wiedergewinnung und den Einsatz in Kernwaffen ist, wie Plutonium aus abgebrannten Brennelementen kommerzieller Reaktoren. Hierbei gründet sich die Einführung des SFS darauf, daß die Menge des Plutoniums, welches durch die zivile Kernenergienutzung erzeugt wurde und in abgebranntem Brennstoff eingebettet vorliegt, die Menge des im militärischen Bereich erzeugten Plutoniums weit übersteigt. Ob durch den SFS ein dauerhafter Standard für die proliferationssichere Lagerung von Plutonium definiert ist, wird in diesem Zusammenhang nicht diskutiert.

Eliminierung: Das kernwaffenfähige Material wird dem menschlichen Zugriff vollständig entzogen. Dies könnte durch eine tatsächliche Eliminierung in Reaktoren erzielt werden, bei welcher allerdings eine praktisch vollständige Beseitigung erreicht werden müsste. Auch eine Verbringung des Materials in den Weltraum oder die Verdünnung in den Weltmeeren wird jedoch in diesem Kontext als Option zur Eliminierung des Plutoniums diskutiert.

2.3.2 Beurteilungskriterien für Entsorgungsoptionen

Für die Beurteilung und den Vergleich verschiedenster Entsorgungsstrategien können eine Reihe von Kriterien herangezogen werden, welche zunächst als von der Zielsetzung einer Entsorgungskampagne unabhängig angesehen werden können [NAS 94]:

Risiko des Umgangs mit Plutonium: Im Verlaufe der Durchführung einer Entsorgungskampagne muß das Material i. d. R. transportiert und verarbeitet werden. Dabei kann es nicht dem SWS unterliegen, d. h. es kommt notwendigerweise zu einem vorübergehenden Anstieg der Proliferationsgefahr. Dieser sollte in keinem Fall den erreichten Gewinn an Proliferationssicherheit übersteigen, welcher durch die Durchführung der Entsorgungsoption erzielt werden kann.

Risiko der Rückgewinnung: Ist das Ziel einer Entsorgungsoption nicht die vollständige Eliminierung des Plutoniums, so besteht die Gefahr der Rückgewinnung des Plutoniums sowohl durch den Eigentümerstaat, als auch durch andere Parteien, welche sich in den Besitz von entsorgtem Material bringen können. Hierdurch kann es sowohl zu einer Umkehrung des Abrüstungsprozesses, als auch zu einer ungewollten Proliferation von kernwaffenfähigem Material kommen. Die Minimierung der Rückholbarkeit des Plutoniums (wenn möglich durch eine tatsächliche Eliminierung) sollte daher oberste Priorität bei der Auswahl einer Entsorgungsstrategie besitzen.

Risiken bezüglich Umwelt, Sicherheit und Gesundheit: Die von Plutonium ausgehenden Gefahren für Mensch und Umwelt sowohl in Form von Strahlenbelastungen als auch Kritikalitätsunfällen müssen soweit als möglich reduziert werden.

Kosten: Die für eine Entsorgungskampagne aufzuwendenden Kosten müssen in einem angemessenen Verhältnis zu den erzielten Gewinnen an Proliferationssicherheit stehen.

Zeithorizont: Eine möglichst umgehende Lösung des Entsorgungsproblems dient einer Minimierung des gesamten Proliferationsrisikos, welches von überschüssigem Plutonium ausgeht. Sowohl Verzögerungen des Beginns einer Entsorgungskampagne, als auch die Dauer der eigentlichen Maßnahmen sollten daher soweit als möglich reduziert werden.⁹

Technische Unsicherheiten: Ist die Durchführbarkeit einer Entsorgungskampagne auf die Entwicklung neuer Technologien angewiesen, so kann der Entsorgungsprozeß unnötig verzögert bzw. verlängert werden, falls es zu nicht vorhersehbaren technischen Schwierigkeiten im Verlaufe der Kampagne kommt.

⁹Es sollte hierbei jedoch auch zwischen der Durchführung der Maßnahme, bei welcher aufgrund des Umgangs mit waffenfähigem Material ein erhöhtes Proliferationsrisiko im Vergleich zum SWS besteht, und der Dauer der Vorbereitung der Maßnahme, während der prinzipiell ein hoher Sicherheitsstandard erreichbar sein kann, unterschieden werden.

Öffentliche Akzeptanz: Jede Entsorgungsoption ist auf öffentliche Akzeptanz angewiesen, um eine problemlose Durchführung der erforderlichen Maßnahmen gewährleisten zu können.

Einfluß auf den nuklearen Brennstoffkreislauf: Maßnahmen zur Entsorgung von Plutonium aus dem militärischen Bereich können Rückwirkungen auf den Umgang mit zivilen Plutoniumbeständen verursachen. Kommt es im Rahmen einer Entsorgungskampagne bspw. zum Aufbau einer MOX-Brennstoff Fabrikationsanlage, so ist ein Weiterbetrieb dieser Anlage auch nach Beendigung der Entsorgungskampagne im Rahmen des zivilen Brennstoffkreislaufs wahrscheinlich. Dies könnte jedoch insgesamt zu einer Erhöhung des gesamten Proliferationsrisikos führen, und damit den Effekt der Entsorgung des militärischen Plutoniums in Frage stellen.

2.3.3 Formulierung der Aufgabenstellung

Der von der NAS eingeführte SFS beruht auf der Annahme, daß es als vorrangiges Ziel anzustreben sei, die besondere Proliferationsgefahr zu reduzieren, welche von überschüssigem Waffenplutonium ausgeht. Zur Realisierung dieses Ziels werden dabei die beiden Optionen der direkten Verglasung des Plutoniums, welches hierbei mit radioaktiven Abfällen vermischt wird, sowie des Einsatzes von Plutonium als MOX-Brennstoff in kommerziellen Leichtwasserreaktoren (LWR's) favorisiert. Dennoch weisen diese Optionen, ebenso wie der SFS im allgemeinen, bedeutende Nachteile auf. Insbesondere ist eine Rückholung des Plutoniums prinzipiell jederzeit wieder möglich (eine ausführlichere Diskussion kann an dieser Stelle nicht erfolgen, siehe hierzu jedoch [G1a 98] sowie [SAN 96]). Daher ergänzt auch die NAS:

„Although the spent fuel standard applied to excess plutonium is an appropriate goal for next steps, further steps should be taken to reduce the proliferation risks associated with nuclear power and the global stock of plutonium, including plutonium in spent fuel. Options for near-total elimination of plutonium may have a role to play in the longer-term effort to reduce the risks posed by global plutonium stocks. Research on defining and exploring these options should be continued at the conceptual level.“

[NAS 94], S. 143

Im Rahmen dieser und einer weiteren Arbeit [G1a 98] sollen daher Überlegungen zu einer Entsorgungsoption angestellt werden, welche bewußt über den SFS hinausgeht. Um einen solchen Ansatz prinzipiell zu rechtfertigen, muß das Ziel einer solchen Option die praktisch vollständige Eliminierung des Plutoniums anstreben. Hierdurch könnte eine Minimierung des Risikos der Rückgewinnung des Plutoniums erreicht werden.

Zu diesem Zweck soll die Möglichkeit des Einsatzes von Plutonium in Reaktoren untersucht werden. Um technische Unsicherheiten zu vermeiden werden hierbei gängige LWR's zugrundegelegt, das Ziel einer tatsächlichen Eliminierung des Plutoniums ist jedoch mit üblichen MOX-Brennstoffen nicht befriedigend zu erreichen (siehe hierzu Kap. 6). Hieraus ergibt sich die Notwendigkeit, neuartige Brennstoffe zu untersuchen. Diese sollten kein ^{238}U enthalten (inerte Brennstoffe), aus welchem Plutonium produziert wird. Um weiterhin die Risiken des Umgangs mit Plutonium zu reduzieren, insbesondere auch um unnötige Abzweigungsmöglichkeiten zu vermeiden und somit die Proliferationssicherheit zu optimieren, sollte eine Wiederaufarbeitung des Brennstoffs zur Abtrennung und Rückführung noch vorhandenen Plutoniums vermieden werden.

Um für ein solches Konzept quantitative Aussagen über den erreichbaren Grad der Plutoniumeliminierung machen zu können, ist es notwendig, Abbrandrechnungen für ausgewählte Brennstoffe durchzuführen. Ein zentrales Problem stellt hierbei die Bestimmung effektiver Wirkungsquerschnitte für verschiedene Neutronenreaktionen in Brennstoffen von gegebener Zusammensetzung dar (siehe Kap. 3.3). Hierfür soll das Neutronentransportprogramm MCNP4A verwendet werden (Kap. 3.3.3). Die sich für die Änderung der Brennstoffzusammensetzung ergebenden Abbrandgleichungen werden dann mittels geeigneter, in *Mathematica* zu entwickelnder Abbrandroutinen gelöst. So lassen sich Aussagen über die abbrandabhängige Entwicklung der Brennstoffzusammensetzung gewinnen, welche es dann erlauben, erreichbare Umsatzraten sowie die maximal zu erzielende prozentuale Plutoniumeliminierung zu bestimmen.

Kapitel 3

Grundlagen und Begriffe

*Euch ist bekannt, was wir bedürfen:
Wir wollen stark Getränke schlürfen;
Nun braut mir unverzüglich dran!
Was heute nicht geschieht, ist morgen nicht getan . . .*

J. W. Goethe, Faust.

Bevor im einzelnen auf die Berechnung des nuklearen Inventars eines Reaktors im Laufe des Abbrandes eingegangen werden kann, sollen zunächst einige elementare Größen zur Beschreibung von Kernreaktionen, Brennstoffen und Reaktoren behandelt werden. Diese führen zur grundlegenden Gleichung für die Bestimmung der Änderung der Nuklidzusammensetzung von Brennstoffen im Laufe des Abbrandes. Diese führt auf das Problem der Berechnung effektiver Wirkungsquerschnitte.

3.1 Elementare Definitionen

3.1.1 Wirkungsquerschnitt und Neutronenfluß

Ein Maß für die Wahrscheinlichkeit einer bestimmten Reaktion x zwischen einem Neutron der Energie E und einem Atomkern der Sorte i ist durch den *mikroskopischen Wirkungsquerschnitt* $\sigma_x^i(E)$ gegeben.¹ Betrachtet man ein homogenes Medium der Atomdichte N^i , in welchem eine Neutronendichte $n(E)$ von Neutronen der Energie E vorliegt, so ergibt sich für die *Reaktionsrate* (Zahl der Reaktionen vom Typ x pro Zeit- und Volumeneinheit) $R_x^i(E)$

$$R_x^i(E) = N^i \sigma_x^i(E) n(E) v(E),$$

¹Die wichtigsten Reaktionen x sind: elastische Streuung (s), inelastische Streuung (n,n'), Strahlungseinfang (n,γ), Spaltung (n,f) und Neutronenabsorption (n,a). Als übliche Einheit wird 1 barn = 10^{-24} cm² verwendet.

wobei $v(E)$ die zugehörige Neutronengeschwindigkeit ist.² Man definiert weiterhin den *makroskopischen Wirkungsquerschnitt*

$$\Sigma_x^i(E) = N^i \sigma_x^i(E)$$

und den *Neutronenfluß*

$$\phi(E) = n(E)v(E).$$

Der Neutronenfluß $\phi(E)$ entspricht der von den Neutronen der Energie E pro Einheitsvolumen und Zeit zurückgelegten Wegstrecke. Mit diesen Definitionen ergibt sich die Reaktionsrate $R_x^i(E)$ zu

$$R_x^i(E) = \Sigma_x^i(E)\phi(E). \quad (3.1)$$

Im Fall eines inhomogenen Mediums, dessen Zusammensetzung sich zusätzlich im Laufe der Zeit verändern kann, sind sowohl $\Sigma_x^i(E)$ als auch $\phi(E)$ Funktionen von Ort und Zeit.

3.1.2 Multiplikationsfaktor k_∞

Eine für die Beschreibung des Neutronenhaushalts eines Reaktors wesentliche Größe ist der *effektive Multiplikationsfaktor* k_{eff}

$$k_{\text{eff}} = \frac{\text{Produktionsrate}}{\text{Absorptionsrate} + \text{Auslaufrate}},$$

wobei für ein unterkritisches System k_{eff} kleiner als Eins, beim kritischen System genau Eins und für ein überkritisches System größer als Eins ist. Die Produktions- und Absorptionsrate sind durch neutronenphysikalische Eigenschaften des Systems bestimmt, während in die Auslaufrate, welche die Zahl der aus dem System entweichenden Neutronen angibt, auch systemspezifische Größen wie die Abmessungen und die Form eines Reaktors eingehen.

Der effektive Multiplikationsfaktor wird daher häufig in die folgende Produktdarstellung

$$k_{\text{eff}} = \epsilon p f \eta L_s L_{th}$$

zerlegt (siehe [Zie 84]). Dabei ist ϵ der Schnellspaltfaktor, p die Bremsnutzung, f der thermische Nutzfaktor, η der Regenerationsfaktor, L_s der schnelle Verbleibfaktor und L_{th} der thermische Verbleibfaktor.

Während sowohl L_s als auch L_{th} von der Größe und Form eines Systems abhängen, sind die übrigen vier Faktoren in der Produktdarstellung von k_{eff} ausschließlich durch Materialeigenschaften bestimmt.³ Daher wird als eine wesentliche Größe zur Beschreibung der Brennstoffzusammensetzung (unabhängig von der speziellen Geometrie eines

²Die Neutronengeschwindigkeit ist für die in Reaktoren vorkommenden Neutronenenergien durch $v(E) = \sqrt{2E/m}$ gegeben, wobei m die Neutronenmasse ist.

³Hierzu zählt neben der Zusammensetzung des Brennstoffs und des Moderators auch das Volumenverhältnis zwischen Moderator und Brennstoff sowie die zugehörigen Dichten. Diese Größen legen das Energiespektrum der Neutronen in einem gegebenen System fest.

Reaktors) der *unendliche Multiplikationsfaktor* k_∞ verwendet, welcher als der effektive Multiplikationsfaktor k_{eff} für eine Anordnung von unendlicher Größe ($L_s = L_{th} = 1$)

$$k_\infty = \frac{\text{Produktionsrate}}{\text{Absorptionsrate}} = \epsilon p f \eta$$

definiert ist. Dieser kann auch durch die makroskopischen Wirkungsquerschnitte Σ_f und Σ_a beschrieben werden.⁴ Hierzu führt man die mittlere Zahl an pro Spaltung freigesetzten Neutronen $\bar{\nu}$ ein, und erhält für k_∞ :

$$k_\infty = \frac{\bar{\nu} \Sigma_f}{\Sigma_a}.$$

Um die Abweichung eines Systems vom exakt kritischen Zustand anzugeben, führt man den Begriff der *Reaktivität* ρ ein, welche sich aus k_{eff} durch die Definition

$$\rho = \frac{k_{\text{eff}} - 1}{k_{\text{eff}}}$$

ergibt. Der Unterschied zwischen zwei verschiedenen Reaktorzuständen mit $k_{\text{eff},1}$ und $k_{\text{eff},2}$ ergibt sich dann zu

$$\Delta\rho = \rho_1 - \rho_2 = \frac{k_{\text{eff},1} - 1}{k_{\text{eff},1}} - \frac{k_{\text{eff},2} - 1}{k_{\text{eff},2}} = \frac{k_{\text{eff},1} - k_{\text{eff},2}}{k_{\text{eff},1} \cdot k_{\text{eff},2}}.$$

3.2 Änderung der Brennstoffzusammensetzung

3.2.1 Die Abbrandgleichungen

Zur Änderung der Konzentration eines Nuklids im Laufe der Zeit tragen verschiedene neutroneninduzierte Prozesse wie (n, γ), (n,f) oder (n,2n)-Reaktionen, aber auch radioaktive Zerfälle bei. Die zeitliche Änderung der Nuklid-Konzentration N^i des Nuklids i wird daher durch die orts- und zeitabhängige Abbrandgleichung

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt} N^i(\vec{r}, t) &= - \left[\int_0^\infty dE \sigma_a^i(E) \phi(E, \vec{r}, t) + \lambda^i \right] N^i(\vec{r}, t) \\ &+ \sum_{j \neq i} \left[f^{ij}(t) \int_0^\infty dE \sigma_a^j(E) \phi(E, \vec{r}, t) + l^{ij} \lambda^j \right] N^j(\vec{r}, t) \end{aligned} \quad (3.2)$$

bestimmt.⁵ Hier tragen zur Abnahme des Nuklids i alle Neutroneneinfangsprozesse mit Wirkungsquerschnitt σ_a^i sowie die radioaktiven Zerfälle mit einer Zerfallskonstanten λ^i

⁴Hierbei addieren sich die makroskopischen Wirkungsquerschnitte der einzelnen im Brennstoff enthaltenen Nuklidarten: $\Sigma_x = \sum_i \Sigma_x^i$.

⁵Der in die Abbrandgleichung eingehende Absorptionsquerschnitt σ_a umfaßt alle Neutronenreaktionen, die zu einer Änderung des mit dem Neutron reagierenden Kerns führen, d. h. $\sigma_a = \sigma_f + \sigma_\gamma + \sigma_{(n,2n)} + \dots$. Üblicherweise wird σ_a nur als die Summe aus σ_f und σ_γ definiert. Nicht zu σ_a tragen elastische und inelastische Streuung von Neutronen bei.

Die in die Gleichung eingehenden Integrale ergeben sich aus der Reaktionsrate gemäß Gl. (3.1) bei Berücksichtigung von Neutronen mit beliebiger Energie E .

bei (erster Term auf der rechten Seite), zur Zunahme des Nuklides i führen Neutroneneinfänge sowie Zerfälle im Nuklid j , welche mit einer Wahrscheinlichkeit f^{ij} respektive l^{ij} das Nuklid i bilden (zweiter Term). Die Wahrscheinlichkeiten f^{ij} bestimmen sich dabei aus dem Verhältnis der zur Bildung des Nuklids i führenden Reaktion ($\sigma_{(j \rightarrow i)}^j$) zur Gesamtwahrscheinlichkeit für Neutronenabsorption im Nuklid j :

$$f^{ij}(t) = \frac{\int_0^\infty dE \sigma_{(j \rightarrow i)}^j(E) \phi(E, \vec{r}, t)}{\int_0^\infty dE \sigma_a^j(E) \phi(E, \vec{r}, t)}.$$

Durch die zeitliche Änderung des Neutronenspektrums $\phi(E, \vec{r}, t)$ sind die Koeffizienten f^{ij} selbst zeitabhängig. Die l^{ij} sind die relativen Wahrscheinlichkeiten für das Eintreten eines bestimmten radioaktiven Zerfalls im Nuklid j .

3.2.2 Effektiver mikroskopischer Wirkungsquerschnitt

Während die mikroskopischen Wirkungsquerschnitte $\sigma(E)$ für viele Nuklide mit großer Genauigkeit bekannt sind, ist die Energieverteilung der Neutronen in hohem Maße von der Zusammensetzung des Brennstoffs und der geometrischen Anordnung von Brennstoff und Moderator abhängig (siehe Abb. 3.1). Durch Einführen eines *effektiven mikroskopischen Wirkungsquerschnitts* für die Reaktion x

$$\sigma_x^i(\vec{r}, t) = \frac{\int_0^\infty dE \sigma_x^i(E) \phi(E, \vec{r}, t)}{\phi_{tot}(\vec{r}, t)} \quad (3.3)$$

mit dem *totalen Neutronenfluß*

$$\phi_{tot}(\vec{r}, t) = \int_0^\infty dE \phi(E, \vec{r}, t)$$

geht Gl. (3.2) über in

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt} N^i(\vec{r}, t) &= - \left[\sigma_a^i(\vec{r}, t) \phi_{tot}(\vec{r}, t) + \lambda^i \right] N^i(\vec{r}, t) \\ &+ \sum_{j \neq i} \left[f^{ij}(t) \sigma_a^j(\vec{r}, t) \phi_{tot}(\vec{r}, t) + l^{ij} \lambda^j \right] N^j(\vec{r}, t). \end{aligned} \quad (3.4)$$

Während der mikroskopische Wirkungsquerschnitt eines Nuklids für eine gegebene Reaktion (Absorption, Spaltung, Streuung etc.) eine bekannte Funktion der Neutronenenergie E darstellt, geht beim Übergang zum effektiven Wirkungsquerschnitt durch eine Mittelung über die Energieverteilung des lokalen Neutronenspektrums die Energieabhängigkeit in eine Abhängigkeit von Ort und Zeit über.

Die Übergangswahrscheinlichkeiten $f^{ij}(t)$ bestimmen sich nun unmittelbar aus dem Verhältnis des zur Produktion des Nuklids j führenden effektiven Wirkungsquerschnitts (z. B. $\sigma_\gamma(\vec{r}, t)$ oder $\sigma_{(n,2n)}(\vec{r}, t)$) zum Absorptionsquerschnitt $\sigma_a(\vec{r}, t)$.

3.2.3 Totaler Neutronenfluß und Leistungsdichte

Für einen kritischen Reaktor ist die Höhe des totalen Neutronenflusses im Prinzip beliebig einstellbar.⁶ Durch Festlegung der angestrebten Leistungsdichte wird daher die Höhe des totalen Neutronenflusses bestimmt. Dieser hängt mit der lokalen Leistungsdichte $P(\vec{r}, t)$ über

$$P(\vec{r}, t) = \left(\sum_j E^j \sigma_f^j(\vec{r}, t) N^j(\vec{r}, t) \right) \phi_{tot}(\vec{r}, t) \quad (3.5)$$

zusammen, da die bei einer Spaltung freigesetzte Energie zum größten Teil über die kinetische Energie der Spaltprodukte lokal deponiert wird. Dabei ist E^j die bei einer Spaltung des Nuklids j freigesetzte Energie.⁷ Die Summe über j umfaßt alle zur Energiefreisetzung beitragenden Nuklide j . Durch die Bestimmung des totalen Neutronenflusses $\phi_{tot}(\vec{r}, t)$ wird nicht nur die Zahl der Spaltungen pro Zeiteinheit festgelegt, was einer Bestimmung des Leistungsniveaus entspricht, sondern zugleich die Rate der Neutroneneinfangsprozesse in Spaltprodukten sowie Brutmaterialien (z. B. in ^{238}U).

3.2.4 Abbrand

Um die Nuklidzusammensetzungen bei fortschreitender Bestrahlung des Brennstoffs im Reaktor zu untersuchen, ist die Angabe der Zeitdauer t der Bestrahlung alleine keine geeignete Kenngröße. Vielmehr wird die Zusammensetzung des Brennstoffs neben der Dauer der Bestrahlung auch von der Höhe des totalen Neutronenflusses im Verlauf der Bestrahlung (oder damit nach Gl. (3.5) äquivalent der lokalen Leistungsdichte), welche die Zahl der Spaltungen pro Zeiteinheit und der Nuklidumwandlungen durch Neutroneneinfang festlegt, aber auch durch die anfängliche Nuklidichte bestimmt. Daher wird die Nuklidzusammensetzung eines Brennstoffs zweckmäßigerweise nicht als Funktion der Zeit t sondern des Abbrandes A angegeben, welcher der freigesetzten Energie pro Masse des Schwermetalls zu Beginn der Bestrahlung in MWd/kg entspricht. Bei einer Dichte $\rho(\vec{r})$ des Schwermetalls und einer Leistungsdichte $P(\vec{r}, t)$ ergibt sich für den Zusammenhang zwischen Zeit und Abbrand $A(\vec{r})$ am Ort \vec{r}

$$A(\vec{r}) = \rho^{-1} \int_{t_0}^t dt' P(\vec{r}, t').$$

Die Tatsache, daß sich der Abbrand auf die anfängliche Masse des Schwermetalls und nicht den Anteil an thermisch spaltbaren Isotopen bezieht, spiegelt die Tatsache wieder, daß das den größten Teil des üblichen Brennstoffs ausmachende ^{238}U als Brutmaterial

⁶Aufgrund der Kopplung zwischen Neutronenfluß und freigesetzter Spaltenergie wird eine Obergrenze des totalen Flusses durch die maximal handhabbare Leistungsdichte vorgegeben.

⁷Neben der unmittelbar bei der Spaltung freigesetzten Energie führt auch der Einfang der nicht für die Aufrechterhaltung der Kettenreaktion benötigten Neutronen zu einer Energiefreisetzung. Diese muß bei der Angabe von E^j geeignet berücksichtigt werden (siehe hierzu auch Kap. 4.3.2).

fungiert, aus welchem im Verlauf der Bestrahlung im Reaktor ^{239}Pu gebildet werden kann. Dieses trägt dann zur weiteren Energiefreisetzung bei und erlaubt einen deutlich längeren Einsatz des Brennstoffs im Reaktor.

Wird eine möglichst vollständige Eliminierung des anfänglichen Inventars an spaltbaren Materialien (Plutonium) angestrebt, so bietet sich die Benutzung eines Brennstoffs an, welcher kein Brutmaterial enthält (inerte Brennstoffe, siehe hierzu [G1a 98]). Da in solchen Brennstoffen die anfängliche Dichte an Schwermetall lediglich durch das zu spaltende Plutonium gegeben und daher ca. um einen Faktor 25 niedriger als in traditionellen Brennstoffen ist, würden sich bei gleicher Bestrahlung im Reaktor jedoch Abbrände von ca. 750 MWd/kg statt 30 MWd/kg ergeben. Um einen besseren Vergleich solcher Brennstoffe zu gewährleisten, kann als Maß für den Abbrand in diesen Fällen die Energiefreisetzung pro Brennstoffvolumen in MWd/cm³ oder, bei zugrundegelegter gleicher Leistungsdichte, die Bestrahlungsdauer in Voll-Last-Tagen angegeben werden.

3.3 Bestimmung effektiver Wirkungsquerschnitte

Die größte Schwierigkeit bei der konsistenten Berechnung der Nuklidkonzentrationen stellt die Bestimmung der effektiven Wirkungsquerschnitte dar. Sie erfordert eine Mittelung der mikroskopischen Querschnitte über den Neutronenfluß $\phi(E)$. Die Energieverteilung der Neutronen hängt jedoch wesentlich von der Zusammensetzung des Brennstoffs und der geometrischen Anordnung von Brennstoff und Moderator ab. Daher sollen im folgenden kurz die Rückwirkungen der Brennstoffzusammensetzung auf den Neutronenfluß $\phi(E)$ diskutiert werden, bevor auf die zur Bestimmung der effektiven Wirkungsquerschnitte und des Neutronenflusses verwendete Monte-Carlo-Methode eingegangen wird.

3.3.1 Zusammenhang zwischen Brennstoffzusammensetzung und effektiven Wirkungsquerschnitten

Um die Auswirkungen der Brennstoffzusammensetzung auf die effektiven Wirkungsquerschnitte diskutieren zu können, soll zunächst die Energieverteilung von Neutronen in einem thermischen Reaktor sowie die Abhängigkeit der mikroskopischen Wirkungsquerschnitte von der Energie beschrieben werden. Hierdurch läßt sich die Rückwirkung der vorhandenen Nuklide auf den Neutronenfluß $\phi(E)$ und der Beitrag der verschiedenen Energiebereiche zu den effektiven Wirkungsquerschnitten abschätzen.

Aufgrund der Abhängigkeit der mikroskopischen Wirkungsquerschnitte von der Energie der Neutronen werden dabei häufig die drei Energiebereiche thermischer ($E < 0.5$ eV), epithermischer (0.5 eV $< E < 1$ MeV) und schneller (1 MeV $< E$) Neutronen unterschieden.

Neutronenspektrum

Die Energieverteilung der bei der Spaltung eines schweren Kerns entstehenden schnellen Neutronen, kann in guter Näherung durch ein Wattspektrum beschrieben werden:

$$p(E) = C \exp\left(-\frac{E}{A}\right) \sinh(\sqrt{BE}).$$

Dabei ist $p(E)dE$ die Wahrscheinlichkeit eines Neutrons, im Energieintervall dE bei der Energie E erzeugt zu werden.^{8,9}

Die schnellen Neutronen werden dann vorwiegend durch elastische Stöße mit dem Moderator abgebremst. Dabei verliert ein Neutron bezogen auf seine Energie vor dem Stoß im Mittel bei jedem Stoß den gleichen Bruchteil seiner Energie. Damit läßt sich für den Neutronenfluß $\phi(E)$ im epithermischen Energiebereich in guter Näherung ein $1/E$ -Verlauf herleiten [Meg 60].

Nachdem die Neutronen zu thermischen Energien abgebremst wurden, gewinnen sie im Mittel pro Stoß ebensoviel Energie wie sie verlieren, d. h. sie befinden sich im thermischen Gleichgewicht mit dem Moderator.¹⁰ Ihre Energieverteilung kann dann durch eine Maxwell-Boltzmann-Verteilung

$$p(E) = C \frac{E}{(kT)^2} \exp\left(-\frac{E}{kT}\right)$$

beschrieben werden. Dabei ist k die Boltzmann-Konstante, T die absolute Temperatur des Moderators und C eine Normierungskonstante.

Der Neutronenfluß $\phi(E)$ für beliebige Energien E ergibt sich aus einer Kopplung dieser Verteilungen, wobei die jeweiligen Normierungskonstanten von der momentanen Brennstoffzusammensetzung beeinflusst werden.

Abb. 3.1 zeigt die für verschiedene Brennstoffe mittels MCNP4A berechneten Neutronenflüsse $\phi(E)$. Bevor auf die hierbei deutlich werdenden Unterschiede in der Energieverteilung der Neutronen eingegangen werden kann, soll noch die Abhängigkeit der mikroskopischen Wirkungsquerschnitte der Aktiniden von der Energie der Neutronen erläutert werden.

Mikroskopische Wirkungsquerschnitte

Im Bereich der thermischen Neutronen lassen sich die mikroskopischen Wirkungsquerschnitte in der Regel durch einen $1/v$ -Verlauf bezüglich der Neutronengeschwindigkeit

⁸Der Neutronenfluß $\phi(E)$ ergibt sich gemäß $\phi(E) = n_0 v(E) p(E)$, wobei n_0 eine Normierungskonstante ist.

⁹Die Konstanten A und B hängen vom gespaltenen Nuklid und der Energie des eingefangenen Neutrons ab, die Konstante C dient der Normierung der Verteilungsfunktion $p(E)$. Für die Spaltung von ^{239}Pu durch thermische Neutronen ist $A = 0.966 \text{ MeV}$, $B = 2.842 \text{ MeV}^{-1}$ und $C = 2.818 \text{ MeV}^{-1}$, für die Werte verschiedener Nuklide siehe [Bri 93], Appendix H.

¹⁰Im allgemeinen unterscheidet sich die Temperatur des Moderators wesentlich von der Brennstofftemperatur. Die Energieverteilung der Neutronen wird jedoch durch elastische Stöße mit dem Moderator dominiert.

beschreiben, was sich klassisch dadurch erklären läßt, daß die Wahrscheinlichkeit einer Reaktion proportional zur Dauer des Aufenthalts der Neutronen in der Nähe des Kerns ist. Als thermischer Wirkungsquerschnitt σ^{th} wird daher oft nur der Wirkungsquerschnitt für Neutronen der Energie $E = 0.0253$ eV angegeben (für die Werte einiger wichtiger Nuklide siehe Tab. 3.1).¹¹

Im epithermischen Energiebereich sind die mikroskopischen Wirkungsquerschnitte der schweren Kerne durch das Auftreten von Resonanzen bestimmt.¹² Da sich somit im epithermischen Energiebereich der mikroskopische Wirkungsquerschnitt sehr stark mit der Energie ändert und der Neutronenfluß $\phi(E)$ sich in guter Näherung durch einen $1/E$ -Verlauf beschreiben läßt, wird als ein Maß für den Beitrag des Resonanzbereichs zum effektiven Wirkungsquerschnitt das Resonanzintegral

$$\sigma^{res} = \int_{0.5 \text{ eV}}^{1 \text{ MeV}} dE \frac{\sigma(E)}{E}$$

eingeführt [Fis 83]. Aufgrund des starken Abfalls des Neutronenflusses mit der Energie E hängt der Wert des Resonanzintegrals neben der Zahl der Resonanzen und deren Höhe auch von der Energie des Auftretens der ersten Resonanz E^{res} ab (siehe hierzu Tab. 3.1).

	σ_{γ}^{th} [barn]	σ_{γ}^{res} [barn]	E^{res} [eV]
²³⁵ U	99	168	0.27
²³⁸ U	5	346	4.39
²³⁸ Pu	542	162	2.88
²³⁹ Pu	271	194	0.30
²⁴⁰ Pu	290	7977	1.06
²⁴¹ Pu	365	193	0.26
²⁴² Pu	19	1124	2.65

Tabelle 3.1: Werte für σ_{γ}^{th} , σ_{γ}^{res} und die Energie der ersten Resonanz für einige wichtige Nuklide nach [Fis 83].

In einem Reaktor mit thermischem Neutronenspektrum ist der Beitrag der schnellen Neutronen zu (n, γ)- und (n,f)-Prozessen ist in aller Regel vernachlässigbar und

¹¹Der Energie $E = 0.0253$ eV entspricht eine absolute Temperatur von 293 K bzw. eine Neutronengeschwindigkeit von 2200 m/s. Der Wirkungsquerschnitt für eine Energie E ergibt sich aus σ^{th} zu $\sigma(E) = \sqrt{E^{th}/E} \sigma^{th}$.

¹²Der beim Einfang eines Neutrons entstehende Compound-Kern weist aufgrund der freiwerdenden Bindungsenergie des Neutrons eine Anregungsenergie von ca. 6 MeV auf. Der Abstand zwischen einzelnen Resonanzen liegt bei dieser Energie nur noch im Bereich von eV, die Breite solcher Resonanzen in der Größenordnung von meV. Für Neutronenenergien bis zu einigen hundert keV treten daher aufgelöste Resonanzen auf.

nur für solche Prozesse von Bedeutung, bei denen die Neutronen eine Schwellenenergie aufweisen müssen (z. B. (n,2n)-Reaktionen), welche i. d. R. in der Größenordnung von MeV liegt. Für die folgende Diskussion des Zusammenhangs zwischen der momentanen Nuklidzusammensetzung eines Brennstoffs und den Werten der effektiven Wirkungsquerschnitte spielen diese daher eine untergeordnete Rolle.

Effektive Wirkungsquerschnitte und Resonanzselbstabschirmung

Um aus dem prinzipiellen Verlauf von Neutronenfluß und effektiven Wirkungsquerschnitten auf die Rückwirkungen der Brennstoffzusammensetzung auf die effektiven Wirkungsquerschnitte zu schließen, ist es sinnvoll, den Anteil verschiedener Energiebereiche am effektiven Wirkungsquerschnitt einzelner Nuklide zu untersuchen. Bereits aus Tab. 3.1 ist ersichtlich, daß für einige Nuklide der thermische Wirkungsquerschnitt groß im Vergleich zum Wert des Resonanzintegrals (z. B. ^{239}Pu), für andere vernachlässigbar klein ist (z. B. ^{240}Pu). Um dies an repräsentativen Beispielen genauer zu untersuchen, ist in Tab. 3.2 der effektive Wirkungsquerschnitt für Strahlungseinfang σ_γ für verschiedene Nuklide in einzelne Energiegruppen g unterteilt, wobei

$$\sigma_\gamma^g = \int_{E^{g-1}}^{E^g} dE \sigma_\gamma(E) \phi(E) / \int_{0 \text{ MeV}}^{20 \text{ MeV}} dE \phi(E)$$

der Beitrag des Energieintervalls $[E^{g-1}, E^g]$ zum gesamten effektiven Wirkungsquerschnitt σ_γ darstellt. Es lassen sich die Nuklide in drei Gruppen einteilen:

- Vom thermischen Bereich dominierte Nuklide. Diese Gruppe weist einen hohen thermischen Wirkungsquerschnitt auf, welcher den effektiven Wirkungsquerschnitt bestimmt. Hierzu zählen insbesondere ^{235}U und ^{239}Pu , welche eine erste, ausgeprägte Resonanz im thermischen Bereich aufweisen. Diese bestimmt auch den Wert des thermischen Wirkungsquerschnitts (vergleiche Tab. 3.1).
- Nuklide mit einer dominanten Resonanz im unteren eV-Bereich. Bei diesen wird der effektive Wirkungsquerschnitt praktisch vollständig durch eine erste ausgeprägte Resonanz bestimmt. Zu dieser Gruppe zählen ^{240}Pu und ^{242}Pu (da die erste Resonanz des ^{240}Pu mit einer Energie von 1.06 eV genau zwischen den Energieintervallen $[0.1 \text{ eV}, 1 \text{ eV}]$ und $[1 \text{ eV}, 10 \text{ eV}]$ liegt, tragen in Tab. 3.2 beide Energiegruppen nennenswert zum effektiven Wirkungsquerschnitt bei).
- Vom Resonanzbereich dominierte Nuklide. Bei diesen trägt keine einzelne Resonanz wesentlich zum effektiven Wirkungsquerschnitt bei. Dies gilt z. B. für ^{238}U .

Entsprechend dieser Unterteilung beeinflussen diese Nuklide auch den Neutronenfluß $\phi(E)$ und somit die effektiven Wirkungsquerschnitte.

So bewirkt eine hohe Konzentration von Nukliden der ersten Gruppe eine starke Neutronenabsorption im thermischen Bereich, wodurch es zu einer Härtung des Spektrums kommt, d. h. die mittlere Energie der Neutronen nimmt zu (dies ist z. B. für

E^g [MeV]	^{238}U		^{239}Pu		^{240}Pu		^{242}Pu	
	σ_γ^g [barn]	$\sigma_\gamma^g/\sigma_\gamma$ [%]	σ_γ^g [barn]	$\sigma_\gamma^g/\sigma_\gamma$ [%]	σ_γ^g [barn]	$\sigma_\gamma^g/\sigma_\gamma$ [%]	σ_γ^g [barn]	$\sigma_\gamma^g/\sigma_\gamma$ [%]
10^{-9}	0.00	0.00	0.01	0.01	0.01	0.00	0.00	0.00
10^{-8}	0.01	0.63	0.49	0.68	0.58	0.25	0.04	0.12
10^{-7}	0.11	12.37	13.24	18.00	12.42	5.37	0.79	2.33
10^{-6}	0.10	10.92	54.47	75.00	37.98	16.44	0.80	2.36
10^{-5}	0.17	19.20	0.67	0.91	176.54	76.39	30.89	90.57
10^{-4}	0.20	22.42	2.78	3.80	2.34	1.01	0.89	2.61
10^{-3}	0.14	15.93	0.85	1.20	0.94	0.41	0.45	1.33
10^{-2}	0.08	8.99	0.21	0.29	0.17	0.08	0.13	0.38
10^{-1}	0.04	4.89	0.06	0.08	0.07	0.03	0.06	0.18
1	0.03	3.44	0.03	0.04	0.04	0.02	0.04	0.10
10	0.01	1.21	0.00	0.01	0.01	0.01	0.01	0.03
20	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
Gesamt	0.89	100.00	72.83	100.00	231.12	100.00	34.11	100.00

Tabelle 3.2: Anteile verschiedener Energieintervalle am effektiven Wirkungsquerschnitt für Strahlungseinfang in Uran-Brennstoff (2.83 wt% ^{235}U) zu Beginn des Abbrandes.

MOX-Brennstoff mit einer im Vergleich zu Uran-Brennstoff hohen Plutoniumkonzentration der Fall, siehe Abb. 3.1). Dieser Effekt führt bei allen Nukliden der ersten Gruppe zu einer Abnahme der effektiven Wirkungsquerschnitte. Auch der Aufbau der Spaltprodukte, welche zum Teil erhebliche thermische Wirkungsquerschnitte aufweisen, bewirkt eine Härtung des Spektrums.

Für Nuklide, deren effektiver Wirkungsquerschnitt durch Resonanzen festgelegt wird (in besonderem Maße, wenn es sich um eine ausgeprägte Resonanz handelt), tritt der Effekt der Resonanzselbstabschirmung auf. Liegt das entsprechende Nuklid in einer relevanten Konzentration vor, so kommt es an der Stelle der Resonanz zu einem Einbruch im Neutronenfluß $\phi(E)$ und damit zu einer Abnahme des effektiven Wirkungsquerschnitts dieses Nuklides. Auch dies wird in Abb. 3.1 deutlich. So ist dort sowohl für den Uran- als auch für den MOX-Brennstoff ein Einbruch des Spektrums bei 6.67 eV, der Energie einer ausgeprägten Resonanz des ^{238}U zu beobachten. Weiterhin kommt es für MOX-Brennstoff bei 0.30 eV (thermische Resonanz des ^{239}Pu), 1.06 eV (^{240}Pu) und 2.65 eV (^{242}Pu) zu einer deutlichen Reduzierung des Neutronenflusses (für eine ausführlichere Diskussion dieses Effekts siehe auch [G1a 98]).

Die in die Abbrandgleichungen (3.4) wesentlich eingehenden effektiven Wirkungsquerschnitte hängen also aufgrund der hier diskutierten Wechselwirkungen zwischen

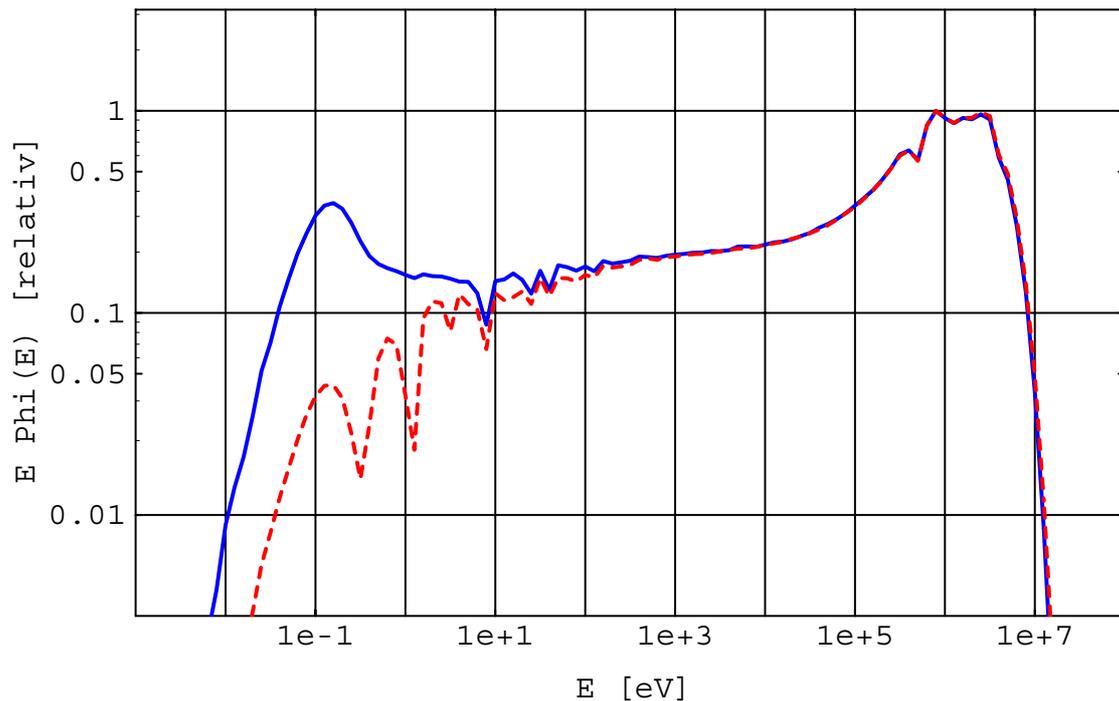


Abbildung 3.1: Das Neutronenspektrum für Uran-Brennstoff der Anreicherung 4 wt% (—) und für MOX-Brennstoff (- -) (Typ A, siehe Kap. 5), zu Beginn des Abbrandes.

Nuklidzusammensetzung und Neutronenfluß von der momentanen Brennstoffzusammensetzung ab. Die Bestimmung der zeitlichen Entwicklung der Brennstoffzusammensetzung setzt also eine simultane Ermittlung der effektiven Wirkungsquerschnitte voraus. Diese erfordert die Lösung des Neutronentransportproblems für eine vorgegebene Geometrie und Brennstoffzusammensetzung.

3.3.2 Monte-Carlo-Methode

Für die Bestimmung von abbrandabhängigen effektiven Wirkungsquerschnitten wird im Rahmen dieser Arbeit das Monte-Carlo Programm MCNP4A verwendet [Bri 93]. In diesem Abschnitt soll daher kurz die zugrundeliegende Monte-Carlo Methode und das Programmsystem MCNP vorgestellt werden.

Prinzip der Monte-Carlo Methode

MCNP (and any general Monte Carlo Code) is little more than a collection of random decision points with some simple arithmetic in between.

MCNP Handbuch, [Bri 93], p. 2–1

Die Ursprünge der *Monte-Carlo Methode* reichen bis zum *Manhattan Project* zurück: von Anfang an wurde die Monte-Carlo Methode zur Behandlung von Neutronentransportproblemen eingesetzt.¹³

Im Gegensatz zu den deterministischen Verfahren werden bei der Monte-Carlo Methode nicht die zugrundeliegenden Transportgleichungen gelöst, sondern vielmehr das Schicksal individueller Teilchen simuliert: dabei gehen lediglich mittlere freie Weglängen, Reaktionswahrscheinlichkeiten sowie Aussagen ein, die sich ggf. aus Impuls- und Energie-Erhaltung für individuelle Prozesse ergeben. Durch Verfolgung einer großen Anzahl von Teilchen und die Registrierung der dabei auftretenden Ereignisse können dann Aussagen über die statistische Häufigkeit der unterschiedlichen Prozesse getroffen werden.

In Abb. 3.2 sind einige solche Simulationen wiedergegeben.¹⁴

Zu den grundlegenden Eigenschaften von Monte-Carlo Rechnungen gehören insbesondere auch Verfahren zur Reduktion der statistischen Fehler. Diese Verfahren basieren in der Regel auf einer „intelligenten“ Verwendung der verfügbaren Rechenzeit. Die wesentlichen Konzepte seien hier kurz erwähnt:

Wichtung: Jedes Teilchen ist mit einer Wichtung W versehen, die bei seiner Erzeugung i. a. Eins gesetzt wird. Durch die unten beschriebenen Verfahren ist eine Manipulation der Wichtung W im Laufe der Simulation des Teilchens möglich.

Analoger und impliziter Einfang: Beim analogen Einfang führen (n, γ) -Prozesse zum Verlust eines Neutrons. Dies ist jedoch für Monte-Carlo Simulationen unerwünscht, da auf diese Weise Teilchen verloren gehen, die keinen oder nur einen geringen Beitrag zu den interessierenden Prozessen geleistet haben, obwohl (unter Umständen erhebliche) Rechenzeit für sie bereitgestellt wurde.

¹³Der erste explizite Hinweis zur Anwendung der Monte-Carlo Methode zur Lösung von Neutronentransportproblemen und Kritikalitätsberechnungen geht auf einen Brief *John von Neumanns* vom 11. März 1947 zurück. Weitere Personen, die sich an der Entwicklung der Monte-Carlo Methode in den 40'er und 50'er Jahren beteiligten, waren unter anderen *Enrico Fermi*, *Nicholas Metropolis* und *Stan Ulam*.

¹⁴Die Abbildung zeigt einen Schnitt durch ein typisches Brennelement, welches aus 17×17 Brennstäben besteht, wobei 25 Positionen unbesetzt sind. Diesen können mit Steuerstäben belegt werden. Untersucht wurde Uran-Brennstoff mit 4.0wt% ^{235}U -Anreicherung. Kommt es bei der Absorption eines Neutrons zu einer Spaltung, so wird die entsprechende Position vermerkt, um als Startpunkt für die nächste Neutronengeneration zur Verfügung zu stehen.

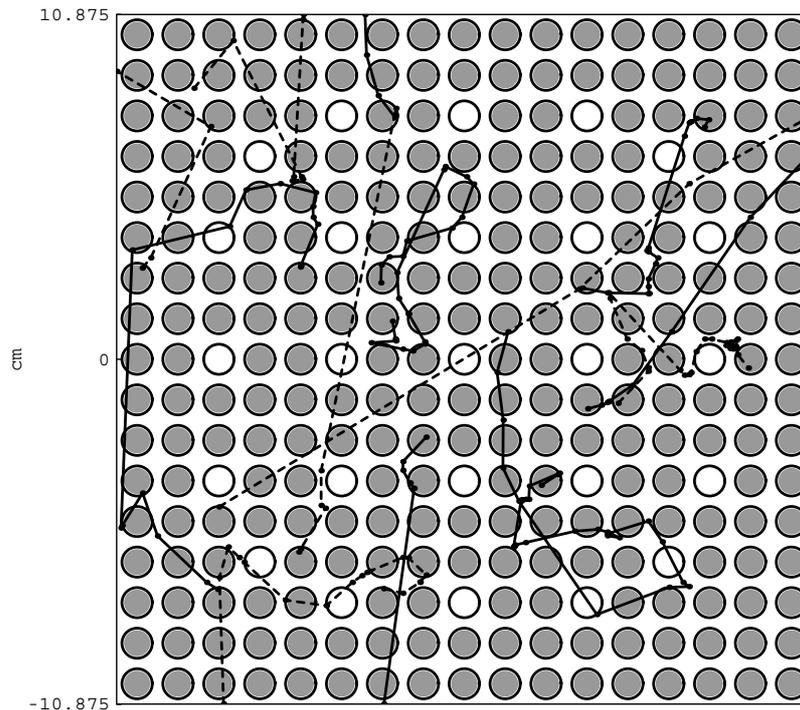


Abbildung 3.2: Zwölf Neutronenbahnen in einem typischen Brennelement. Monte-Carlo Simulation. Verschiedene sich überschneidende Bahnen sind unterschiedlich dargestellt.

In der Regel wird daher der implizite Teilcheneinfang simuliert: kommt es zu einer Kollision, wird die Wichtung des Teilchens zunächst um den Anteil der Einfangswahrscheinlichkeit reduziert; anschließend wird der physikalische Prozeß ausgewählt, wobei der Einfang — also: der Verlust — des Teilchens dann ausgeschlossen ist.

Russisches Roulette und Splitting: Diese Methoden dienen zur Kontrolle der Teilchen-Populationen im Phasenraum.

Gelangt ein Teilchen in einen Bereich der Geometrie oder der Energie, der für das betrachtete Problem von untergeordneter Bedeutung ist, oder wird seine Wichtung zu gering, so wird *Russisches Roulette* angewandt: mit hoher Wahrscheinlichkeit wird dieses Teilchen daraufhin verworfen; überlebt es jedoch, so wird seine Wichtung entsprechend erhöht.

Gelangt ein Teilchen hingegen in einen Bereich (Geometrie, Energie, Wichtung) mit hoher Priorität, so kann es durch mehrere Teilchen mit entsprechend geringerer Wichtung ersetzt werden (*Splitting*).

Durch diese Verfahren wird die Rechenzeit vorwiegend in Bereichen genutzt, die für das Ergebnis tatsächlich relevant sind.

Für einfache Problemstellungen kann auf einen umfassenden Einsatz dieser Verfahren unter Umständen verzichtet werden; reduziert sich die Bestimmung von effektiven Wirkungsquerschnitten auf die Durchführung von Einheitszellrechnungen (siehe hierzu Kap. 3.4), so spielen diese Verfahren nur eine untergeordnete Rolle. Insbesondere für große, dreidimensionale, heterogene, thermische Systeme, die sich durch niedrige Leckage und eine hohe Anzahl von Kollisionen pro Neutron auszeichnen, ist die Optimierung der Simulation von jedoch entscheidender Bedeutung.¹⁵ Sollen daher kompliziertere Konfigurationen untersucht werden (wie z. B. bei Brennelementrechnungen, siehe Kap. 4.1.1), erlauben diese Methoden eine deutliche Reduzierung der benötigten Rechenzeit.

3.3.3 Das Programmpaket MCNP4A

MCNP (Monte-Carlo N-Particle) ist ein Programm zur Lösung des Transportproblems für Neutronen, Photonen und Elektronen in beliebiger, dreidimensionaler Geometrie. Dabei können Neutronenenergien von 10^{-5} eV bis 20 MeV und Photonen/Elektronenenergien von 1 keV bis 1 GeV berücksichtigt werden; diese Energieintervalle werden durch die verfügbaren Datenbibliotheken festgelegt.

Durch die Verwendung von sog. *Tally-Karten*, kann der Anwender entscheiden, welche Informationen während der Simulation „gesammelt“ und anschließend ausgewertet werden sollen.¹⁶ MCNP stellt verschiedene Tallies zur Verfügung, insbesondere die Bestimmung des Neutronenflusses in einer Zelle. Dieser wird über die Weglängenabschätzung (*Track Length Estimate*) ermittelt, welcher

$$\frac{1}{V} \int_V \int_E \int_t \phi(E, \vec{r}, t) dt dE dV = \frac{1}{V} \int_V \int_E \int_s n(\vec{r}, E, t) ds dE dV$$

zugrundeliegt. MCNP bestimmt dieses Integral, indem es die zurückgelegten Wege aller Teilchen innerhalb einer Zelle summiert.

Über sog. *Multiplikatorkarten* können die Standardtallies von MCNP wesentlich erweitert werden. Insbesondere läßt sich das Tally zur Bestimmung des Neutronenflusses

$$\int \phi(E) dE \quad \text{in} \quad \int R(E) \phi(E) dE$$

überführen. Darin ist $R(E)$ eine beliebige Kombination energieabhängiger Größen, die MCNP von den Datenbibliotheken zur Verfügung gestellt werden; beispielsweise also $R(E) = \sigma^i(E)$, womit sich die Reaktionsrate gemäß Gl. (3.1) ergibt.¹⁷ Aus den Reaktionsraten können durch Division durch den totalen Neutronenfluß nach Gl. (3.3) die

¹⁵Vergl. MCNP Handbuch, p. 1–11: „For many problems, variance reduction is not just a way to speed up the problem but it is absolutely necessary to get any answer at all.“

¹⁶Durch die Angabe von Energie-Intervallen, sog. *Bins* für ein Tally kann der zu bestimmende Wert in Energiegruppen getrennt gesammelt werden.

¹⁷Hier erweist sich die Weglängenabschätzung als statistisch sehr zuverlässig, da (kleinere) Zellen zwar ohne Kollision durchquert werden, die Weglänge aber dennoch einen Beitrag zur Reaktionsrate liefert.

zugrundeliegenden Eingruppenquerschnitte bestimmt werden, wobei der Einfluß der Resonanzselbstabschirmung implizit berücksichtigt ist.

Die Bestimmung von effektiven Wirkungsquerschnitten in einer Einheitszelle aus Brennstoff, Hüllrohr und Moderator (siehe Kap. 4.1.1) basiert z. B. auf der Verfolgung von 300 000 Neutronen, wobei die Erzeugung von etwa 140 Millionen Zufallszahlen notwendig ist.¹⁸ Weitere simulationsspezifische Daten sind in Tab. 3.3 zusammengestellt. Die sich aus einer solchen Situation ergebenden effektiven Wirkungsquerschnitte wei-

	Brennstoff	Hüllrohr	Moderator
Anzahl der Bahnen:	5 100 000	10 500 000	15 000 000
Kollisionen:	1 900 000	300 000	6 700 000

Tabelle 3.3: Daten für eine typische MCNP-Simulation bei Verfolgung von 300 000 Neutronen.

sen dann typische statistische Fehler von 0.2 % für häufig auftretende wie (n, γ)- bzw. (n,f)- und etwa 1–10 % für unwahrscheinliche wie (n,2n)- bzw. (n,3n)-Prozesse auf.

Neben den statistischen Fehlern gehen in die Bestimmung der effektiven Wirkungsquerschnitte jedoch auch systematische Fehler ein. Zum einen spielt die Genauigkeit der zugrundegelegten mikroskopischen Wirkungsquerschnitte $\sigma(E)$ eine entscheidende Rolle. Weiterhin beeinflussen auch bestimmte Betriebsgrößen eines Reaktors die Werte der effektiven Wirkungsquerschnitte, insbesondere weisen diese eine Abhängigkeit von der Temperatur von Brennstoff und Moderator auf.

Wenn auch eine detaillierte quantitative Abschätzung der systematischen Fehler bei der Bestimmung der effektiven Wirkungsquerschnitte für die einzelnen Nuklide im Rahmen dieser Arbeit nicht geleistet werden kann, so sollen doch diese Effekte im folgenden kurz diskutiert und ihr Einfluß auf die zu erwartende Genauigkeit der Abbrandrechnungen grob abgeschätzt werden.

Datenbasis: In die Berechnung der effektiven Wirkungsquerschnitte gehen die als bekannt vorausgesetzten mikroskopischen Wirkungsquerschnitte $\sigma(E)$ ein. Während für die wesentlichen Uran-Isotope die mikroskopischen Querschnitte mit sehr großer Genauigkeit vermessen wurden, ist bei vielen anderen Nukliden noch mit hohen Ungenauigkeiten bei den zugrundegelegten mikroskopischen Querschnitten zu rechnen.

Besonders kritisch ist die Bestimmung des Querschnittsverlaufs bei Nukliden, die eine dominante Resonanz im eV-Bereich aufweisen (z. B. ²⁴⁰Pu und ²⁴²Pu, jedoch auch ²⁴⁴Cm und andere), welche den effektiven Wirkungsquerschnitt bestimmt. Bei diesen ist eine genaue Messung der Resonanzbreiten Γ nötig. Selbst für das bereits in konventionellen Uran-Brennstoffen in relevanten Mengen produzierte

¹⁸Ein PC mit einem Pentium Prozessor bei 60MHz benötigt (unter Linux) für eine solche Simulation ca. 6–7 Stunden.

^{240}Pu sind jedoch auch zwischen neueren Messungen noch Abweichungen der Resonanzbreite der 1.06 eV Resonanz von bis zu 8 % zu beobachten, was zu einem Unterschied von 1.2 % für den thermischen Wirkungsquerschnitt und von 4.5 % für den Wert des Resonanzintegrals führt [Tel 96].

Um den Einfluß der zugrundegelegten mikroskopischen Wirkungsquerschnitte auf die Bestimmung der effektiven Wirkungsquerschnitte abzuschätzen, wurden für einen Brennstoff mit hohem Plutonium-Gehalt (MOX-A, Beginn des Abbrandes, siehe Kap. 5) die effektiven Wirkungsquerschnitte verschiedener Nuklide unter Verwendung unterschiedlicher, in MCNP4A zur Verfügung stehender Wirkungsquerschnitts-Bibliotheken berechnet.¹⁹ Die Ergebnisse sind in Tab. 3.4 zusammengefaßt. Die angegebenen Fehler ergeben sich aus den von MCNP4A bestimmten statistischen Fehler (bei dieser Rechnung jeweils ca. 0.2 %).

Vergleicht man zunächst nur solche Bibliotheken, welche für die selbe Temperatur erstellt wurden, so tritt eine Abweichungen von 20 % auf (^{238}U), die mittlere Abweichung beträgt ansonsten jedoch weniger als 3 %. Auf den Einfluß verschiedener Temperaturen auf die effektiven Wirkungsquerschnitte soll im nächsten Abschnitt eingegangen werden.

Nuklid	T [K]	Bibliothek	σ_γ [barn]
^{238}U	0	ENDL-85	0.848 ± 0.002
	300	ENDF5T	0.894 ± 0.002
	300	RMCCS	0.745 ± 0.001
	600	EPRIXS	0.782 ± 0.002
	900	EPRIXS	0.809 ± 0.002
^{239}Pu	300	ENDF5P	11.28 ± 0.02
	300	ENDF5T	11.58 ± 0.02
	300	RMCCS	11.31 ± 0.02
^{240}Pu	0	D9	23.69 ± 0.05
	300	RMCCS	19.36 ± 0.04
	900	BMCCS	19.68 ± 0.04
^{242}Pu	0	ENDL-85	6.88 ± 0.01
	300	ENDF5P	6.07 ± 0.01

Tabelle 3.4: Mit unterschiedlichen MCNP-Bibliotheken bestimmter effektiver Wirkungsquerschnitt für Strahlungseinfang in einem Brennstoff mit hohem Plutonium-Gehalt zu Beginn des Abbrandes (MOX-A, siehe Kap. 5).

¹⁹Für eine Beschreibung existierender Bibliotheken siehe [Bri 93], Appendix G.

Temperaturen: Die effektiven Wirkungsquerschnitte weisen auch eine Abhängigkeit von der Temperatur des Brennstoffs und des Moderators auf. Dies ist auf mehrere Effekte zurückzuführen, welche bei der Berechnung der effektiven Querschnitte in geeigneter Weise berücksichtigt werden müssen.

So weisen bereits die mikroskopischen Wirkungsquerschnitte $\sigma(E)$ eine Temperaturabhängigkeit auf, welche wesentlich auf eine Dopplerverbreiterung der Resonanzen zurückzuführen ist. Besonders relevant ist dieser Effekt für alle Nuklide, deren effektiver Wirkungsquerschnitt durch den Resonanzbereich bzw. eine erste dominante Resonanz bestimmt wird (z. B. ^{238}U , ^{240}Pu , ^{242}Pu). Zwar bleibt bei einer Dopplerverbreiterung die Fläche unter einer Resonanz unverändert, so daß sich in erster Näherung keine Änderung der Reaktionsrate ergibt (der Neutronenfluß $\phi(E)$ ist über die Breite einer Resonanz im eV-Bereich praktisch konstant). Kommt es jedoch zum Effekt der Resonanzselbstabschirmung (siehe Kap. 3.3), so führt eine Verbreiterung der Resonanz zu einer Abnahme des Einbruchs im Neutronenfluß $\phi(E)$ an der Stelle der Resonanz; der effektive Wirkungsquerschnitt nimmt daher zu.

Die Verwendung von Wirkungsquerschnitts-Bibliotheken, welche nicht für die im Reaktor vorliegende Temperatur erstellt wurden, führt somit zu einem systematischen Fehler. In Tab. 3.4 sind die effektiven Wirkungsquerschnitte unter Verwendung verschiedener Bibliotheken bei ansonsten unveränderten Bedingungen angegeben.²⁰

Als repräsentativ für den Effekt der Dopplerverbreiterung der Resonanzen und des daraufhin mit steigender Temperatur zunehmenden effektiven Wirkungsquerschnitts können die Werte von σ_γ des ^{238}U angesehen werden, welche mit den Bibliotheken RMCCS und EPRIXS für Temperaturen von 300 K, 600 K und 900 K bestimmt wurden. Hier nimmt der effektive Querschnitt mit steigender Temperatur um 5.0 % bzw. 3.5 % zu. Werden zur Bestimmung der effektiven Querschnitte von ^{240}Pu und ^{242}Pu bei einer Brennstofftemperatur von 900 K für 300 K erstellte Bibliotheken verwendet, so muß in Abhängigkeit von der vorliegenden Nuklidkonzentration (und damit der Stärke der Resonanzselbstabschirmung) entsprechend mit einem systematischen Fehler von bis zu 10 % gerechnet werden.

Neben Unterschieden in der Brennstofftemperatur führen auch verschiedene Moderatortemperaturen zu Änderungen der effektiven Wirkungsquerschnitte.

Um dies zu berücksichtigen stehen für die Behandlung der Neutronenthalisierung durch Streuung an Molekülen (z. B. Wasser) spezielle Wirkungsquerschnittsdateien zur Verfügung. Diese Bibliotheken sind für vorgegebene Temperaturen (300 K, 600 K und 900 K) erstellt und können nicht ohne weiteres an

²⁰Sowohl für ^{238}U als auch ^{240}Pu und ^{242}Pu ergeben sich bei Verwendung der für 0 K erstellten Bibliothek deutlich höhere effektive Wirkungsquerschnitte, als bei den für höhere Temperaturen erstellten Bibliotheken. Dies steht im Widerspruch zu obiger Diskussion und ist auf Unterschiede in den zugrundeliegenden Bibliotheken zurückzuführen.

problemspezifische Temperaturen angepaßt werden.

Weitere Einflüsse der Temperatur betreffen eine Änderung der Dichte des Moderators²¹ sowie die mittlere kinetische Energie der thermischen Neutronen²².

Aufgrund dieser systematischen Fehler kann es für einzelne Nuklide bei der Bestimmung der effektiven Wirkungsquerschnitte zu Fehlern von bis zu zehn Prozent kommen. Eine detaillierte und nuklidspezifische Bestimmung der eingehenden systematischen Fehler kann jedoch im Rahmen dieser Arbeit nicht geleistet werden.²³

3.4 Abbrandrechnungen

Die Durchführung von Abbrandrechnungen läßt sich prinzipiell in zwei Schritte unterteilen [Eme 93]:

Zellabbrandrechnungen: Für die Bestimmung der abbrandabhängigen Nuklidzusammensetzung eines Brennstoffs spielen die effektiven Wirkungsquerschnitte der einzelnen Nuklide eine wesentliche Rolle. Diese werden neben der Brennstoffzusammensetzung selbst auch von typischen makroskopischen Bestrahlungskenngrößen eines Reaktors beeinflusst.²⁴ Unter der Annahme mittlerer Werte für diese lassen sich mittels Einheitszellrechnungen die effektiven Wirkungsquerschnitte für eine vorgegebene Brennstoffzusammensetzung bestimmen und damit die Abbrandgleichungen (3.4) lösen (siehe Kap. 4). Man erhält somit die effektiven Wirkungsquerschnitte und die Nuklidzusammensetzung eines Brennstoffs in Abhängigkeit vom Abbrand, was für einzelne Elemente Aussagen über mittlere Umsatzraten, Isotopenvektoren oder auch die Radiotoxizität des Brennstoffs bei Erreichen eines bestimmten Abbrandes ermöglicht.

Reaktorabbrandrechnungen: Um den erreichbaren Abbrand eines Brennstoff in Abhängigkeit von der Bestrahlungsgeschichte im Reaktor zu bestimmen, sowie um die räumliche Abbrandverteilung innerhalb eines vorgegebenen Brennelementes zu ermitteln, müssen dann Reaktorabbrandrechnungen durchgeführt werden. In einem iterativen Verfahren werden hierbei für eine vorgegebene Beladung eines Reaktor-Kerns die räumliche Neutronenfluß- und Leistungsdichteverteilung

²¹Die Dichte des Wassers bei typischen DWR-Betriebstemperaturen und Drücken beträgt ca. 70 % der Dichte bei Zimmertemperatur.

²²Neben den speziellen, für die Behandlung der Neutronenthalisierung zur Verfügung stehenden Bibliotheken kann hierfür im der MCNP-Eingabedatei explizit eine Temperatur angegeben werden

²³Eine Untersuchung der Genauigkeit der im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Abbrandrechnungen erfolgt jedoch in Kap. 5.

²⁴Zu den makroskopischer Bestrahlungskenngrößen eines Reaktors gehören sowohl die mittlere Kühlmitteldichte und -temperatur und die Brennstofftemperatur, aber auch z. B. die Borsäurekonzentration im Kühlmittel. Beim Betrieb eines Reaktors wird die anfängliche Überreaktivität des Reaktor-Kerns durch Borsäure im Kühlmittel kompensiert. Im Verlaufe des Abbrandes nimmt die Reaktivität des Kerns ab, was durch eine Reduzierung der Borsäure-Konzentration ausgeglichen wird.

sowie die momentanen Werte der makroskopischen Bestrahlungskenngrößen bestimmt und damit für einen Zeitschritt der erreichte Abbrand einzelner Brennelemente (bzw. die räumliche Abbrandverteilung innerhalb eines Brennelementes) berechnet.²⁵ Das Beladeschema eines Reaktors ist dann so zu optimieren, daß ein möglichst hoher und gleichmäßiger Abbrand im Brennelement erreicht wird. Da im Rahmen dieser Arbeit speziell Aussagen über erzielbare Umsatzraten ermittelt werden sollen, kann auf die Durchführung von Reaktorabbrandrechnungen zunächst verzichtet werden.

²⁵Generell wird ein möglichst gleichmäßiger Abbrand der Brennelemente angestrebt, um eine gute Brennstoff-Ausnutzung zu erreichen. So betragen z. B. in axialer Richtung die Abweichungen vom mittleren erreichten Abbrand etwa 5 %, nur in den Randzonen des Brennelementes ist der erreichte Abbrand deutlich niedriger (ca. 30 %) (siehe [Eme 93], S. 325 ff.)

Kapitel 4

Zellabbrandrechnungen

*Now does my project gather to a head.
My charms crack not, my spirits obey, and time
Goes upright with his carriage.*

W. Shakespeare, The Tempest.

Die den zeitlichen Verlauf der Nuklidkonzentrationen bestimmenden Abbrandgleichungen (3.4) stellen in Kombination mit der Berechnung des Neutronenflusses $\phi(E)$ und der effektiven Wirkungsquerschnitte $\sigma(\vec{r}, t)$ ein System von gekoppelten nicht-linearen¹ Differentialgleichungen dar. Durch einfache Annahmen zur räumlichen und zeitlichen Abhängigkeit sowohl von effektiven Wirkungsquerschnitten wie totalem Neutronenfluß lassen sich die Gleichungen zu gekoppelten linearen Differentialgleichungen erster Ordnung mit konstanten Koeffizienten umformen, welche mittels geeigneter Computer-Codes gelöst werden können.

Die einzelnen Schritte dieser Vorgehensweise sowie die konkrete Umsetzung sollen in diesem Kapitel erläutert werden. Hierzu werden in einem ersten Schritt die vorgenommenen Näherungen diskutiert (Kap. 4.1). Diese führen zu einem iterativen Vorgehen bei der Lösung der Abbrandgleichungen, welches in Abschnitt 4.2 vorgestellt wird. Für die Bestimmung der effektiven Wirkungsquerschnitte wird dabei das Monte Carlo Programm MCNP4A (siehe Kap. 3.3) verwendet. In jedem Zeitschritt dieses iterativen Verfahrens reduziert sich das Problem dann auf die Lösung der Abbrandgleichungen für die Aktiniden (Kap. 4.3.1) und die Spaltprodukte (Kap. 4.3.3), wofür im Rahmen dieser Arbeit geeignete *Mathematica*-Routinen entwickelt wurden [Wol 92].

¹Die Nuklidkonzentrationen gehen entscheidend in die Bestimmung des Neutronenflusses $\phi(E)$ und damit in die Berechnung der effektiven Wirkungsquerschnitte ein, siehe Kap. 3.3.

4.1 Näherungen zur Lösung der Abbrandgleichungen

Bei der Bestimmung der Nuklidzusammensetzungen vorgegebener Brennstoffe kann als kleinste in einen LWR be- und entladene Einheit ein vollständiges Brennelement angenommen werden. Dieses besteht typischerweise aus einheitlichen Brennstäben gleicher Anfangszusammensetzung, welche mittels Abstandshaltern und anderen Strukturmaterialien in einem regelmäßigen Gitter angeordnet sind.² Eine Anzahl von Brennstabpositionen bleibt hierbei für Steuerstäbe frei (siehe Abb. 4.2).

Die Durchführung von Zellabbrandrechnungen dient der Bestimmung der Brennstoffzusammensetzung bei einem erreichten Abbrand. Die zeitliche Veränderung dieser Zusammensetzung ist durch die Abbrandgleichungen (3.4) bestimmt, in welche wesentlich der Neutronenfluß $\phi(E, \vec{r}, t)$, die lokale Leistungsdichte $P(\vec{r}, t)$ und die momentane Nuklidzusammensetzung eingehen. Hier können nun einige vereinfachende Annahmen gemacht werden, welche es erlauben sollen, die Orts- und Zeitabhängigkeit der Koeffizienten der Abbrandgleichungen in konsistenter Weise bei der Lösung des Differentialgleichungssystems zu berücksichtigen. Welcher Abbrand für ein Brennelement beim Einsatz im Reaktor erreicht werden kann und wie stark sich der erreichte Abbrand innerhalb eines Brennelements unterscheidet ist durch Reaktorabbrandrechnungen zu ermitteln (siehe Kap. 3.4).

4.1.1 Ortsabhängigkeit der Abbrandgleichungen

Bezüglich der Ortsabhängigkeit der in die Gleichungen (3.4) eingehenden Größen lassen sich einige vereinfachende Annahmen zugrundelegen (siehe auch [Fis 83]):

- Im Reaktor wird sowohl in axialer wie radialer Richtung eine möglichst flache Leistungsverteilung angestrebt. Innerhalb eines Brennelements verändert sich daher die Leistungsdichte von Stab zu Stab kaum. In axialer Richtung kommt es nur in den Randzonen zu einem Abfall der Leistungsdichte, was für die Bestimmung von gemittelten Inventargrößen vernachlässigt werden kann.³ Kommt es bei einem Brennelement am Kern-Rand zu einer geringeren Leistungsfreisetzung, so wird dies durch einen späteren Einsatz des Brennelements nach Umladung in die Kern-Mitte durch eine höhere Leistungsfreisetzung ausgeglichen. Somit kann für

²Die Anreicherung einzelner Brennstäbe eines Brennelementes kann jedoch variieren. So werden z. B für MOX-Brennstoffe mit hohem Plutonium-Gehalt Brennelemente verwendet, welche einen unterschiedlichem Gehalt an spaltbaren Isotopen in verschiedenen Brennstäben aufweisen, um eine möglichst gleichmäßige Leistungsverteilung im Brennelement zu erreichen [NEA 95a], [Bur 96].

³Für den Fall der möglichst vollständigen Eliminierung des anfänglichen Plutoniuminventars können solche Randeffekte jedoch von Bedeutung sein, da es natürlich zu einem inhomogenen Abbrand eines Brennelements sowohl in axialer als auch radialer Richtung kommen kann. Auf solche Heterogenitätseffekte kann jedoch im Rahmen dieser Arbeit nicht eingegangen werden. Hierzu müssen Reaktorabbrandrechnungen für einen konkreten Reaktor-Kern durchgeführt werden (siehe Kap. 3.4).

ein typisches Brennelement die lokale Leistungsdichte $P(\vec{r}, t)$ durch eine gemittelte, zeitlich konstante Leistungsdichte \bar{P} ersetzt werden.

- In den Randzonen des Reaktors kommt es zu Veränderungen des Neutronenflusses $\phi(E)$. Neben den zeitweise in den oberen Bereich des Reaktors eingefahrenen Steuerstäben, sind diese Änderungen auf Neutronenleckage und Rückstreuung von Neutronen durch axiale und radiale Reflektoren zurückzuführen. Da sich solche Einflüsse auf die Randzonen beschränken, können sie bei der Bestimmung von gemitteltem Inventar vernachlässigt werden.
- Wegen der mittleren Reichweite von Neutronen im Reaktor, welche in der Größenordnung der radialen Brennelement-Abmessungen liegt, wird der Neutronenfluß innerhalb eines Brennelementes nur durch das Brennelement selbst und die unmittelbar benachbarten Brennelemente bestimmt. Haben diese etwa gleichen Abbrand und damit etwa gleiche Nuklidzusammensetzungen, so kann der Neutronenfluß durch eine Einheitszellrechnung bestimmt werden.⁴ Sollen in einem Bereich des Reaktors Brennelemente mit stark unterschiedlichem Abbrand an benachbarten Positionen eingesetzt werden, kann für eine genauere Bestimmung des Neutronenflusses auch eine Brennelementrechnung durchgeführt werden.⁵

- **Einheitszellrechnung:** Bei der Berechnung des Neutronenflusses und der effektiven Wirkungsquerschnitte in MCNP4A wird die Möglichkeit genutzt, ein unendliches Gitter zu simulieren. Dieses besteht aus einer Einheitszelle mit der Geometrie eines Brennstabes im Brennelement-Gitter.⁶ Hier werden Brennstoff, Hüllrohrmaterial und Moderator (unter Umständen auch ein produktionsbedingter Spalt zwischen Brennstoff und Hüllrohrmaterial) berücksichtigt (siehe Abb. 4.1). Somit wird der Neutronenfluß für ein unendliches Gitter aus Brennstäben gleicher Zusammensetzung bestimmt.⁷ Einflüsse durch Steuerstäbe bzw. Steuerstab-Führungsrohre auf die Periodizität des Neutronenflusses im Brennstabgitter werden hierbei vernachlässigt.

⁴Bei der herkömmlichen Beladung von DWR's werden Brennelemente drei Zyklen lang im Reaktor-Kern eingesetzt. Dabei befinden sich die frischen Brennelemente auf den Randpositionen, während im Zentrum abwechselnd Brennelemente des zweiten bzw. dritten Abbrand-Zyklus angeordnet werden. Die Annahme von etwa gleichem Abbrand benachbarter Brennelemente ist also nur schlecht erfüllt.

⁵Hierbei wird die besondere Fähigkeit von MCNP4A zur Simulation beliebiger dreidimensionaler Geometrien, insbesondere auch von periodischen Gittern und der Wiederholung gleicher Strukturen ausgenutzt.

⁶In axialer Richtung ist die Zelle nicht abgeschlossen, die Periodizität des Gitters in radialer Richtung wird erreicht, indem Neutronen, welche die Zelle durch eine Seitenflächen verlassen, mit gleicher Richtung an der entgegengesetzten Seite wieder in die Zelle eintreten.

⁷Durch die Annahme einer konstanten Leistungsdichte \bar{P} für das gesamte Brennelement und eines im gesamten Brennelement gleichen Neutronenflusses $\phi(E, t)$, verlieren die Koeffizienten der Abbrandgleichungen (3.4) ihre Ortsabhängigkeit, so daß auch die Nuklidkonzentrationen innerhalb eines Brennelements ihre Ortsabhängigkeit verlieren (bei homogener Anfangszusammensetzung des Brennstoffs). Erst dadurch ist natürlich die Berechnung des Neutronenflusses durch ein unendliches Gitter aus identischen Brennstäben gerechtfertigt.

Bei der Bestimmung des Verhältnisses von Moderator- zu Brennstoffvolumen wird jedoch das Fehlen von Brennstäben an den Steuerstab-Positionen berücksichtigt.

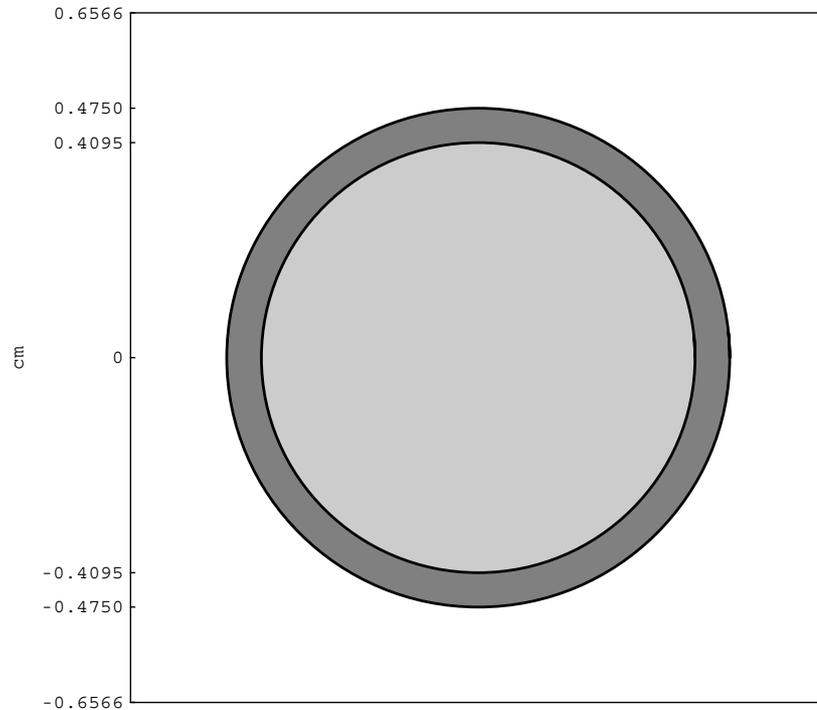


Abbildung 4.1: Geometrie einer Einheitszelle. Die zugrundegelegten Abmessungen gelten für MOX-Brennstoff nach [NEA 95b].

- **Brennelementrechnung:** Ist für genauere Berechnungen des nuklearen Inventars eines Reaktors der Einfluß benachbarter Brennelemente auf den Neutronenfluß eines untersuchten Elements von Bedeutung (z.B. bei heterogener Zusammensetzung des Reaktor-Kerns aus frischen und bereits abgebrannten Brennelementen), so kann neben einer einfachen Einheitszellerechnung für die Bestimmung der effektiven Wirkungsquerschnitte auch eine Simulation einer Gruppe von Brennelementen durchgeführt werden. Die einzelnen Brennelemente werden hierbei in MCNP4A als regelmäßiges Gitter bestehend aus Brennstab-Einheitszellen aufgebaut, wobei einige Positionen für Steuerstäbe reserviert sind (siehe Abb. 4.2). Ein so definiertes Brennelement kann dann wiederum die Einheitszelle eines größeren Brennelement-Gitters bilden, wobei die einzelnen Gitterpositionen durch Brennelemente mit unterschiedlichem Abbrand besetzt werden können (prinzipiell sind in dieser Weise auch Simulationen eines vollständigen Reaktor-Kerns möglich). Hierfür ist natürlich die Kenntnis der Nuklidzusammensetzungen des Brennelements in Abhängigkeit vom Abbrand nötig, welche man in einer ersten Näherung mittels einer Einheitszellerechnung bestimmt.

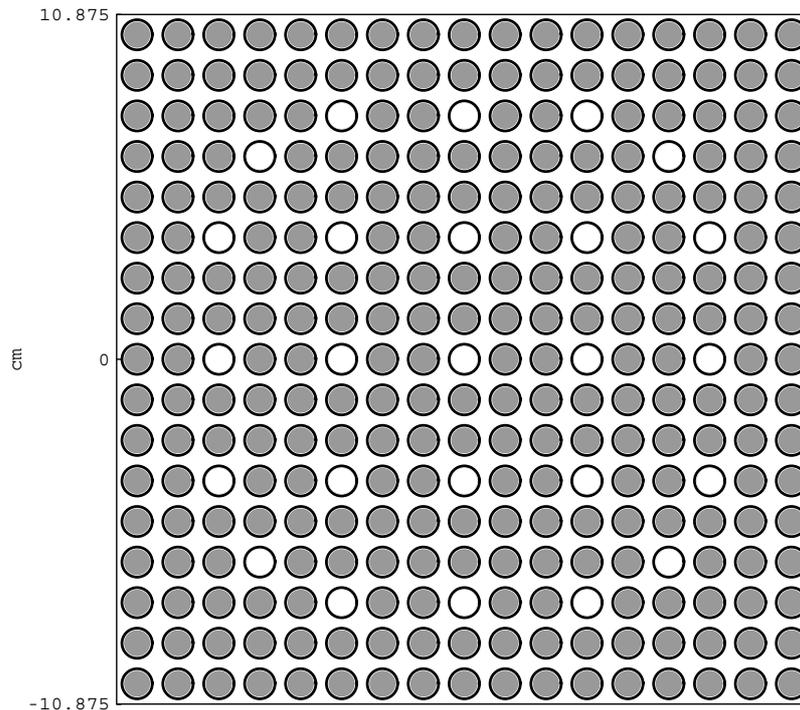


Abbildung 4.2: Aufbau eines Brennelements aus Brennstäben (grau) und freien Steuerstab-Führungsrohren (weiß) für ein 17x17 Brennelement.

4.1.2 Zeitabhängigkeit von effektiven mikroskopischen Wirkungsquerschnitten und Neutronenfluß

Im Verlauf der Bestrahlung eines Brennelements im Reaktor ändert sich die Materialzusammensetzung infolge der Konzentrationsänderung der Aktiniden und der Bildung von Spaltprodukten. Dies führt zu einer Veränderung des Neutronenflusses $\phi(E, \vec{r}, t)$, welche sich in einer Änderung der effektiven Wirkungsquerschnitte $\sigma(\vec{r}, t)$ niederschlägt. Hierfür sind im wesentlichen zwei Effekte von Bedeutung (siehe auch Kap. 3.3).

Zum einen nimmt bei einer Härtung des Neutronenspektrums der Wert derjenigen effektiven Wirkungsquerschnitte ab, welche vom thermischen Bereich bestimmt werden. So kommt es bei konventionellen Uran-Brennstoffen im Verlaufe des Abbrandes zu einem Aufbau an Transuranen, welche hohe Wirkungsquerschnitte im thermischen Bereich aufweisen. In Kombination mit der Entstehung der Spaltprodukte führt dies zu einer abbrandabhängigen Härtung des Spektrums und damit zu einer Abnahme derjenigen effektiven Wirkungsquerschnitte, welche vom thermischen Bereich dominiert werden (siehe Tab. 4.1). In plutoniumhaltigen Brennstoffen (z. B. MOX) ist dagegen die Konzentration von Nukliden, die im thermischen Bereich stark Neutronen absorbieren, bereits zu Beginn des Abbrandes sehr hoch. Nimmt diese daher im Laufe des Abbrandes ab, wird das Neutronenspektrum weicher und die effektiven Wirkungsquerschnitte nehmen zu.

Weiterhin beeinflußt eine Konzentrationsänderung eines Nuklid durch Resonanzselbstabschirmung dessen effektiven Wirkungsquerschnitt $\sigma(\vec{r}, t)$. Dies ist besonders für die Nuklide ^{240}Pu und ^{242}Pu von Bedeutung. Nimmt die Konzentration dieser Nuklide im Laufe des Abbrandes zu, so sinken die effektiven Wirkungsquerschnitte. Während z. B. in Uran-Brennstoff die Konzentration von ^{240}Pu im Verlauf des gesamten Abbrandes zunimmt, wird in MOX-Brennstoff bei ca. 14 MWd/kg Abbrand ein Maximum der ^{240}Pu -Konzentration erreicht, welcher ein Minimum des effektiven Wirkungsquerschnitts entspricht (siehe Tab. 4.1). Die Konzentration des ^{242}Pu nimmt sowohl bei Uran-Brennstoff, als auch bei dem untersuchten MOX-Brennstoff im Laufe des gesamten Abbrandes zu.

Abbrand	^{239}Pu		^{240}Pu		^{242}Pu	
	Uran	MOX	Uran	MOX	Uran	MOX
0 MWd/kg	176.0	53.2	227.4	40.3	34.4	21.3
10 MWd/kg	147.5	55.5	164.5	39.9	35.3	20.1
20 MWd/kg	139.1	59.6	126.6	39.8	33.8	19.0
30 MWd/kg	135.8	63.9	107.8	41.0	32.1	18.0
40 MWd/kg	134.9	68.5	96.7	42.4	29.7	17.0
50 MWd/kg	134.3	72.8	89.6	44.3	27.9	16.4

Tabelle 4.1: Effektive Wirkungsquerschnitte für Neutronenabsorption [barn] einiger ausgewählter Plutonium-Isotope für Uran-Brennstoff (4 wt% ^{235}U) und MOX-Brennstoff (Typ B, siehe Kap. 5.1.2, 4 wt% Pu_{fis}) bei verschiedenen Abbränden.

Durch diese Effekte kommt es zu einer abbrandabhängigen Änderung der effektiven Wirkungsquerschnitte, welche für eine konsistente Berechnung des nuklearen Inventars berücksichtigt werden müssen. Um die Größenordnung dieses Effekts abschätzen zu können, ist in Abb. 4.3 die Entwicklung der Nuklidkonzentration von ^{239}Pu einmal mit Anpassung der effektiven Wirkungsquerschnitte an den Abbrand und einmal ohne diese dargestellt. Die Konzentration des ^{239}Pu bei einer Rechnung ohne Anpassung der Querschnitte ist bei 50 MWd/kg Abbrand um 20 % höher als bei einer Rechnung mit Anpassung der Querschnitte (dies ist zu vergleichen mit einer erzielten Genauigkeit der Konzentrationsbestimmung in der Größenordnung von 2 %, siehe Kap. 5.3).

Aus der abbrandabhängigen Änderung der effektiven Querschnitte ergibt sich unmittelbar eine weitere Konsequenz. Beim Betrieb eines Reaktors wird die erwünschte Leistungsdichte vorgegeben. Um diese zu erreichen, muß nach Gl. (3.5) der totale Neutronenfluß $\phi_{tot}(\vec{r}, t)$ entsprechend den effektiven Wirkungsquerschnitten variiert werden.

Kommt es im Laufe des Abbrandes zu einer Härtung des Spektrums, so nehmen die effektiven Wirkungsquerschnitte für die Spaltung von ^{235}U und ^{239}Pu ab, da diese vom thermischen Bereich dominiert werden (siehe Kap. 3.3). Um eine gleichbleibende

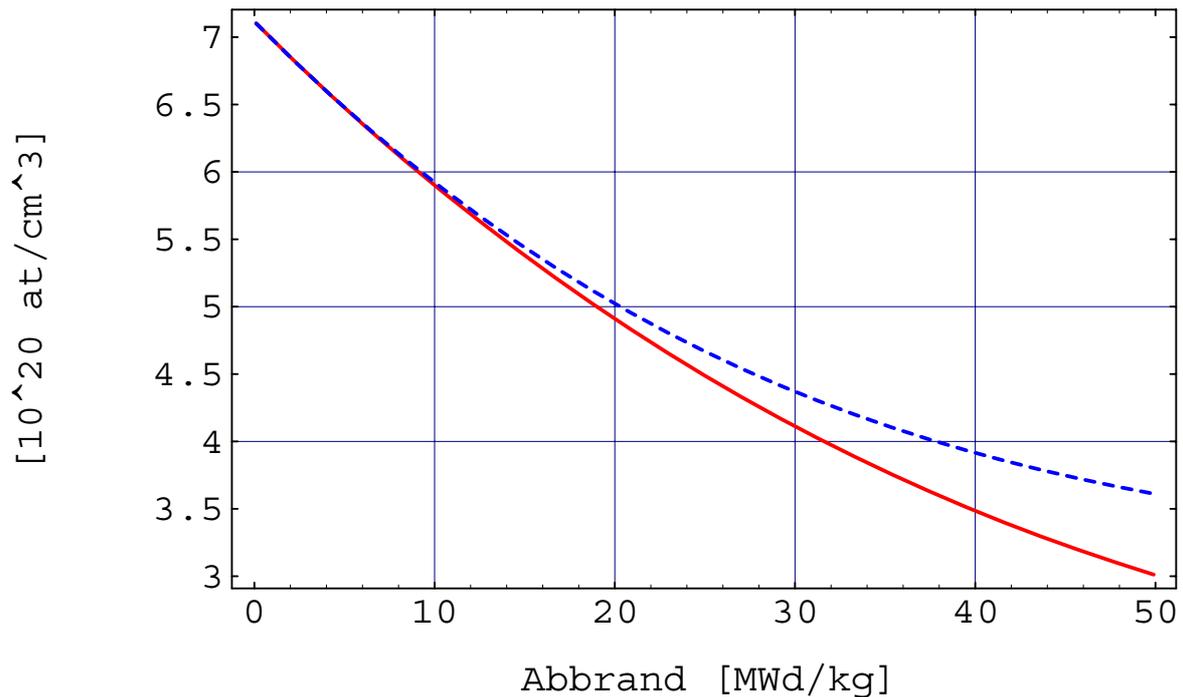


Abbildung 4.3: Die Nuklidkonzentration von ^{239}Pu berechnet mit (—) und ohne (- -) Anpassung der effektiven Wirkungsquerschnitte an den Abbrand für MOX-Brennstoff (Typ B, siehe Kap. 5).

Leistungsdichte zu gewährleisten, muß daher der totale Neutronenfluß erhöht werden.⁸ Da sich jedoch z. B. der effektive Wirkungsquerschnitt für Resonanzabsorption in Uran praktisch nicht verändert, führt dies zu einem erhöhten Aufbau von Transuranen und generell zu einer veränderten Isotopenzusammensetzung des Brennstoffs. Daher muß auch die abbrandabhängige Veränderung des totalen Neutronenflusses bei Zellabbrandrechnungen in konsistenter Weise berücksichtigt werden.

Die in diesem Abschnitt vorgestellten Überlegungen führen dazu, für die Lösung der Abbrandgleichungen das im folgenden vorgestellte iterative Verfahren zu verwenden.

⁸Ein weiterer Grund für die Notwendigkeit einer Erhöhung des Neutronenflusses liegt in der Abnahme der Konzentration thermisch spaltbarer Nuklide sowie im Aufbau der Spaltprodukte, welche als Neutronenabsorber fungieren.

4.2 Iterationsverfahren und Kopplung von *Mathematica* und MCNP4A

Durch die in Kap. 4.1.1 diskutierten Betrachtungen gehen die Abbrandgleichungen (3.4) in die ortsunabhängige Form

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt} N^i(t) = & - \left[\sigma_a^i(t) \phi_{tot}(t) + \lambda^i \right] N^i(t) \\ & + \sum_{j \neq i} \left[f^{ij}(t) \sigma_a^j(t) \phi_{tot}(t) + l^{ij} \lambda^j \right] N^j(t) \end{aligned} \quad (4.1)$$

über. Für eine vorgegebene Nuklidkonzentration können mit MCNP4A die momenta-

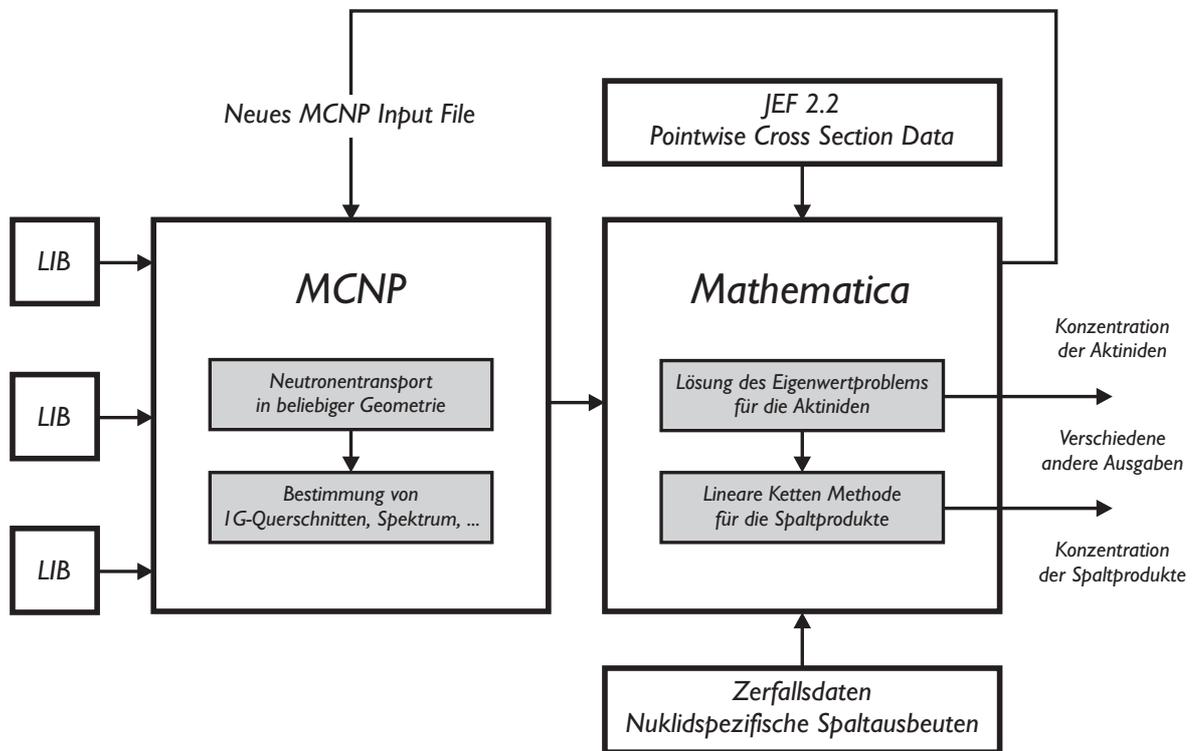


Abbildung 4.4: Iterationsschema für die Kopplung zwischen Abbrandrechnung mittels einer *Mathematica*-Routine und der Bestimmung zugehöriger effektiver Wirkungsquerschnitte durch das Monte-Carlo Programm MCNP4A.

nen effektiven Wirkungsquerschnitte bestimmt werden (siehe Kap. 3.3), aus welchen sich gemäß Gl. (3.5) bei vorgegebener Leistungsdichte \bar{P} der momentane totale Neutronenfluß ergibt. Um die in Kap. 4.1.2 beschriebene Zeitabhängigkeit dieser Größen geeignet zu berücksichtigen, wird daher die Berechnung des Abbrandes in Zeitintervalle unterteilt, in welchen mittels MCNP4A die Wirkungsquerschnitte bestimmt und diese

von einem in *Mathematica* entwickelten Programm zur Lösung der Abbrandgleichungen verwendet werden. Mit den so bestimmten neuen Nuklidkonzentrationen können dann wieder momentane effektive Wirkungsquerschnitte ermittelt werden. Diese in Abb. 4.4 veranschaulichte Kopplung von MCNP4A und der *Mathematica*-Routine soll in diesem Abschnitt erläutert werden, bevor dann in den Kapiteln 4.3.1 und 4.3.3 auf die Lösung des Gleichungssystems (4.3) eingegangen wird, welches sich aufgrund der iterativen Vorgehensweise für den jeweiligen Zeitschritt ergibt.

1. Die Bestrahlungszeit des untersuchten Brennstoffs wird in Zeitintervalle $[t_k, t_{k+1}]$ mit einer vorgegebenen Länge Δt_k unterteilt. Die Länge der jeweiligen Intervalle wird so gewählt, daß in ihnen sowohl die effektiven Wirkungsquerschnitte $\sigma_x^i(t)$ als auch der totale Neutronenfluß $\phi_{tot}(t)$ schwach veränderliche Funktionen der Zeit sind und sich die Werte zur Zeit t_k und t_{k+1} nur geringfügig unterscheiden.⁹
2. Für die zu Beginn des Zeitintervalls gegebenen Nuklidkonzentrationen $N^i(t_k)$ werden die effektiven Wirkungsquerschnitte mittels MCNP4A bestimmt. Eine *Mathematica*-Routine wertet die MCNP4A-Ausgabedateien aus und erstellt Dateien mit den momentanen effektiven Wirkungsquerschnitten $\sigma_x^i(t_k)$. Für dieses Zeitintervall werden die $\sigma_x^i(t)$ durch ihre Anfangswert $\sigma_x^i(t_k)$ ersetzt:

$$\sigma_x^i(t) = \sigma_{x,k}^i = \sigma_x^i(t_k).$$

3. Der totale Neutronenfluß $\phi_{tot}(t)$ wird im gesamten Zeitintervall k durch einen mittleren Fluß $\bar{\phi}_k$ ersetzt. Dieser soll so bestimmt werden, daß die über das Zeitintervall integrierte Leistungsdichte dividiert durch die Intervalllänge der vorgegebenen mittleren Leistungsdichte \bar{P} entspricht. Daher wird zunächst ein realistischer Wert für $\bar{\phi}_k$ vorgegeben. Mit diesem werden die sich ergebenden Abbrandgleichungen gelöst (dies wird in den Kap. 4.3.1 und 4.3.3 beschrieben) und die mittlere Leistungsdichte gemäß

$$\bar{P}_k = \frac{\int_{t_k}^{t_{k+1}} dt P(t)}{\Delta t_k} \quad (4.2)$$

bestimmt (siehe Kap. 4.3.2). Wegen des nahezu linearen Zusammenhangs zwischen Leistungsdichte und totalem Neutronenfluß bei nur schwach veränderlichen effektiven Wirkungsquerschnitten und Nuklidkonzentrationen (siehe Gl. (3.5)) wird als neuer Wert für $\bar{\phi}_k$ nun

$$\bar{\phi}_{k,neu} = \bar{\phi}_{k,alt} \frac{\bar{P}}{\bar{P}_k}$$

⁹Ein Maß für die tolerierbare Änderung der effektiven Wirkungsquerschnitte innerhalb eines Zeitintervalls ist durch die Genauigkeit der berechneten Querschnitte gegeben, welche etwa 3 % beträgt (siehe Kap. 3.3).

angenommen. Dieses Vorgehen wird wiederholt, bis die berechnete mittlere Leistungsdichte im Zeitintervall \bar{P}_k der vorgegebenen mittleren Leistungsdichte \bar{P} entspricht.

4. Die Gleichungen (4.1) gehen somit für den k -ten Zeitschritt in die Form

$$\frac{d}{dt}N^i(t) = - \left[\sigma_{a,k}^i \bar{\phi}_k + \lambda^i \right] N^i(t) + \sum_{j \neq i} \left[f_k^{ij} \sigma_{a,k}^j \bar{\phi}_k + l^{ij} \lambda^j \right] N^j(t) \quad (4.3)$$

über und bilden nun ein lineares Differentialgleichungssystem erster Ordnung mit konstanten Koeffizienten.¹⁰ Dieses Gleichungssystem wird mittels einer hierfür entwickelten *Mathematica*-Routine gelöst (siehe Kap. 4.3.1 und 4.3.3) und somit die Nuklidkonzentrationen für den Beginn des nächsten Zeitintervalls bestimmt (es ist $N^i(t_{k+1})$ des k -ten Zeitschritts gleich $N^i(t_k)$ des $(k+1)$ -ten Zeitschritts).

Durch das in den Punkten 1.–4. beschriebene Verfahren werden die effektiven Wirkungsquerschnitte und die Nuklidkonzentrationen $N^i(t)$ für den gesamten Abbrand ermittelt. Da hierbei die Wirkungsquerschnitte für ein Zeitintervall $[t_k, t_{k+1}]$ jeweils durch ihren Anfangswert ersetzt werden, kommt es jedoch i. A. zu einem systematischen Fehler. Dieser kann reduziert werden, indem erneut eine Abbrandrechnung auf der Basis der bereits bestimmten effektiven Wirkungsquerschnitte durchgeführt wird.

Nachdem daher die abbrandabhängigen effektiven Wirkungsquerschnitte für den gesamten Verlauf des Abbrandes bestimmt und in Dateien zusammengefaßt wurden, können unter Beibehaltung dieser Querschnitte erneut die Nuklidkonzentrationen $N^i(t)$ gemäß der Punkte 1.–4. bestimmt werden. Hierbei können die Intervalllängen Δt_k halbiert werden, um die mittlere Abweichung des verwendeten Wirkungsquerschnitts vom tatsächlichen zu reduzieren (siehe Abb. 4.5).¹¹ Anstelle von Punkt 2. werden nun jedoch nicht mit MCNP4A die effektiven Wirkungsquerschnitte für den Beginn des Zeitintervalls bestimmt, sondern aus den bereits vorliegenden Querschnitten durch lineare Interpolation die Querschnitte für die Intervallmitte errechnet.

4.3 Die Behandlung von Aktiniden und Spaltprodukten

Bei der Bestimmung der Nuklidkonzentrationen mittels der Gleichungen (4.3) lassen sich zwei Gruppen von Nukliden unterscheiden, zum einen die Gruppe der Aktinide, welche aus dem anfänglich im Brennstoff enthaltenen Schwermetall durch Neutroneneinfangsprozesse und radioaktive Zerfälle gebildet werden, zum anderen die Gruppe der

¹⁰Die Übergangswahrscheinlichkeiten f_k^{ij} bestimmen sich nun aus dem Verhältnis der effektiven Wirkungsquerschnitte $\sigma_{(j \rightarrow i),k}^j$ und $\sigma_{a,k}^j$ für diesen Zeitschritt.

¹¹Die ursprünglich vorgegebene Intervalllänge Δt_k stellt notwendigerweise einen Kompromiß zwischen der erwünschten Genauigkeit bei der Bestimmung der effektiven Wirkungsquerschnitte und der dafür benötigten Rechnerzeit dar.

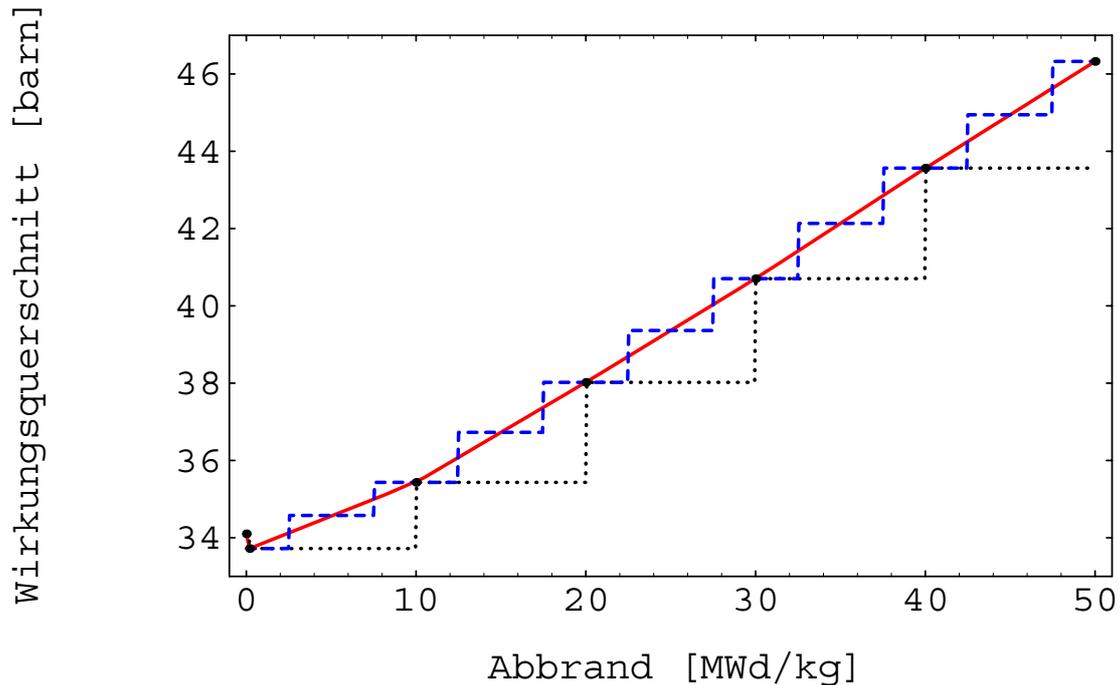


Abbildung 4.5: Wirkungsquerschnitt für Spaltung von ^{239}Pu in Abhängigkeit vom Abbrand für MOX-Brennstoff (Typ B, siehe Kap. 5.1.2). Interpolation der von MCNP4A berechneten Werte (—) und die in der Iteration verwendeten Verläufe (···) und (- -).

Spaltprodukte. Dabei ist für die im Rahmen dieser Arbeit interessierenden Fragestellungen insbesondere die Bestimmung der Aktinidenzusammensetzung von Bedeutung. Aussagen über den Aufbau der Spaltprodukte sind daher vorwiegend in bezug auf deren Einfluß auf die Veränderung des Aktinideninventars relevant.¹²

Eine getrennte Lösung der Gleichungen (4.3) für die beiden Gruppen von Nukliden ist daher sinnvoll, und wird durch die Tatsache ermöglicht, daß eine Wechselwirkung zwischen diesen nur auf zwei Arten auftritt:

- Durch die momentane Konzentration der Aktinide und deren Spaltquerschnitte wird der momentane Zuwachs der Spaltprodukte bestimmt. Bei einer getrennten Behandlung der Abbrandgleichungen (4.3) für die Gruppen der Aktinide und der Spaltprodukte geht dieser dann als Inhomogenität in die den Aufbau der Spaltprodukte bestimmenden Gleichungen ein (siehe Kap. 4.3.2 und 4.3.3).
- Die Spaltprodukte wirken als Neutronenabsorber und verändern somit den Neu-

¹²Für eine genauere Aussage über die Radiotoxizität des abgebrannten Brennstoffs im Vergleich zum frischen Brennstoff spielen jedoch auch die Spaltprodukte eine wichtige Rolle. Soll eine derartige Beurteilung erfolgen, müssen bei der Bestimmung der Spaltproduktzusammensetzung entsprechend unter diesem Gesichtspunkt relevante Nuklide berücksichtigt werden.

tronenfluß $\phi(E, t)$. Bei der Bestimmung der effektiven Wirkungsquerschnitte der Aktinide in MCNP4A muß daher dieser Einfluß in geeigneter Weise berücksichtigt werden (hierzu werden einige Spaltprodukte unmittelbar, der Einfluß anderer durch die Einführung eines Pseudo-Spaltprodukts in MCNP4A berücksichtigt, siehe Kap. 4.3.3).

Daher werden zunächst die Gleichungen (4.3) für die Gruppe der Aktinide gelöst, wobei während des Zeitintervalls $[t_k, t_{k+1}]$ der Einfluß der Spaltprodukte auf die zeitliche Änderung der Aktiniden-Konzentrationen vollständig durch die Bestimmung der effektiven Wirkungsquerschnitte unter geeigneter Berücksichtigung der Spaltprodukte erfaßt ist (Kap. 4.3.1). Mittels der für diesen Zeitschritt bekannten Aktinidenkonzentrationen kann dann die momentane Spaltrate bestimmt werden, welche sowohl für die Festlegung des totalen Neutronenflusses, als auch für die Ermittlung des Zuwachses der Spaltprodukte benötigt wird (Kap. 4.3.2). Schließlich können die Gleichungen (4.3) für die Gruppe der Spaltprodukte gelöst werden (Kap. 4.3.3).

4.3.1 Die Abbrandgleichungen für die Gruppe der Aktinide

Aus den ursprünglich im Brennstoff enthaltenen Nukliden werden durch Neutronenreaktionen (hierbei werden (n, γ)-, (n,f)-, (n,2n)- und (n,3n)-Reaktionen berücksichtigt) oder radioaktive Zerfälle (α , β^- , β^+ , Isomerenübergänge) neue Nuklide gebildet (siehe Abb. 4.6). Dabei legt die anfängliche Zusammensetzung des Brennstoffs zusammen mit dem angestrebten Abbrand fest, welche Nuklide in relevanten Konzentrationen vorliegen werden. So ist der Aufbau von Curiumisotopen (und den noch schwereren Elementen Berkelium und Californium) in Brennstoffen mit einem anfänglichen Plutonium-Anteil um etwa eine Größenordnung höher als in reinen Uran-Brennstoffen. Für Brennstoffe auf Thorium-Basis sind hingegen neben Thorium und Protactinium auch einige leichte Isotope des Uran (^{232}U – ^{234}U) von besonderer Bedeutung. Daher können bei dem im Rahmen dieser Arbeit entwickelten Programmsystem die für jede Abbrandrechnung zu berücksichtigenden Nuklide individuell ausgewählt werden.¹³

Für die Gruppe der Aktinide lassen sich die Abbrandgleichungen (4.3) in die Form

$$\frac{d}{dt}\vec{N}(t) = M \cdot \vec{N}(t) \quad (4.4)$$

umschreiben, wobei die Übergangsmatrix M durch

$$M^{ij} = -\left(\sigma_{a,k}^i \bar{\phi}_k + \lambda^i\right) \delta^{ij} + \sigma_{a,k}^j \bar{\phi}_k f^{ij} + \lambda^j l^{ij}$$

gegeben ist.¹⁴ Dabei wurden die einzelnen Funktionen $N^i(t)$ zum „Vektor“ $\vec{N}(t)$ zusammengefaßt, wodurch sich die Kopplung der verschiedenen Differentialgleichungen mittels der Übergangsmatrix M beschreiben läßt.

¹³Bei den Abbrandrechnungen des Kapitels 5 wurden neben den in Abb. 4.6 dargestellten Nukliden noch Isotope der Elemente Berkelium und Californium berücksichtigt.

¹⁴ δ^{ij} ist das Kronecker-Symbol, welches für $i = j$ den Wert Eins, ansonsten den Wert Null annimmt.

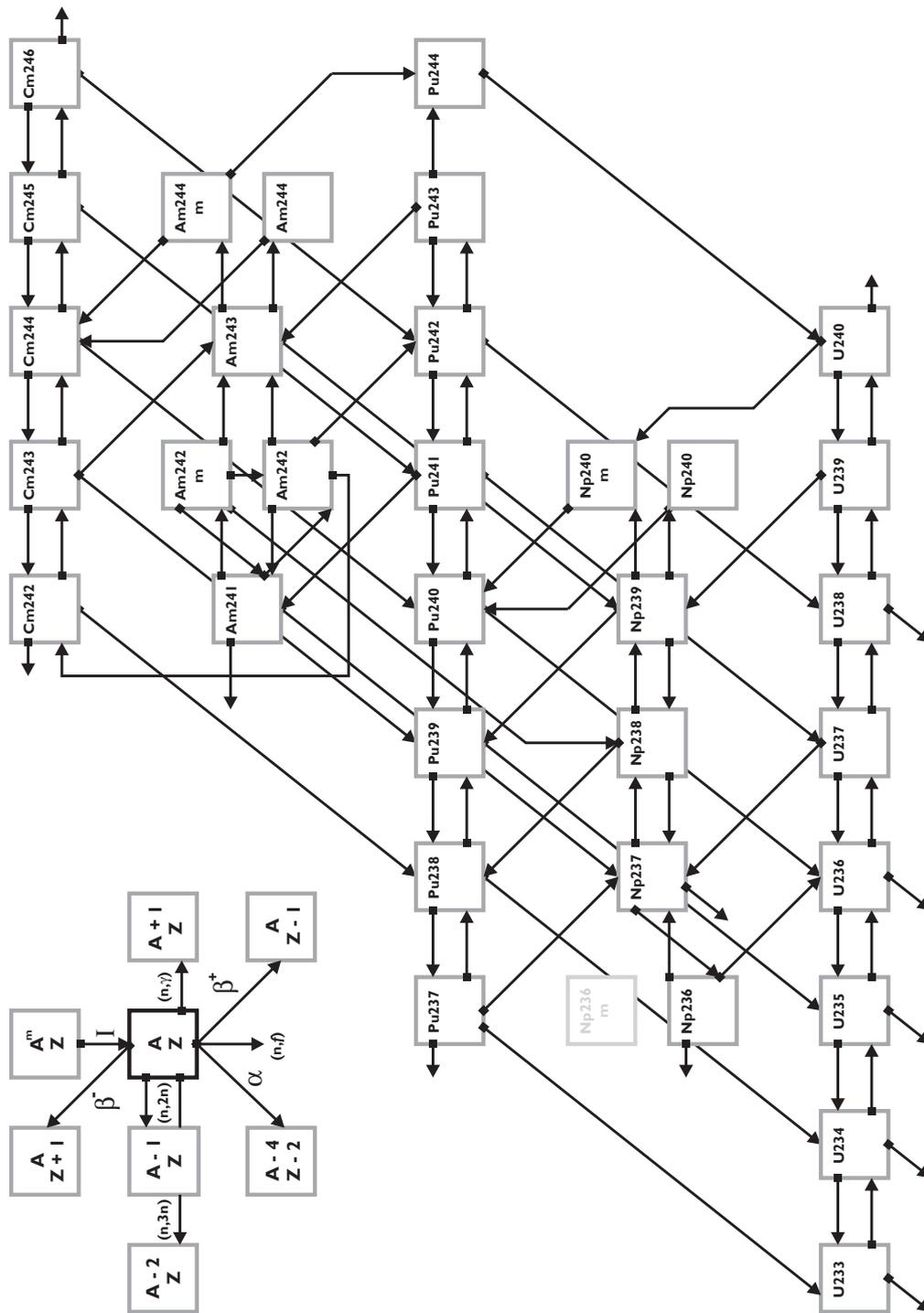


Abbildung 4.6: Behandlung der Aktinide. Nuklide und Prozesse, die bei der Lösung der Abbrandgleichungen berücksichtigt werden: (n,f)-, (n, γ)-, (n,2n)- und (n,3n)-Prozesse, α -, β^- - und β^+ -Zerfälle sowie Übergänge zwischen Isomeren. Nicht dargestellt sind (n,f)- und (n,3n)-Prozesse.

Analytische Lösung

Für das Gleichungssystem (4.4) läßt sich eine analytische Lösung angeben ([Bro 89], Kap. 3.3.1.3.3). Bestimmt man die Eigenwerte ϵ_k und zugehörigen Eigenvektoren \vec{e}_k

der Matrix M gemäß

$$M \cdot \vec{e}_k = \epsilon_k \vec{e}_k,$$

so lautet die allgemeine Lösung¹⁵ für $\vec{N}(t)$

$$\vec{N}(t) = \sum_k c_k \vec{e}_k \exp(\epsilon_k t). \quad (4.5)$$

Die in diese Gleichungen eingehenden Konstanten c_k werden dabei durch die Konzentration der Nuklide zu Beginn des Iterationsschritts $\vec{N}(t_k)$ über

$$\vec{N}(t_k) = \sum_k c_k \vec{e}_k$$

festgelegt.

Für die Lösung der Abbrandgleichungen in *Mathematica* wird zunächst mittels der von MCNP4A bestimmten effektiven Wirkungsquerschnitte und den in speziellen Dateien bereitgestellten Zerfallskonstanten λ^i und Verzweigungsverhältnissen l^{ij} die Übergangsmatrix bestimmt (MATRIX). Weiterhin werden die Anfangskonzentrationen $\vec{N}(t_k)$ für diesen Iterationsschritt (NUKLID) festgelegt.¹⁶ Die Funktionen $N^i(t)$ werden dann durch die *Mathematica*-Routine

```
sys = Eigensystem[matrix];
ck = LinearSolve[Transpose[sys[[2]]], nuklid];
y[t_, k_Integer] :=
ck[[i]] sys[[2, i, k]] Exp[sys[[1, i]] t], {i, 1, Length[matrix]}
```

bestimmt.¹⁷

4.3.2 Spaltrate und nuklidspezifische Spaltenergiefreisetzung

Mit den somit für ein Zeitintervall gegebenen Nuklidkonzentrationen der Aktinide läßt sich nun die Zahl der Spaltungen S^i des Nuklids i

$$S^i = \int_{t_k}^{t_{k+1}} dt \sigma_{f,k}^i \bar{\phi}_k N^i(t) = \sigma_{f,k}^i \bar{\phi}_k \int_{t_k}^{t_{k+1}} dt N^i(t)$$

¹⁵Ist einer der Eigenwerte ϵ_k p-facher Eigenwert der Matrix M , so müssen anstelle der Funktion $\vec{e}_k \exp(\epsilon_k t)$ als linear unabhängige Lösungen Funktionen vom Typ $\vec{e}_k(t) \exp(\epsilon_k t)$ verwendet werden, wobei die $\vec{e}_k(t)$ Polynome vom Grade (p-1) darstellen.

¹⁶ $\vec{N}(t_k)$ entspricht entweder der anfänglichen Nuklidzusammensetzung $\vec{N}(t_0)$, oder ist durch die Nuklidzusammensetzung am Ende des letzten Iterationsschritts gegeben.

¹⁷Die Bestimmung der Eigenwerte und Eigenfunktionen der Übergangsmatrix stellt aufgrund der schlechten Konditionierung der Eigenwerte das wesentliche Problem bei der Lösung der Abbrandgleichungen dar. Die Qualität der von *Mathematica* gefundenen Lösungen ist daher wesentlich für die Zuverlässigkeit der erzielten Ergebnisse. Durch die analytische Lösung ist ein hoher Grad an Transparenz der erzielten Ergebnisse gewährleistet.

im Zeitintervall $[t_k, t_{k+1}]$ bestimmen. Diese wird zum einen für die Ermittlung der Änderung der Spaltproduktkonzentrationen benötigt (siehe Gl. (4.8)), zum anderen geht sie in die Berechnung der mittleren Leistungsdichte nach Gl. (4.2) ein.

Die Nuklidkonzentrationen $N^i(t)$ sind durch die Komponenten des „Vektors“ \vec{N} nach Gl. (4.5) gegeben, so daß sich für S^i durch Integration unmittelbar ergibt:

$$S^i = \sigma_{f,k}^i \bar{\phi}_k \sum_j c_j e_j^i \frac{1}{\epsilon_j} (\exp(\epsilon_j t_{k+1}) - \exp(\epsilon_j t_k)). \quad (4.6)$$

Neben der Zahl der Spaltungen des Nuklids i geht in die Bestimmung der lokalen Leistungsdichte nach Gl. (3.5) weiterhin die pro Spaltung freigesetzte Energie E^i ein. Diese ist nuklidspezifisch und muß für alle zur Spaltung beitragenden Nuklide bestimmt werden. Es lassen sich hierbei zwei unterschiedliche Beiträge unterscheiden. Ein Anteil E_f^i geht unmittelbar aus der Spaltung hervor, und umfaßt die kinetische Energie der Spaltprodukte und der Neutronen, sowie die Energie aus γ - und β -Strahlung der entstehenden Spaltprodukte. Ein weiterer Beitrag E_γ^i ergibt sich aus Neutroneneinfangsreaktionen (n, γ) der bei jeder Spaltung freigesetzten Neutronen, welche nicht zur Aufrechterhaltung der Kettenreaktion benötigt werden. Somit läßt sich die bei einer Spaltung des Nuklids i freiwerdende Energie E^i gemäß

$$E^i = E_f^i + E_\gamma^i$$

zerlegen. Der direkte Anteil E_f^i ist dabei lediglich von der Energie des die Spaltung auslösenden Neutrons und dem gespaltenen Nuklid abhängig und kann für ein thermisches Neutronenspektrum unmittelbar angegeben werden.¹⁸ Die wichtigsten, zur Energiefreisetzung durch Spaltung beitragenden Nuklide sowie die für diese verwendeten Werte von E_f^i sind in Tab. 4.2 zusammengestellt. Für alle weiteren Nuklide, welche zur Spaltung beitragen, wurde ein einheitlicher Wert für E_f^i von 200 MeV pro Spaltung angenommen.¹⁹

Zur Bestimmung des Beitrags E_γ^i zur Energiefreisetzung muß die Zahl der pro Spaltung zu Einfangsreaktionen (n, γ) führenden Neutronen sowie die bei einer Einfangsreaktion im Mittel freigesetzte Energie Q_γ bestimmt werden.

Da von den im Mittel pro Spaltung des Nuklids i freigesetzten Neutronen $\bar{\nu}^i$ ein Neutron zur Aufrechterhaltung der Kettenreaktion benötigt wird, kommt es bei Vernachlässigung der Neutronenleckage zu $(\bar{\nu}^i - 1)$ Einfangsreaktionen pro Spaltung.

¹⁸Eine Abnahme von E_f^i mit zunehmender Energie des einfallenden Neutrons wird durch eine etwa gleich große Zunahme des Anteils E_γ^i kompensiert, so daß die relativ geringe Änderung der mittleren Energie der Neutronen bei fortschreitendem Abbrand die sich für E^i ergebenden Werte nur unwesentlich beeinflusst [Fis 83].

¹⁹Zur Spaltung tragen neben den spezifizierten Nukliden hauptsächlich Curium, aber auch z. B. ^{237}Np bei. Selbst bei einem Brennstoff mit einem hohen Anteil solcher Nuklide (MOX-Brennstoff, Typ A, siehe Kap. 5.1.2, bei einem Abbrand von 50 MWd/kg) beträgt deren Anteil an der Energiefreisetzung weniger als ein Prozent. Der durch die Annahme eines einheitlichen Wertes von E_f^i für diese Nuklide verursachte Fehler ist daher äußerst gering.

Nuklid	E_f^i [MeV]	Nuklid	E_f^i [MeV]
^{233}U	191.29	^{239}Pu	202.00
^{234}U	190.30	^{240}Pu	199.79
^{235}U	193.70	^{241}Pu	204.40
^{236}U	192.80	^{242}Pu	200.62
^{238}U	197.00	^{242m}Am	207.00

Tabelle 4.2: Wesentlich zur Spaltenergie-Freisetzung beitragende Nuklide sowie E_f^i für diese Nuklide nach [NEA 95b].

Die pro Einfangsreaktion freigesetzte mittlere Energie Q_γ hängt von der freiwerdenden Bindungsenergie des eingefangenen Neutrons ab. Diese ist jedoch nuklidspezifisch, so daß eine detaillierte Bestimmung von Q_γ eine Mittelung über die momentan zur Neutronenabsorption beitragenden Nuklide erfordern würde.

Eine solche Berechnung kann jedoch im Rahmen dieser Arbeit nicht geleistet werden, so daß der Beitrag E_γ^i , unabhängig vom gespaltenen Nuklid i , durch einen mittleren Wert von 8 MeV pro Spaltung angenähert wird (siehe hierzu auch [Fis 83], S. 41 und [NEA 95b], S. 76).

4.3.3 Die Behandlung der Spaltprodukte

Für die Berechnung des Aktinideninventars spielen die entstehenden Spaltprodukte eine wichtige Rolle, da sie als Neutronenabsorber insbesondere im thermischen Bereich den Neutronenfluß $\phi(E)$ beeinflussen. Dies führt zu einer Änderung der effektiven Wirkungsquerschnitte der Aktiniden, wobei vom thermischen Spektrum dominierte Wirkungsquerschnitte stärker beeinflusst werden als durch Resonanzen bestimmte. Hierdurch kommt es zur Verschiebung der Verhältnisse der einzelnen Wirkungsquerschnitte, was zu einer veränderten Isotopenzusammensetzung der Aktinide führt.

Um diese Effekte zu berücksichtigen, muß der Einfluß der Spaltprodukte auf den Neutronenfluß hinreichend genau ermittelt werden. Hierzu müssen nicht alle bei der Spaltung produzierten Nuklide erfaßt werden, da viele wegen kurzer Halbwertszeiten und dadurch bedingter niedriger Konzentration sowie wegen eines geringen Wirkungsquerschnitts für Neutroneneinfang keinen Beitrag zur Neutronenabsorption liefern. Einen Überblick über die wichtigsten Spaltprodukte in Hinblick auf die Absorption von Neutronen und damit ihren Einfluß auf den Neutronenfluß $\phi(E)$ gibt Tab. 4.3. Im Rahmen dieser Arbeit werden ca. 70 Spaltprodukte explizit behandelt (siehe hierzu auch Abb. 4.7 und [Eme 93], S. 297).²⁰

²⁰Diese Zahl wird lediglich durch die erwünschte Genauigkeit bei der Ermittlung der Spaltproduktzusammensetzung festgelegt und kann im Prinzip für jede Abbrandrechnung individuell gewählt

Nuklid	33 MWd/kg		Nuklid	50 MWd/kg	
	ρ [10^{24} at/cm ³]	Σ_a [cm ⁻¹]		ρ [10^{24} at/cm ³]	Σ_a [cm ⁻¹]
¹³⁵ Xe	1.547e-08	1.065e-03	¹³⁵ Xe	1.411e-08	1.039e-03
¹⁰³ Rh	3.683e-05	6.619e-04	¹⁰³ Rh	5.029e-05	9.389e-04
¹⁰⁹ Ag	1.741e-05	5.358e-04	¹⁰⁹ Ag	2.255e-05	6.996e-04
¹³¹ Xe	1.962e-05	4.536e-04	¹³³ Cs	6.309e-05	5.998e-04
¹⁴⁹ Sm	1.964e-07	4.365e-04	¹³¹ Xe	2.531e-05	5.938e-04
¹³³ Cs	4.462e-05	4.204e-04	¹⁴⁹ Sm	1.787e-07	4.226e-04
¹⁵² Sm	5.568e-06	3.254e-04	¹⁵² Sm	7.016e-06	4.160e-04
¹⁴⁷ Pm	7.273e-06	3.242e-04	¹⁴³ Nd	4.055e-05	4.059e-04
¹⁵¹ Sm	1.284e-06	2.830e-04	⁹⁹ Tc	5.808e-05	3.913e-04
⁹⁹ Tc	4.029e-05	2.694e-04	¹⁴⁷ Pm	7.865e-06	3.549e-04

Tabelle 4.3: Die zehn wichtigsten Spaltprodukte in bezug auf Neutronenabsorption für MOX-Brennstoff (Typ B, siehe Kap. 5.1.2) bei einem Abbrand von 33 und 50 MWd/kg geordnet nach ihrem makroskopischen Absorptionsquerschnitt (MCNP-Berechnungen).

Zerfallsketten der Spaltprodukte

Die bei der Spaltung entstehenden Nuklide weisen in der Regel einen hohen Neutronenüberschuß auf. Sie durchlaufen daher eine Reihe von β^- -Zerfällen in Richtung der Stabilitätslinie, bis sie in stabile Isotope übergehen. Zwischen diesen Isobaren-Zerfallsketten kommt es durch Neutronenabsorption zu einem Übergang zwischen benachbarten Zerfallsketten. Für die im Rahmen dieser Arbeit behandelten Spaltprodukte zeigt Abb. 4.7 die auf diese Weise entstehenden Reaktionsketten.²¹

Für die Berechnung der Spaltproduktkonzentrationen gilt es, ein den Abbrandgleichungen (4.4) ähnliches Differentialgleichungssystem zu lösen. Dieses enthält neben den Übergängen durch β^- -Zerfälle und Neutroneneinfangsreaktionen einen inhomogenen Term (Yieldvektor $\vec{Y}(t)$), welcher sich aus dem Zugewinn durch Spaltungen der

werden. So können insbesondere einzelne Spaltprodukte, welche zwar keinen wesentlichen Einfluß auf das Neutronenspektrum ausüben, jedoch für die Bestimmung der Radiotoxizität des abgebrannten Brennstoffs relevant sind, gegebenenfalls berücksichtigt werden.

²¹Hierbei können Nuklide mit zu kurzen Halbwertszeiten, gemessen an typischen Bestrahlungszeiten des Brennstoffs, übersprungen und Zerfälle mit zu langen Halbwertszeiten vernachlässigt werden.



Abbildung 4.7: Die verschiedenen Übergänge zwischen den explizit berücksichtigten Spaltprodukten.

Aktiniden ergibt.²² Für die Konzentrationsänderung des Spaltprodukte gilt daher

$$\frac{d}{dt}\vec{N}(t) = M \cdot \vec{N}(t) + \vec{Y}(t) \quad (4.7)$$

²²Dieser Term taucht in den ursprünglichen Abbrandgleichungen (3.2) nicht explizit auf, da er erst durch die entkoppelte Lösung der Gleichungen für die Aktinide und die Spaltprodukte entsteht, nachdem die Summe über j die Aktinide in diesem Fall nicht mehr umfaßt und diese daher gesondert berücksichtigt werden müssen.

mit der Übergangsmatrix

$$M^{ij} = - \left(\sigma_{a,k}^i \bar{\phi}_k + \lambda^i \right) \delta^{ij} + \sigma_{a,k}^j \bar{\phi}_k f^{ij} + \lambda^j l^{ij}.$$

Auf die Bestimmung der effektiven Wirkungsquerschnitte und des Yieldvektors $\vec{Y}(t)$ wird im folgenden eingegangen.

Berechnung der effektiven Wirkungsquerschnitte

Das Programmpaket MCNP4A umfaßt Standard-Querschnittsbibliotheken für eine große Zahl verschiedener Nuklide. Für Inventarberechnungen werden jedoch eine Anzahl weiterer Nuklide benötigt, welche nicht in MCNP4A-Bibliotheken enthalten sind.²³ Um für diese dennoch die benötigten effektiven Wirkungsquerschnitte bestimmen zu können, wurden die mikroskopischen Wirkungsquerschnitte der benötigten Nuklide mittels des Programms JEF-PC aus der Joint Evaluated File Library (JEF 2.2) der OECD bereitgestellt [JEF 94].

Neben den effektiven Wirkungsquerschnitten der Aktinide wird mittels MCNP4A außerdem der Neutronenfluß $\phi(E_k)$ in Energieintervallen $[E_k, E_{k+1}]$ bestimmt. Somit lassen sich die effektiven mikroskopischen Wirkungsquerschnitte der benötigten Nuklide mittels

$$\sigma_x^i = \frac{\int_0^\infty dE \sigma_x^i(E) \phi(E)}{\int_0^\infty dE \phi(E)} \approx \frac{\sum_k \sigma_x^i(E_k) \phi(E_k) (E_k - E_{k+1})}{\sum_k \phi(E_k) (E_k - E_{k+1})}$$

berechnen. Bei diesem Verfahren werden natürlich Einflüsse durch Resonanzselbstabschirmung nicht berücksichtigt, so daß für Nuklide, deren Querschnitt durch Resonanzen bestimmt wird (z. B. ^{109}Ag), eine größere Ungenauigkeit in der Konzentrationsbestimmung zu erwarten ist. Im Hinblick auf die Entwicklung der Aktinidenzusammensetzung sind diese Effekte jedoch zu vernachlässigen, da hierfür in erster Näherung nur der makroskopische Absorptionsquerschnitt der Spaltprodukte insgesamt ausschlaggebend ist. Um z. B. für eine Untersuchung der radiotoxischen Eigenschaften des abgebrannten Brennstoffs die Konzentrationen der Spaltprodukte mit einer höheren Genauigkeit zu bestimmen, müßte der Einfluß der Resonanzselbstabschirmung in geeigneter Weise berücksichtigt werden.

Bestimmen des Yieldvektors

In Gl. (4.7) geht als Inhomogenität der Yieldvektor $\vec{Y}(t)$ ein. Wie bei der Bestimmung der effektiven Wirkungsquerschnitte kann nun davon ausgegangen werden, daß sich während eines Zeitintervalls die Aktiniden-Konzentrationen nur schwach verändern, so daß man den momentanen Yieldvektor $\vec{Y}(t)$ durch einen zeitlich gemittelten Yieldvektor \bar{Y} gemäß

$$\bar{Y}^i = \frac{1}{t_{k+1} - t_k} \sum_j Y^{ij} \int_{t_k}^{t_{k+1}} dt \sigma_{f,k}^j \bar{\phi}_k N^j(t) = \frac{1}{t_{k+1} - t_k} \sum_j Y^{ij} S^j \quad (4.8)$$

²³Vergleiche hierzu [Bri 93], Appendix G.

ersetzen kann. Die Summe über j umfaßt alle Aktinide, welche zur Spaltung beitragen. Das in den gemittelten Yieldvektor eingehende Integral der Spaltungen pro Zeitintervall S^j ist durch Gl. (4.6) gegeben.

Die Y^{ij} sind spalt nuklidabhängige Yieldfaktoren, welche die Wahrscheinlichkeit angeben, daß bei einer Spaltung des Nuklids j das Spaltprodukt i gebildet wird. Für die Nuklide ^{233}U , ^{234}U , ^{235}U , ^{236}U , ^{238}U , ^{239}Pu , ^{240}Pu , ^{241}Pu , ^{242}Pu und ^{242m}Am werden Yieldfaktoren Y^{ij} aus der Datenbank für Spaltprodukte der JEF-2.2 verwendet. Andere Nuklide tragen selbst bei einem Brennstoff mit einem hohen Anteil solcher Nuklide (MOX-Brennstoff, Typ A, siehe Kap. 5.1.2, bei einem Abbrand von 50 MWd/kg) nur zu weniger als einem Prozent der Spaltungen bei.²⁴ Für diese Nuklide kann daher die gleiche Spaltproduktverteilung wie für ^{239}Pu angenommen werden.

Direkter und kumulativer Yield

Die größte Zahl der bei einer Spaltung entstehenden Nuklide zerfällt mit — gemessen an der Zeitskala der Inventarberechnungen — kurzen Halbwertszeiten. In den Yield des ersten Isobars einer β^- -Zerfallskette, welches explizit berechnet werden soll, gehen daher auch die Ausbeuten aller Vorläufernuklide ein, welche aufgrund ihrer kurzen Halbwertszeiten nicht berücksichtigt werden (kumulativer Yield).²⁵

Daneben muß noch beachtet werden, daß für eine Anzahl von Spaltprodukten neben dem Isotop im Grundzustand auch Isomere dieses Nuklids durch Spaltungen entstehen können. Deren Yieldfaktor muß zu demjenigen des Grundzustandes summiert werden (dies ist beim kumulativen Yield bereits der Fall).

Lösung der Abbrandgleichungen für die Spaltprodukte

In die zu lösenden Differentialgleichungen (4.7) gehen neben den durch Gl. (4.8) bestimmten Yieldvektor und den berechneten effektiven Wirkungsquerschnitten auch die jeweiligen Zerfallskonstanten der Spaltprodukte ein. Diese stehen in hierfür erstellten Dateien zur Verfügung. Mit dem somit vollständig bestimmten Gleichungen (4.7) können nun die Konzentrationen der Spaltprodukte für einen Iterationsschritt berechnet werden.

Bei der Behandlung der Spaltprodukte mittels der Ketten aus Abb. 4.7 kommt es nicht zu einer Rückwirkung eines später in der Kette auftauchenden Tochternuklids auf ein Vorläufernuklid (im Gegensatz hierzu taucht diese Situation bei der Behandlung der Aktinide aufgrund von (n,2n)- und (n,3n)-Reaktionen sowie α - und β^+ -Zerfällen auf, siehe Abb. 4.6). Löst man daher zunächst die Differentialgleichung für ein früher in der Kette stehendes Nuklid, so kann man diese Lösung unmittelbar in die Differentialgleichung eines Tochternuklids einsetzen. Die einzelnen Differentialgleichungen sind daher entkoppelt, so daß nur noch einfache lineare Differentialgleichungen mit

²⁴Hierzu zählen neben den spezifizierten Nukliden hauptsächlich Curium, aber auch z. B. ^{237}Np .

²⁵In der verwendeten JEF-Datenbank sind sowohl der direkte als auch der kumulative Yield angegeben.

konstanten Koeffizienten und einer Inhomogenität gelöst werden müssen (siehe hierzu auch Anhang A). Hierfür kann die *Mathematica*-Funktion `DSolve` verwendet werden.

Repräsentatives Spaltprodukt

Für die Berechnung der effektiven Wirkungsquerschnitte und des Neutronenflusses im nächsten Zeitintervall mittels MCNP4A muß nun der Einfluß der Spaltprodukte in geeigneter Weise berücksichtigt werden. Da für viele wichtige Spaltprodukte keine MCNP4A-Bibliotheken vorhanden sind, wird ein repräsentatives Pseudonuklid verwendet, dessen (n,γ) -Querschnitt als Funktion der Neutronen-Geschwindigkeit für thermische Neutronen einen $1/v$ -Verlauf aufweist. Dessen Konzentration $N^{pseudo}(t_k)$ wird so gewählt, daß der makroskopische Wirkungsquerschnitt des Pseudonuklids dem der Summe der Spaltprodukte entspricht:

$$N^{pseudo}(t_k) = \left(\sum_i N^i(t_k) \sigma_{a,k}^i \right) / \sigma_{a,k}^{pseudo}.$$

Die Summe umfaßt alle berücksichtigten Spaltprodukte bis auf unten aufgeführte Ausnahmen.

Explizit in MCNP4A erfaßte Spaltprodukte

Für einige der wichtigen Spaltprodukte sind Wirkungsquerschnitts-Bibliotheken vorhanden, so daß diese explizit in MCNP4A berücksichtigt werden können. Hierzu zählen die Nuklide ^{135}Xe und ^{149}Sm , welche daher standardmäßig von der Abbrandroutine an MCNP4A übergeben werden.²⁶ Dies kann auch für weitere Nuklide geschehen, wobei sie dann aus obiger Summe entfallen. was insbesondere dann relevant ist, wenn Brennstoff mit einem anfänglichen Anteil an (brennbaren) Neutronengiften untersucht wird. Sind diese in relativ großen Konzentrationen vorhanden, so können Selbstabschirmungseffekte eine Rolle bei der Bestimmung der effektiven Wirkungsquerschnitte spielen. Neutronengifte werden entweder zur Kompensation anfänglicher Überreaktivität frischen Brennstoffs oder als Resonanzabsorber zur Beeinflussung der Temperaturkoeffizienten des Brennstoffs verwendet (siehe [G1a 98]).

²⁶Diese stellen starke Neutronenabsorber dar und erreichen bereits nach kurzer Zeit ihre Gleichgewichtskonzentrationen.

Kapitel 5

Validierung des Programmsystems

So I began this memoir, which became grinding labor, especially when it fell short of absolute truth. The lack is not through deceit, but because truth is difficult. Fools think truth is a simple thing, but I've found that it is hard. The facts I've written are real, but facts and truth are cousins, not brothers.

Edward Bunker, No Beast So Fierce.

Ein notwendiger Schritt vor der Anwendung des entwickelten Programmsystems stellt die Verifizierung mittels vorhandener Daten dar, welche eine Aussage über die erreichte Genauigkeit der Ergebnisse und eventuelle systematische Abweichungen möglich machen soll.

Das hier gewählte Validierungsverfahren – ein Vergleich des entwickelten Programmsystems mit anderen existierenden Computer-Codes zur Bestimmung des nuklearen Abbrandes – stellt naturgemäß kein „richtiges“ Ergebnis im Sinne einer experimentell bestimmten Nuklidzusammensetzung eines abgebrannten Brennstoffs zur Verfügung, mit welchem die Ergebnisse der Abbrandrechnungen verglichen werden könnten.¹ Dies ist jedoch aufgrund der Tatsache gerechtfertigt, daß gerade für die im Rahmen dieser Arbeit besonders interessierenden Brennstoffe mit hohem (anfänglichem) Plutoniumgehalt nur wenige Analysen bestrahlten Brennstoffs existieren, welche zum Vergleich herangezogen werden könnten.² Darüber hinaus sind natürlich auch die zur Validierung herangezogenen Computer-Codes ihrerseits durch den Vergleich mit Bestrahlungsproben validiert worden.

Im folgenden werden Ergebnisse einer Studie der NEA [NEA 95b] zur Rezyklierung von Plutonium in LWR's verwendet, um einen Benchmark des entwickelten Programm-

¹Zur Unterscheidung zwischen Validierung anhand von theoretischen Referenzlösungen und Referenzmeßergebnissen siehe auch [DIN 78].

²Aufgabe von Simulationsrechnungen für neuartige Brennstoffe ist schließlich gerade die Untersuchung des Verhaltens von Brennstoffen, bevor diese in einem Reaktor zum Einsatz kommen, um damit Bestrahlungsexperimente für eine bestimmte Brennstoffzusammensetzung vorzubereiten.

systems durchzuführen, da im Kontext dieser Arbeit insbesondere Brennstoffe mit einem hohem Plutonium-Anteil von besonderem Interesse sind.

5.1 NEA Benchmark: Physics of Plutonium Recycling

Der von der NEA durchgeführte Benchmark *Plutonium Recycling in Pressurized Water Reactors* [NEA 95b] diente der Untersuchung und Klärung von Unterschieden zwischen verschiedenen Programmsystemen bei der Berechnung des Abbrandes von Brennstoffen mit einem hohen Plutonium-Anteil. Hierzu wurden zwei Einheitszellrechnungen mit gleicher Geometrie jedoch unterschiedlicher Anfangszusammensetzung des Brennstoffs vorgegeben.

5.1.1 Zielsetzung und Teilnehmer

Aufgabe war die Untersuchung des Verhaltens von Brennstoffen, wie sie bei mehrfacher Wiederaufarbeitung abgebrannter Brennelemente in einem (hypothetischen) geschlossenen Brennstoffkreislauf auftreten könnten. Besondere Bedeutung gewinnen dabei die Isotope ^{240}Pu und ^{242}Pu , welche aufgrund der hohen Konzentrationen starke Resonanzselbstabschirmung aufweisen (siehe Kap. 3.3), wie dies in Uranbrennstoffen nur in wesentlich geringerem Maße auftritt. Untersucht wurde neben den abbrandabhängigen effektiven Wirkungsquerschnitten und den Änderungen der Nuklidkonzentrationen auch das Verhalten des Multiplikationsfaktor k_{∞} , des totalen Neutronenflusses und des Neutronenspektrums $\phi(E)$ im Verlaufe des Abbrandes von 0 MWd/kg (Begin Of Life, BOL) bis 50 MWd/kg (End Of Life, EOL).

Zur Auswertung standen 14 verschiedene Ergebnisse von 12 Institutionen aus 9 Ländern zur Verfügung. Neben verschiedenen Computer-Codes lagen den Berechnungen auch verschiedene Wirkungsquerschnitts-Datenbanken zu Grunde, welche wesentlich in die Bestimmung der effektiven Wirkungsquerschnitte eingehen.

5.1.2 Benchmark Spezifikationen

Geometrie: Die Einheitszelle besteht aus Brennstoff, Brennstoffhülle und Moderator.

Die Kantenlänge der Zelle beträgt 1.3133cm, der Außenradius der Brennstoffhülle 0.4750cm und der Radius des Brennstoffs 0.4095cm (siehe Abb. 4.1). Zellrechnungen sollen unter der Annahme verschwindender Neutronenleckage durchgeführt werden.

Die Modellierung der Einheitszelle in MCNP4A wurde mittels periodischer Flächen realisiert (siehe [Bri 93], S. 2-14 ff.). Ein auf einer Seite aus der Zelle austretendes Neutron tritt hierbei auf der entgegengesetzten Seite mit gleicher

Richtung und Energie wieder in die Zelle ein. In Richtung der Symmetrieachse des Brennstoffzylinders ist die Zelle unbeschränkt (siehe auch Kap. 4.1.1).

Temperaturen und Leistungsdichte: Die Temperatur des Brennstoffs ist vorgegeben und soll 660 °C betragen, diejenige der Brennstoffhülle und des Moderators 306.3 °C. Für die Berechnung des Abbrandes soll eine über den Abbrand gemittelte und konstant gehaltene Leistungsdichte von 38.3 W/g angenommen werden.

Bei der Berechnung der effektiven Wirkungsquerschnitte mittels MCNP4A müssen mehrere durch die Temperatur von Moderator und Brennstoff bedingte Effekte berücksichtigt werden (siehe Kap. 3.3.3). Eine Korrektur der elastischen Wirkungsquerschnitte sowie die Bestimmung der mittleren Geschwindigkeit der Streuatome werden von MCNP4A vorgenommen. Die hierbei zugrundegelegten Temperaturen entsprechen den im Benchmark vorgegebenen Werten. Der Temperaturabhängigkeit der nuklearen Wirkungsquerschnitte (über die Doppler-Verbreiterung der Resonanzen) muß hingegen durch Verwendung einer speziellen Wirkungsquerschnitts-Bibliothek Rechnung getragen werden. Die für MCNP4A zur Verfügung stehenden Wirkungsquerschnitts-Dateien sowie die zugehörigen Temperaturen sind für die wichtigsten Nuklide in Tab. 5.1 angegeben. Dabei

Nuklid	Bibliothek	T [K]
^1H	EPRIXS	600
^{10}B	EPRIXS	600
^{235}U	EPRIXS	900
^{238}U	EPRIXS	900
^{238}Pu	ENDF5P	300
^{239}Pu	RMCCS	300
^{240}Pu	RMCCS	300
^{241}Pu	ENDF5P	300
^{242}Pu	ENDF5P	300

Tabelle 5.1: Die gewählten Wirkungsquerschnitts-Dateien (siehe [Bri 93], Appendix G) und die zugehörigen Temperaturen für die wichtigsten Nuklide.

stimmen insbesondere für die verschiedenen Plutoniumisotope die bei der Erstellung der Bibliotheken zugrundegelegten Temperaturen nicht mit den spezifizierten Werten überein, so daß insbesondere für die Nuklide ^{240}Pu und ^{242}Pu ein systematischer Fehler bei der Bestimmung der effektiven Wirkungsquerschnitte erwartet werden muß (siehe Kap. 5.3).

Für die korrekte Behandlung der Neutronenthalisierung werden von MCNP4A außerdem spezielle Querschnittsdateien für die Streuung von Neutro-

nen an Wasserstoff (unter Berücksichtigung der chemischen Bindung in Wasser) verwendet. Hier liegt eine Bibliothek für eine Temperatur von 600 K vor, welche nahezu mit der vorgegebenen Temperatur des Benchmarks übereinstimmt.

Materialzusammensetzung: Benchmark A untersucht einen Brennstoff mit Plutonium von ungünstiger Isotopenzusammensetzung, d.h. einem hohen Anteil an Isotopen von gerader Massenzahl, welche beim Einfang von thermischen Neutronen nicht gespalten werden. Der gewählte Isotopenvektor (siehe Tab. 5.2) entspricht etwa der Plutoniumzusammensetzung nach dem fünften Wiederaufarbeitungsschritt (MOX-A). Der Plutoniumanteil am Brennstoff beträgt 12.5 wt%, dies

	MOX A	MOX B
^{234}U		0.00119
^{235}U	0.711	0.25000
^{238}U	99.289	99.74881
^{238}Pu	4.0	1.8
^{239}Pu	36.0	59.0
^{240}Pu	28.0	23.0
^{241}Pu	12.0	12.2
^{242}Pu	20.0	4.0

Tabelle 5.2: Isotopenzusammensetzung des Brennstoffs für Benchmark A und B in wt%.

entspricht einem Anteil an thermisch spaltbaren Plutoniumisotopen von 6 wt%. Die Isotopenzusammensetzung des Urans entspricht etwa derjenigen von Natururan (siehe Tab. 5.2). Die Dichte des Brennstoffs beträgt 9.07g/cm^3 Schwermetall. Die sich daraus ergebenden Nuklidkonzentrationen sind in Anhang D aufgeführt.

Als Brennstoffhüllmaterial wird natürliches Zirkonium angenommen.

Als Moderator ist Wasser bei einer Dichte von 0.713g/cm^3 (entsprechend Druck und Temperatur des Kühlwassers) vorgegeben. Dieses enthält 500 ppm Bor (18.3 wt% ^{10}B , 81.7 wt% ^{11}B), welches als Neutronengift zum Ausgleich des abbrandabhängigen Reaktivitätsverlustes des Brennstoffs dem Moderator zugefügt wird.

In Benchmark B wird bei ansonsten gleichen Materialzusammensetzungen ein Brennstoff mit Plutonium aus der ersten Wiederaufarbeitungsgeneration (MOX-B, Isotopenzusammensetzung siehe Tab. 5.2) verwendet. Der Gehalt an thermisch spaltbaren Plutoniumisotopen soll 4.0 wt% betragen. Die Isotopenzusammensetzung des Urans entspricht abgereichertem Uran (Tab. 5.2). Die Dichte des Brennstoffs beträgt 8.52g/cm^3 Schwermetall. Die sich daraus ergebenden Nuklidkonzentrationen sind in Anhang D aufgeführt.

Spaltenergiefreisetzung: Für die Nuklide ^{235}U , ^{238}U , ^{239}Pu , ^{241}Pu und ^{242m}Am sind explizite Werte für die Energiefreisetzung pro Spaltung angegeben. Diese wurden bei den Abbrandrechnungen im Rahmen dieser Arbeit verwendet (siehe auch Tab. 4.2).

5.2 Zusammenstellung der Ergebnisse

In diesem Abschnitt sollen zunächst die im Rahmen dieser Arbeit bestimmten Ergebnisse der Abbrandrechnungen vergleichend zu den Ergebnissen der Benchmark-Teilnehmer vorgestellt werden. Für die Ergebnisse dieser Arbeit wurde hierbei die Abkürzung IKDA (Institut für Kernphysik Darmstadt), für Mittelwerte der Benchmark-Teilnehmer die Abkürzung NEA verwendet. Eine Diskussion der hierbei deutlich werdenden Unterschiede erfolgt in Kap. 5.3.

5.2.1 Multiplikationsfaktor k_{∞}

Die Abbildungen 5.1 und 5.2 zeigen den Verlauf des Multiplikationsfaktors k_{∞} für Benchmark A bzw. B in Abhängigkeit vom Abbrand. Die mit MCNP bestimmten Werte sind als Punkte gekennzeichnet und zur besseren Übersicht zu einer Linie verbunden.

Für einen Abbrand von 0, 10, 33, 42 und 50 MWD/kg ist außerdem der Mittelwert der Benchmark-Teilnehmer als Punkt eingetragen. Die zugehörigen Fehlerbalken ergeben sich aus dem jeweiligen Maximal- und Minimalwert der Benchmark-Teilnehmer.

Die Abweichung der mit MCNP berechneten Werte des k_{∞} vom Mittelwert der Benchmark-Teilnehmer beträgt für Benchmark A zu Beginn des Abbrandes 0.9 % und fällt bis auf 0.5 % am Ende des Abbrandes. Für Benchmark B betragen die Abweichungen zu Beginn des Abbrandes 0.3 % und steigt bis auf 1.1 % am Ende des Abbrandes.

5.2.2 Totaler Neutronenfluß

Werte für den totalen Neutronenfluß in Abhängigkeit vom Abbrand zeigt Tab. 5.3. Im Vergleich zu den Werten, welche im Rahmen dieser Arbeit bestimmt wurden (IKDA) ist wiederum der Mittelwert der Benchmark-Teilnehmer (NEA) angegeben. Während für Benchmark A die Abweichungen von Mittelwert weniger als 0.3 % betragen, nimmt die Abweichung bei Benchmark B von anfänglich 2.2 % bis zu 4.3 % zu. Die Abweichungen zwischen den Benchmark-Teilnehmern lagen im Mittel für Benchmark A bei 7 %, für Benchmark B bei 4 %.

5.2.3 Effektive Wirkungsquerschnitte

Die Tabellen 5.4 bis 5.7 geben die berechneten effektiven Wirkungsquerschnitte der wichtigsten Nuklide für Neutronenabsorption und Spaltung zu Beginn und am Ende des

Abbrandes an. Zum Vergleich ist der Mittelwert der Benchmark-Teilnehmer aufgeführt (für eine detailliertere Aufstellung siehe Anhang C).

5.2.4 Nuklidkonzentrationen

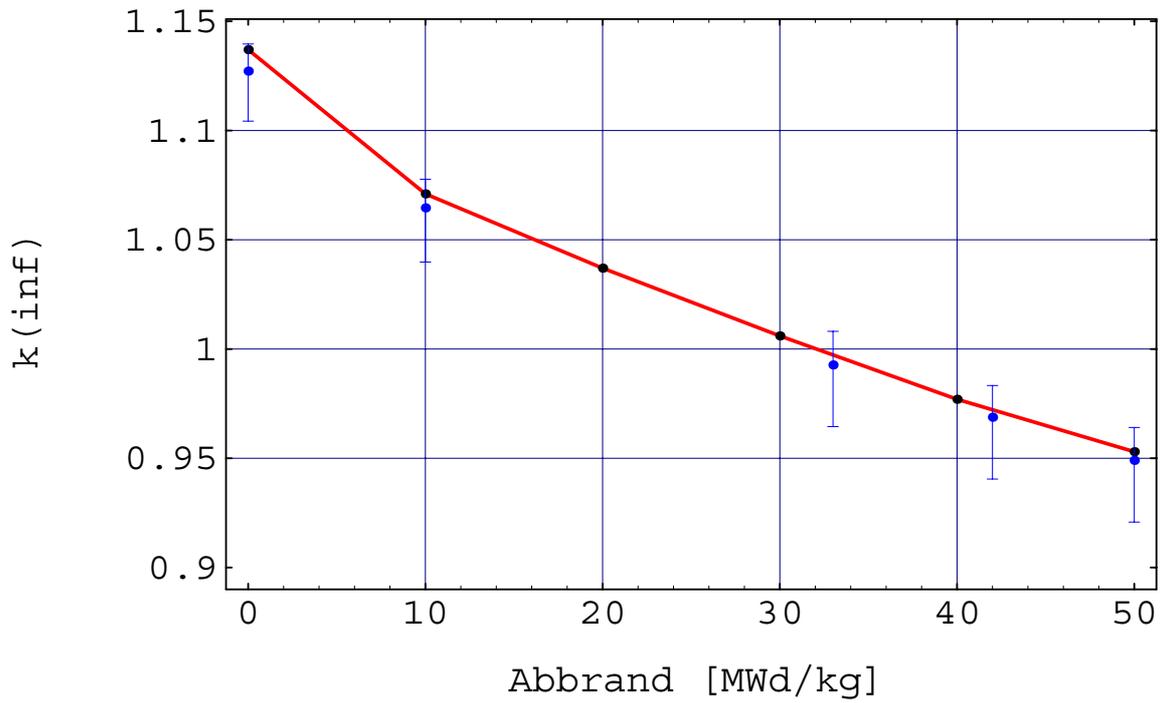
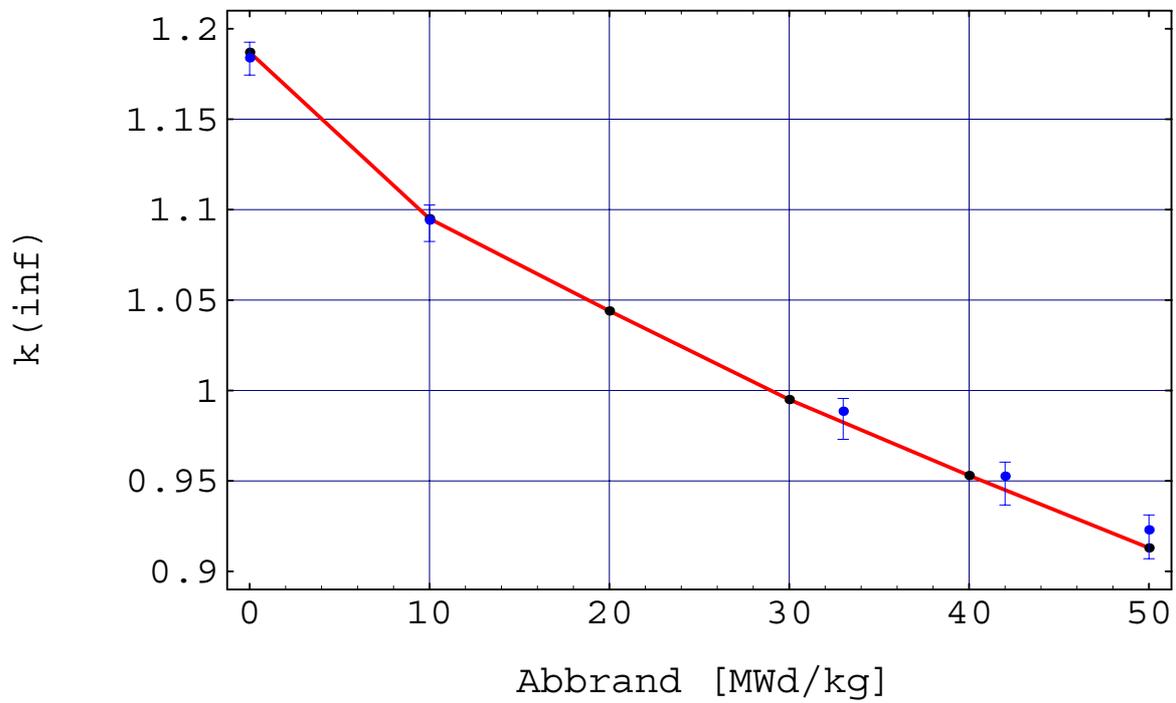
Die Abbildungen 5.3 bis 5.10 zeigen die mit dem im Rahmen dieser Arbeit entwickelten Programmsystem bestimmten Nuklidkonzentration einiger wesentlicher Nuklide für Benchmark A im Verlauf des Abbrandes, in den Abbildungen 5.13 bis 5.20 sind die entsprechenden Nuklidkonzentrationen für Benchmark B wiedergegeben. Neben den wichtigsten Uran- und Plutonium-Isotopen sind hierbei auch die Nuklide ^{237}Np , ^{242}Cm sowie ^{244}Cm dargestellt, da diese eine wichtige Rolle für die Radiotoxizität und Wärmeentwicklung des abgebrannten Brennstoffs spielen (siehe hierzu beispielsweise [Wan 82] und [Kir 85]).

Die Werte bei einem Abbrand von 0, 2.5, 7.5, 12.5, 17.5, 22.5, 27.5, 32.5, 37.5, 42.5, 47.5 und 50 MWd/kg, welche den Intervallgrenzen der Abbrandrechnung entsprechen, sind durch Punkte hervorgehoben.

Für einen Abbrand von 10, 33, 42 und 50 MWd/kg ist außerdem der Mittelwert der Benchmark-Teilnehmer als Punkt eingetragen. Die zugehörigen Fehlerbalken ergeben sich aus dem jeweiligen Maximal- und Minimalwert der Benchmark-Teilnehmer.

		0 MWd/kg	10 MWd/kg	33 MWd/kg	42 MWd/kg	50 MWd/kg
MOX A	IKDA	3.0137	3.1705	3.4146	3.5189	3.5958
	NEA	3.0065	3.1654	3.4053	3.4980	3.5844
MOX B	IKDA	2.9201	3.1388	3.5561	3.7210	3.8763
	NEA	2.8559	3.0794	3.4282	3.5778	3.7159

Tabelle 5.3: Totaler Neutronenfluß [$10^{14}/\text{cm}^2\text{s}$] in Abhängigkeit vom Abbrand.

Abbildung 5.1: k_{∞} in Abhängigkeit vom Abbrand für Benchmark A.Abbildung 5.2: k_{∞} in Abhängigkeit vom Abbrand für Benchmark B.

Nuklid	0 MWd/kg		50 MWd/kg	
	NEA	IKDA	NEA	IKDA
²³⁵ U	1.61E+01	1.62E+01	1.72E+01	1.69E+01
²³⁸ U	9.31E-01	9.26E-01	9.36E-01	9.38E-01
²³⁸ Pu	9.09E+00	9.26E+00	9.73E+00	9.64E+00
²³⁹ Pu	3.16E+01	3.13E+01	3.66E+01	3.57E+01
²⁴⁰ Pu	1.99E+01	2.01E+01	2.10E+01	2.18E+01
²⁴¹ Pu	3.49E+01	3.54E+01	3.78E+01	3.80E+01
²⁴² Pu	8.23E+00	6.63E+00	8.67E+00	6.62E+00
²⁴¹ Am	3.49E+01	3.52E+01	3.52E+01	3.57E+01
²⁴³ Am	3.52E+01	3.53E+01	2.74E+01	2.86E+01
²⁴³ Cm	5.15E+01	2.98E+01	5.03E+01	3.04E+01
²⁴⁴ Cm	1.33E+01	1.38E+01	1.17E+01	1.09E+01

Tabelle 5.4: Absorptionsquerschnitt der wichtigsten Nuklide für Benchmark A bei BOL und EOL.

Nuklid	0 MWd/kg		50 MWd/kg	
	NEA	IKDA	NEA	IKDA
²³⁵ U	1.19E+01	1.19E+01	1.27E+01	1.24E+01
²³⁸ U	1.22E-01	1.17E-01	1.22E-01	1.17E-01
²³⁹ Pu	2.02E+01	2.00E+01	2.33E+01	2.26E+01
²⁴⁰ Pu	6.50E-01	6.46E-01	6.48E-01	6.45E-01
²⁴¹ Pu	2.66E+01	2.64E+01	2.87E+01	2.83E+01
^{242m} Am	1.11E+02	1.18E+02	1.23E+02	1.27E+02
²⁴⁵ Cm	3.14E+01	3.18E+01	3.26E+01	3.29E+01

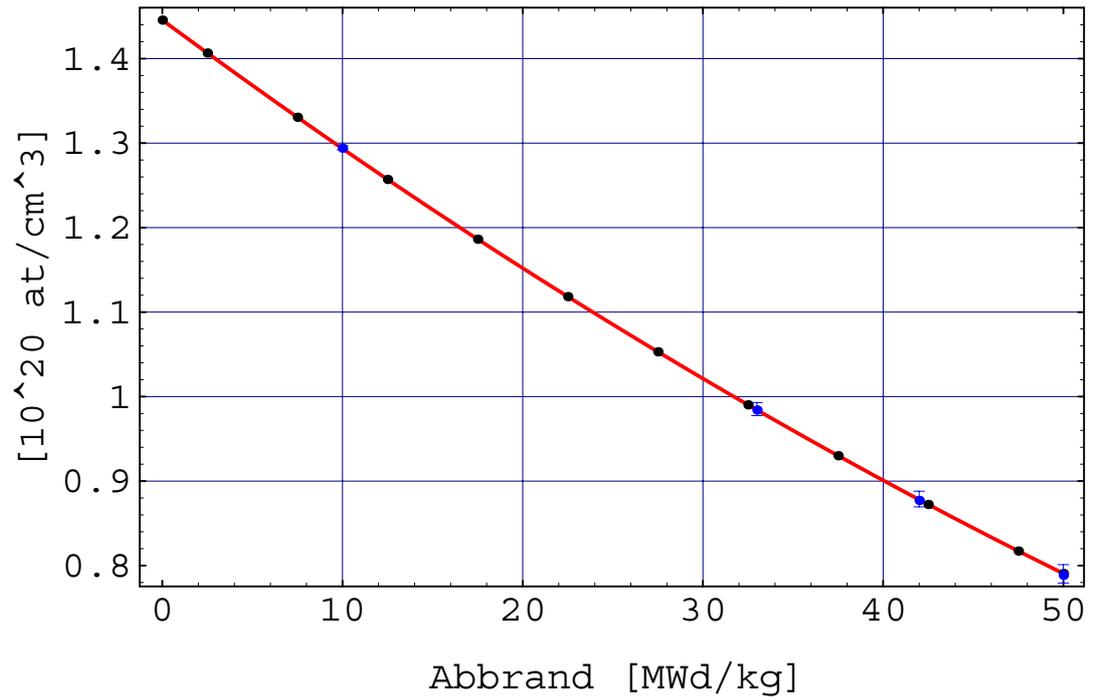
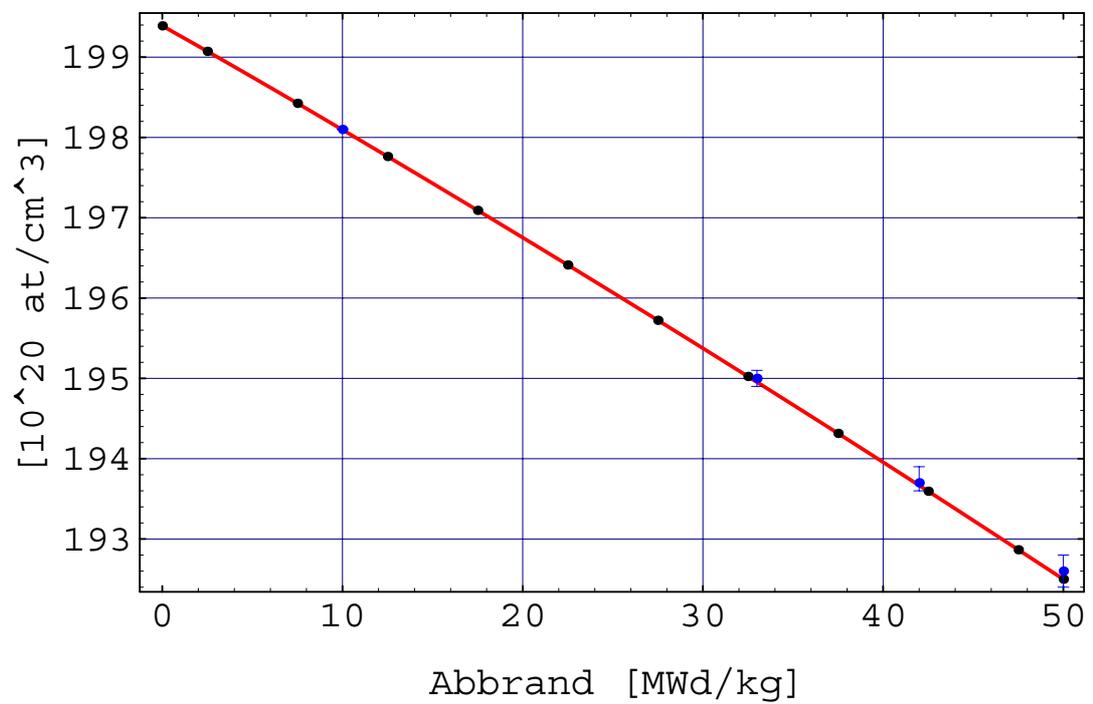
Tabelle 5.5: Spaltquerschnitt der wichtigsten Nuklide für Benchmark A bei BOL und EOL.

Nuklid	0 MWd/kg		50 MWd/kg	
	NEA	IKDA	NEA	IKDA
^{235}U	2.36E+01	2.32E+01	2.94E+01	2.74E+01
^{238}U	9.69E-01	9.59E-01	9.88E-01	9.80E-01
^{238}Pu	1.41E+01	1.42E+01	1.80E+01	1.70E+01
^{239}Pu	5.41E+01	5.32E+01	7.73E+01	7.28E+01
^{240}Pu	4.11E+01	4.03E+01	4.37E+01	4.43E+01
^{241}Pu	5.59E+01	5.65E+01	7.41E+01	7.15E+01
^{242}Pu	2.21E+01	2.13E+01	1.79E+01	1.64E+01
^{241}Am	5.37E+01	5.27E+01	6.22E+01	6.07E+01
^{243}Am	4.58E+01	4.55E+01	3.91E+01	4.10E+01
^{243}Cm	6.71E+01	4.28E+01	7.01E+01	4.91E+01
^{244}Cm	1.47E+01	1.54E+01	1.42E+01	1.42E+01

Tabelle 5.6: Absorptionsquerschnitt der wichtigsten Nuklide für Benchmark B bei BOL und EOL.

Nuklid	0 MWd/kg		50 MWd/kg	
	NEA	IKDA	NEA	IKDA
^{235}U	1.81E+01	1.77E+01	2.30E+01	2.12E+01
^{238}U	1.17E-01	1.13E-01	1.15E-01	1.11E-01
^{239}Pu	3.47E+01	3.41E+01	4.95E+01	4.63E+01
^{240}Pu	6.36E-01	6.27E-01	6.24E-01	6.16E-01
^{241}Pu	4.22E+01	4.17E+01	5.56E+01	5.26E+01
^{242m}Am	2.12E+02	2.14E+02	2.95E+02	2.75E+02
^{245}Cm	5.04E+01	4.99E+01	6.30E+01	5.95E+01

Tabelle 5.7: Spaltquerschnitt der wichtigsten Nuklide für Benchmark B bei BOL und EOL.

Abbildung 5.3: Nuklidkonzentration von ^{235}U , Benchmark A.Abbildung 5.4: Nuklidkonzentration von ^{238}U , Benchmark A.

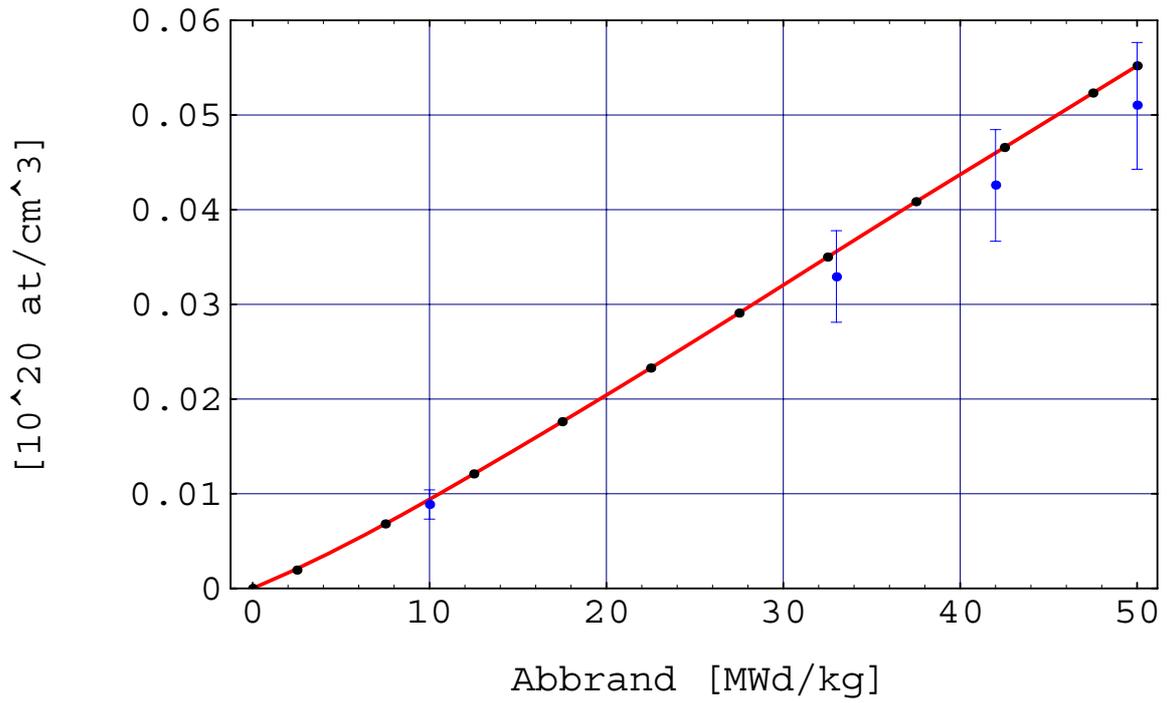


Abbildung 5.5: Nuklidkonzentration von ^{237}Np , Benchmark A.

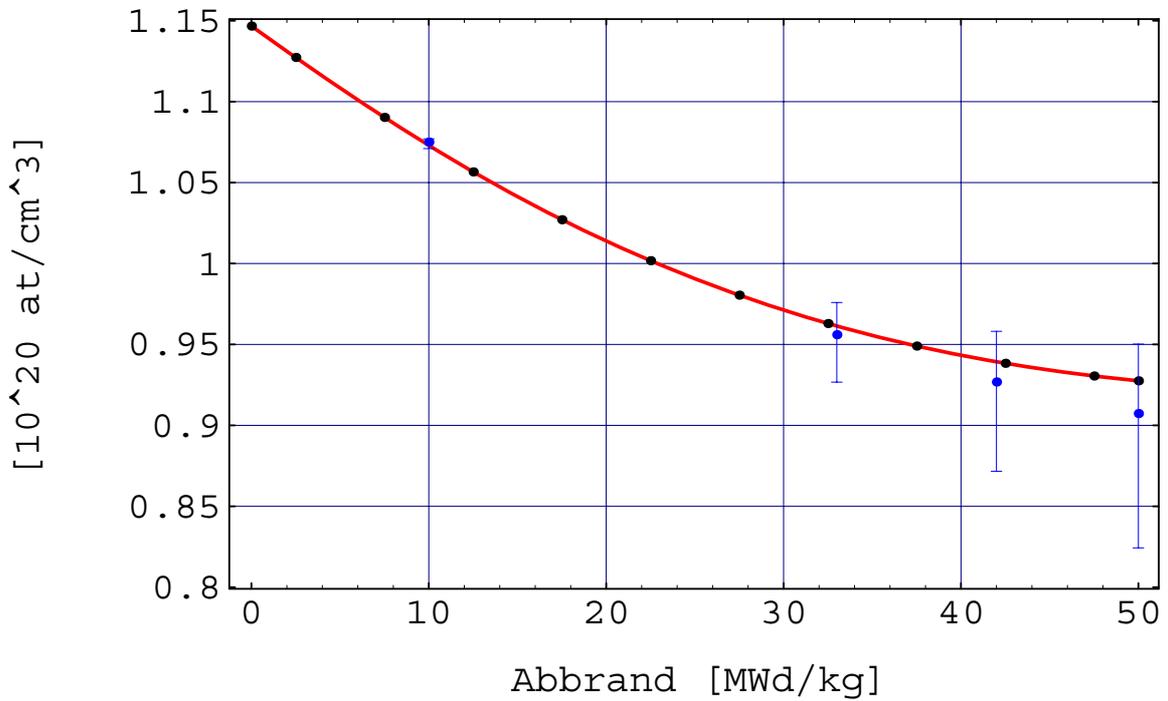
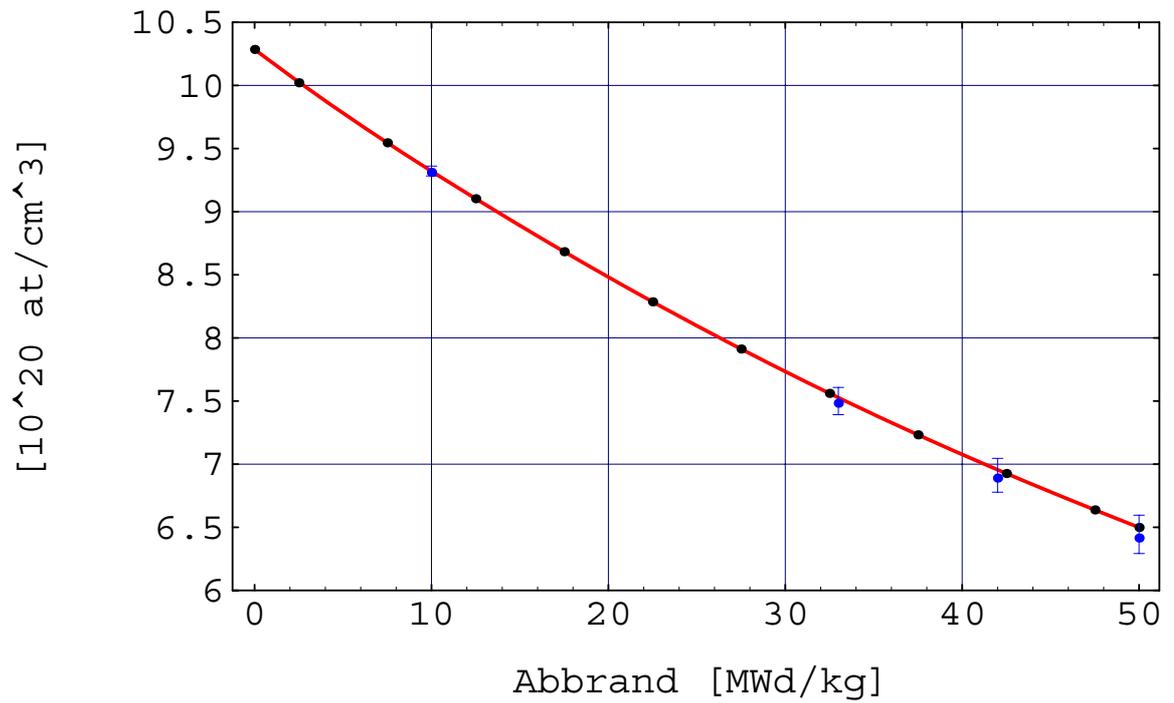
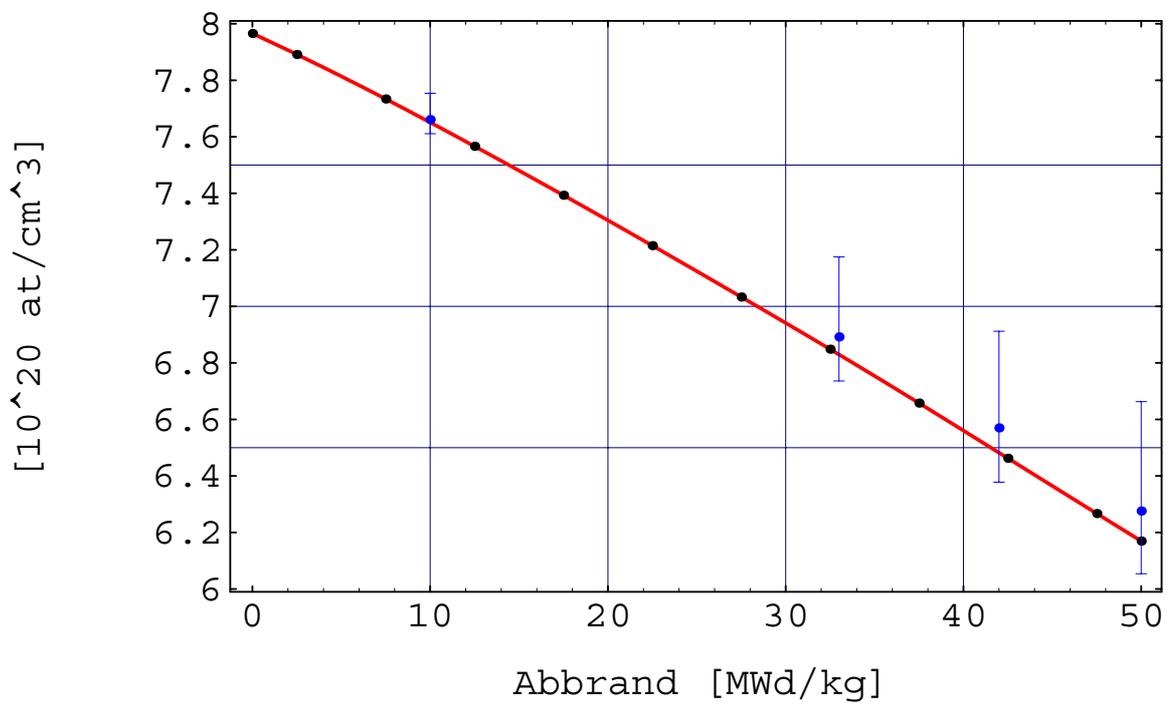


Abbildung 5.6: Nuklidkonzentration von ^{238}Pu , Benchmark A.

Abbildung 5.7: Nuklidkonzentration von ^{239}Pu , Benchmark A.Abbildung 5.8: Nuklidkonzentration von ^{240}Pu , Benchmark A.

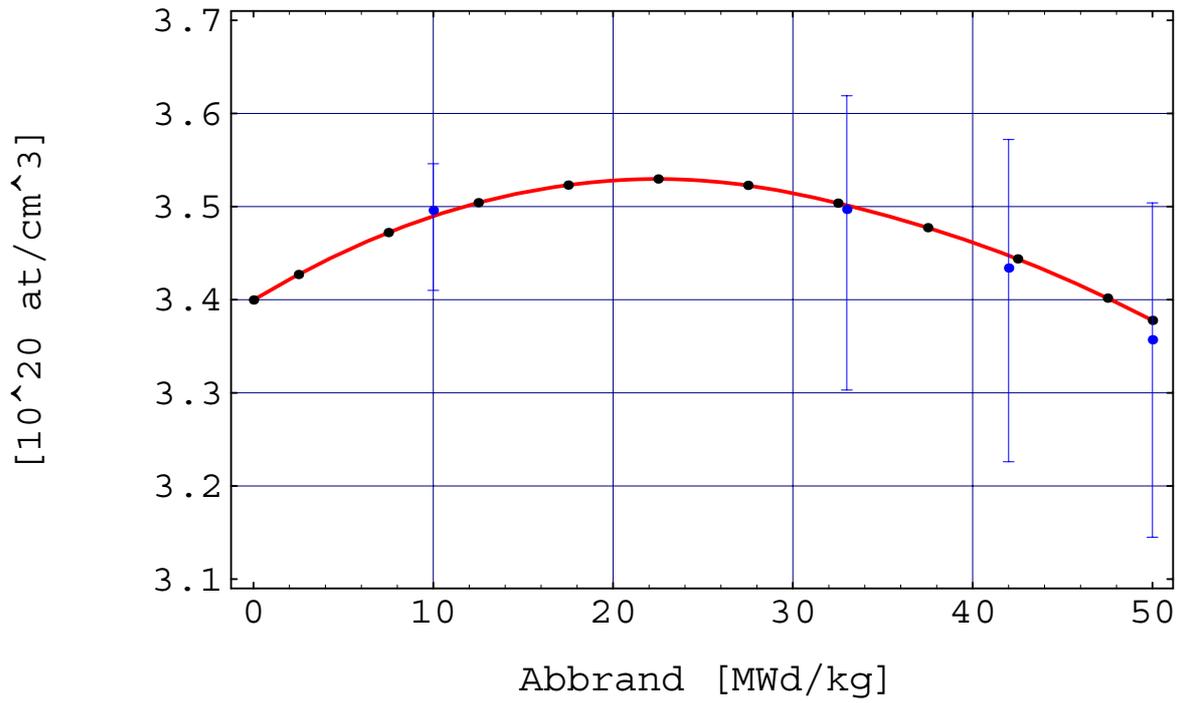


Abbildung 5.9: Nuklidkonzentration von ^{241}Pu , Benchmark A.

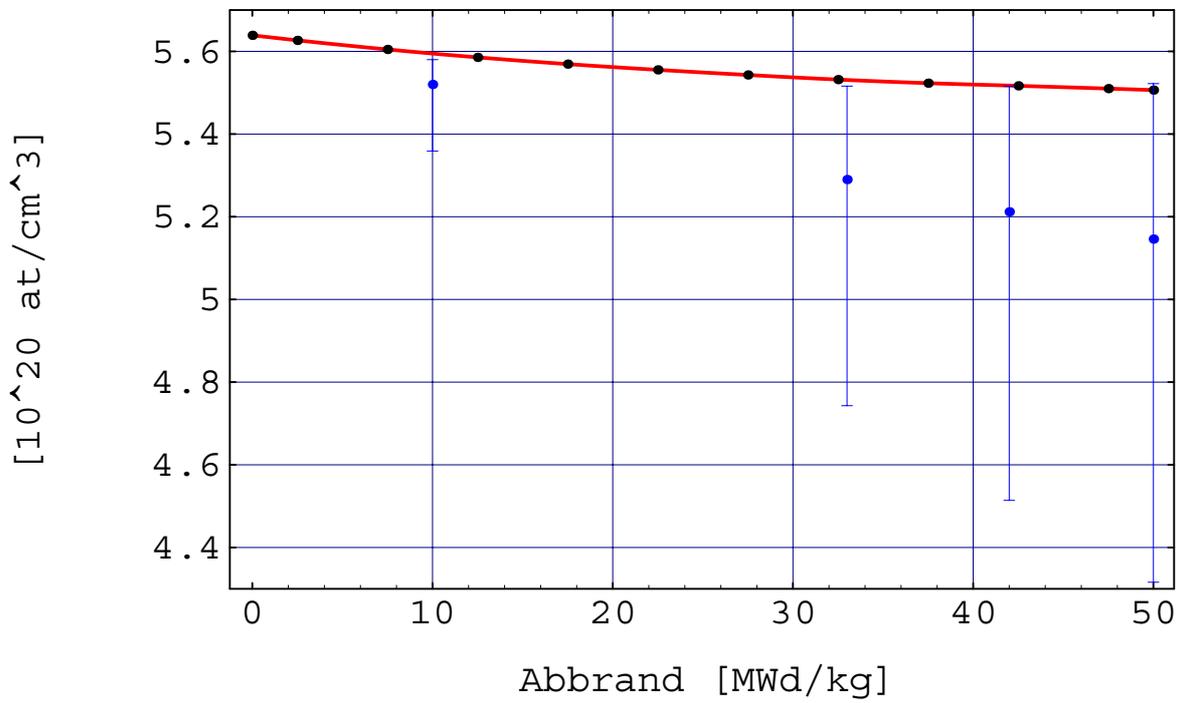
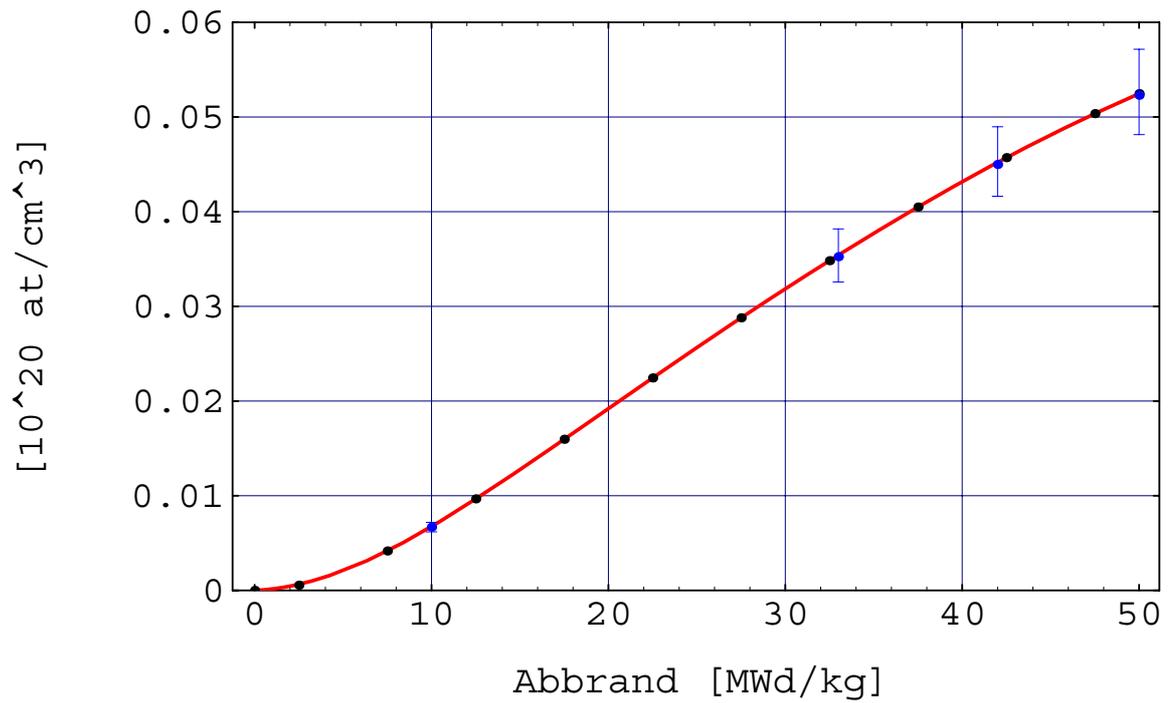
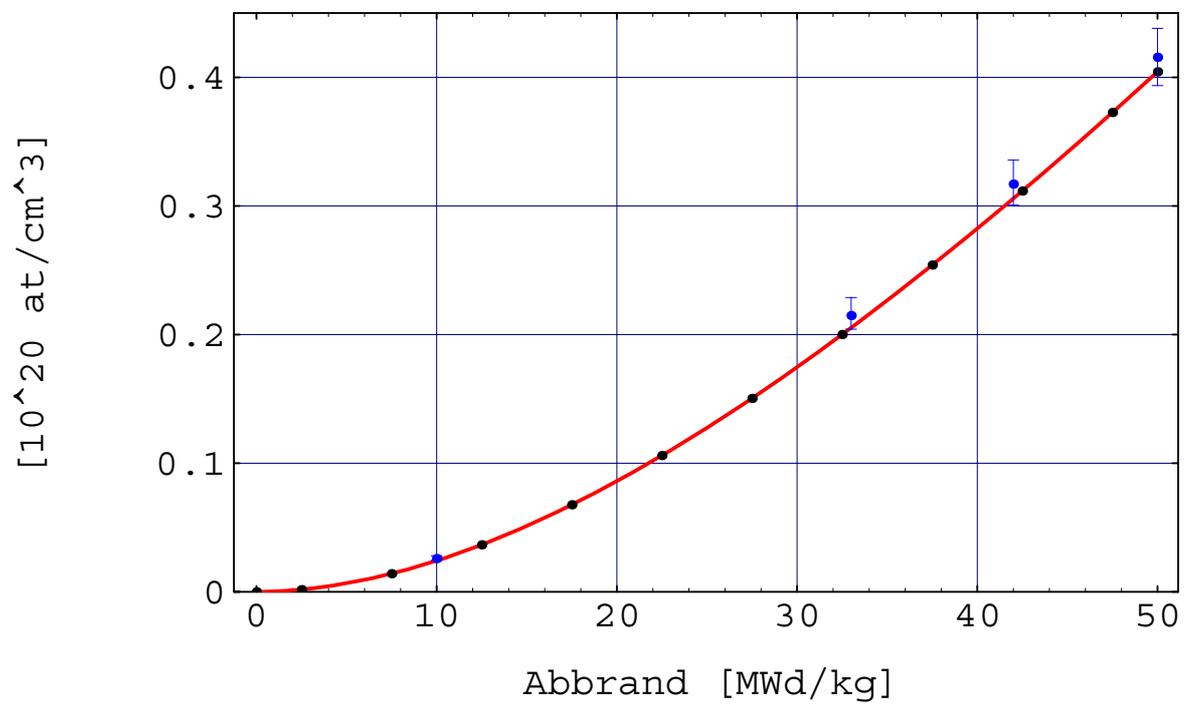


Abbildung 5.10: Nuklidkonzentration von ^{242}Pu , Benchmark A.

Abbildung 5.11: Nuklidkonzentration von ^{242}Cm , Benchmark A.Abbildung 5.12: Nuklidkonzentration von ^{244}Cm , Benchmark A.

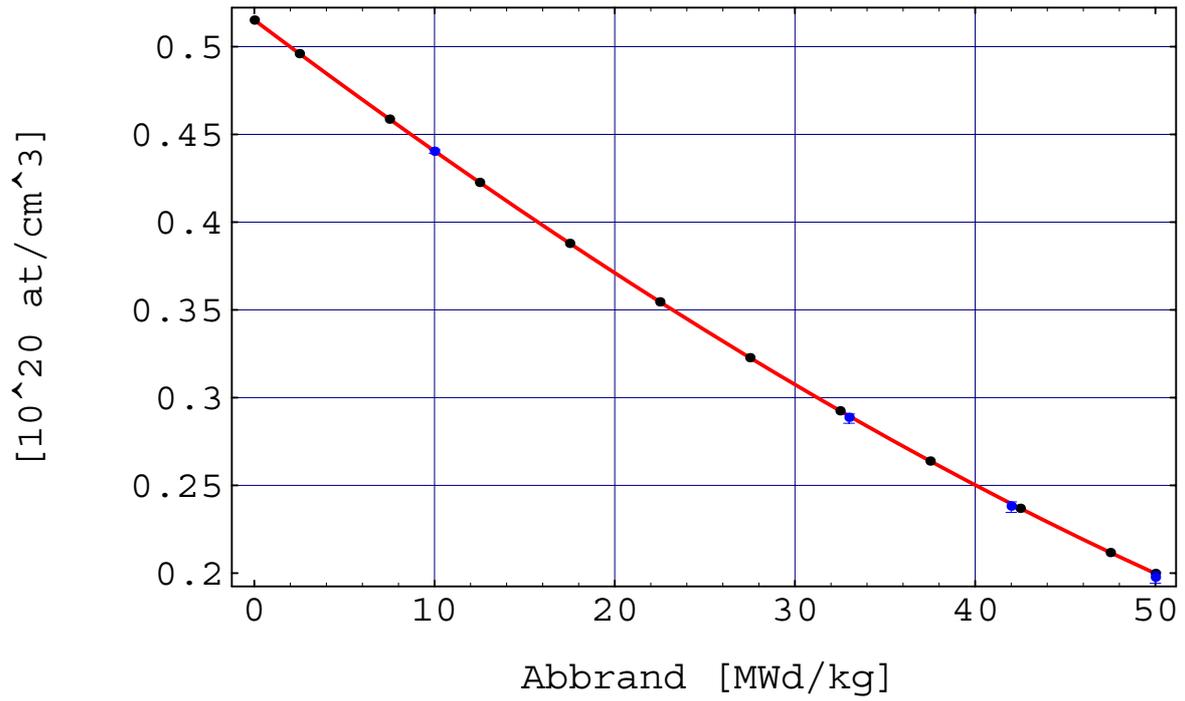


Abbildung 5.13: Nuklidkonzentration von ^{235}U , Benchmark B.

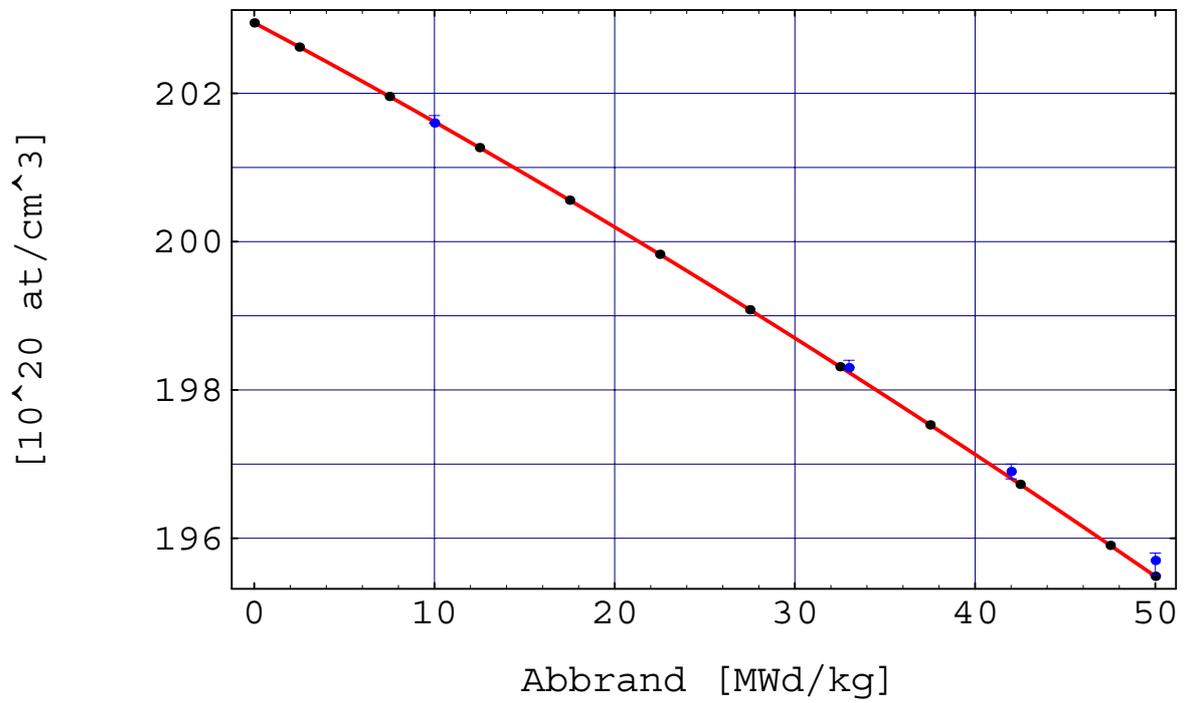
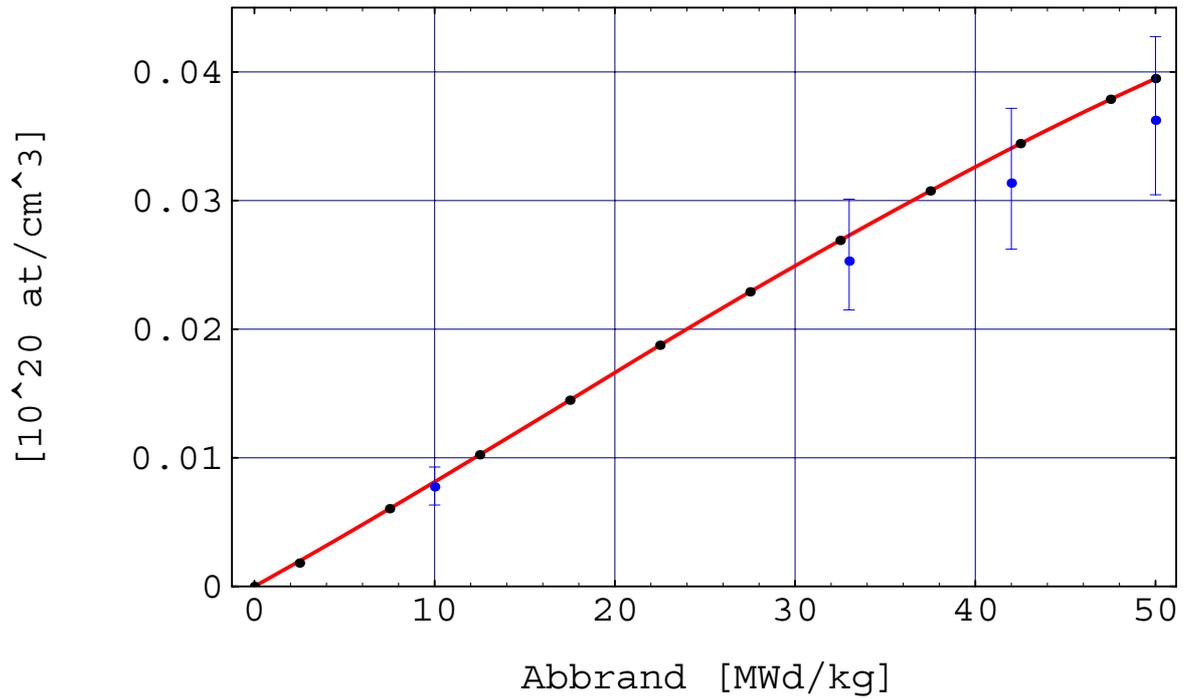
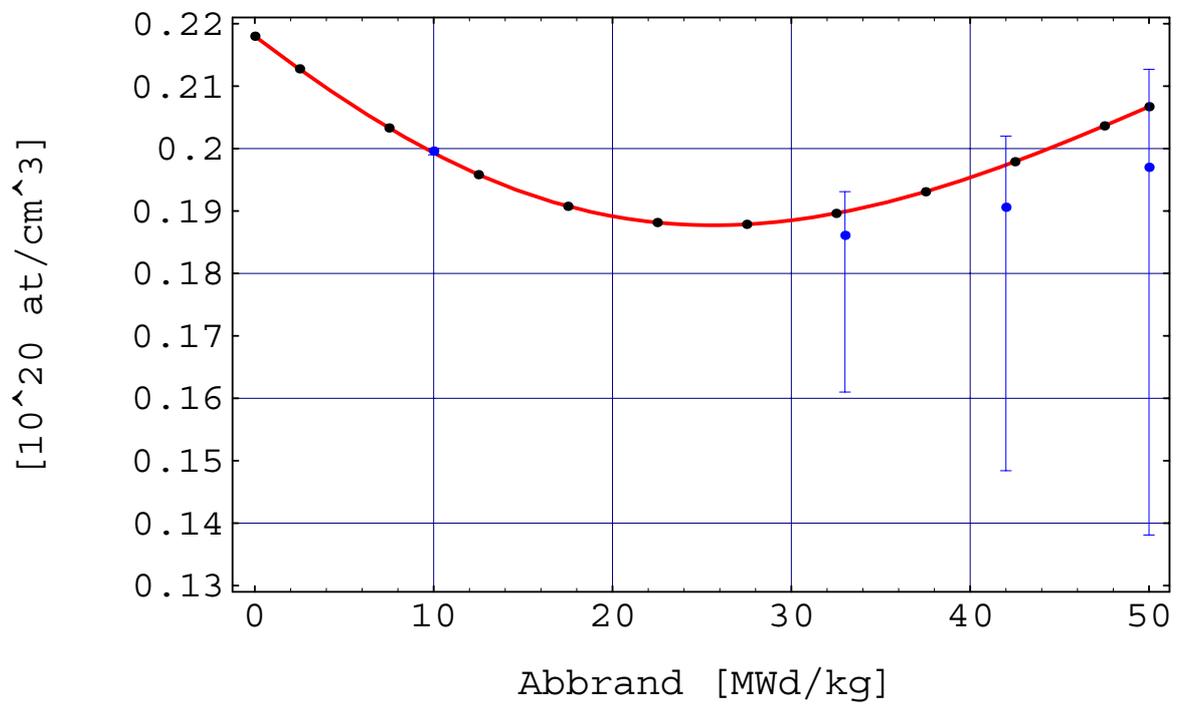


Abbildung 5.14: Nuklidkonzentration von ^{238}U , Benchmark B.

Abbildung 5.15: Nuklidkonzentration von ^{237}Np , Benchmark B.Abbildung 5.16: Nuklidkonzentration von ^{238}Pu , Benchmark B.

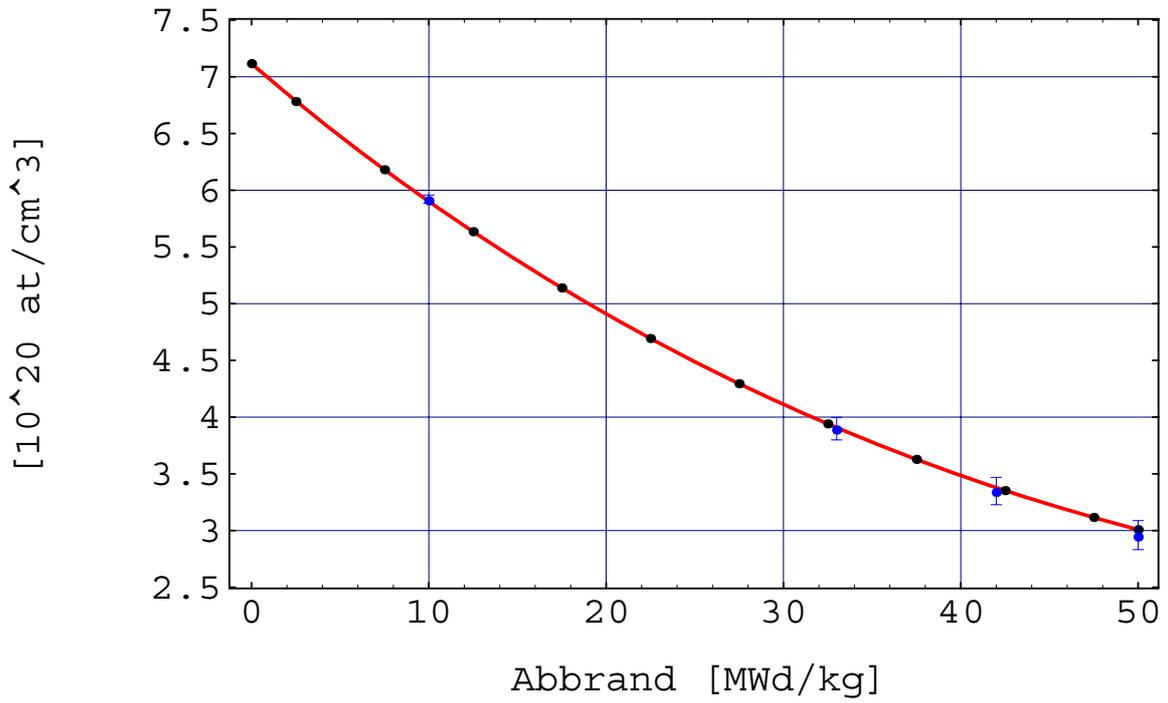


Abbildung 5.17: Nuklidkonzentration von ^{239}Pu , Benchmark B.

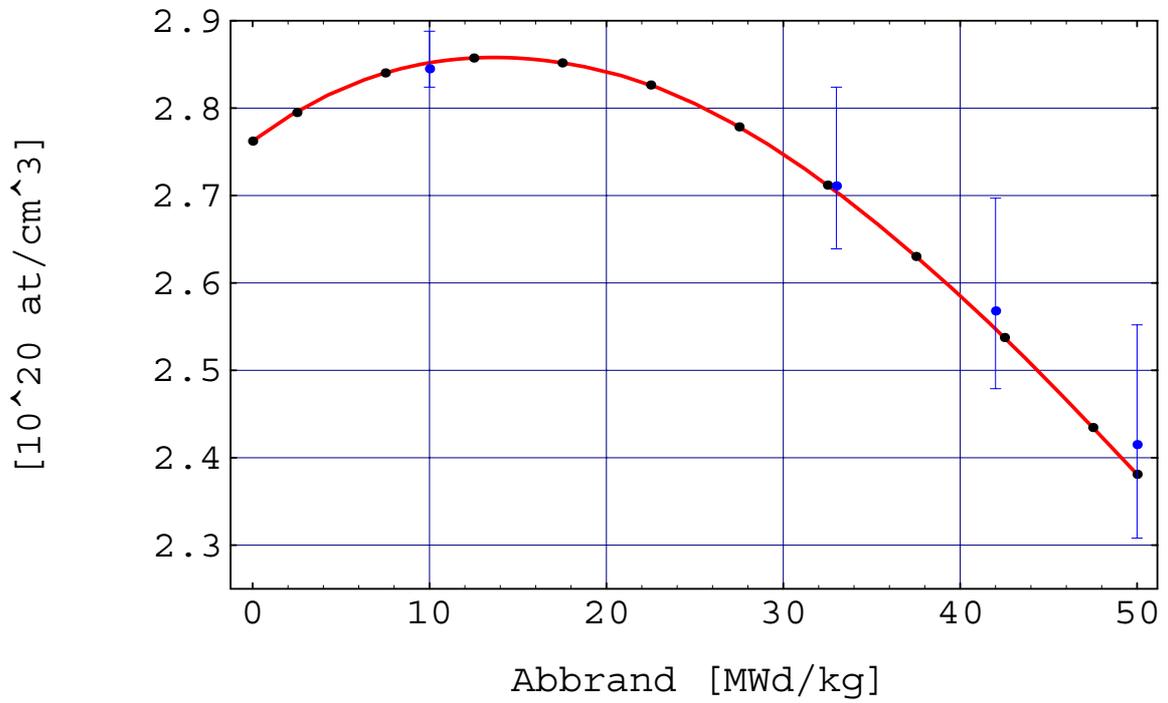
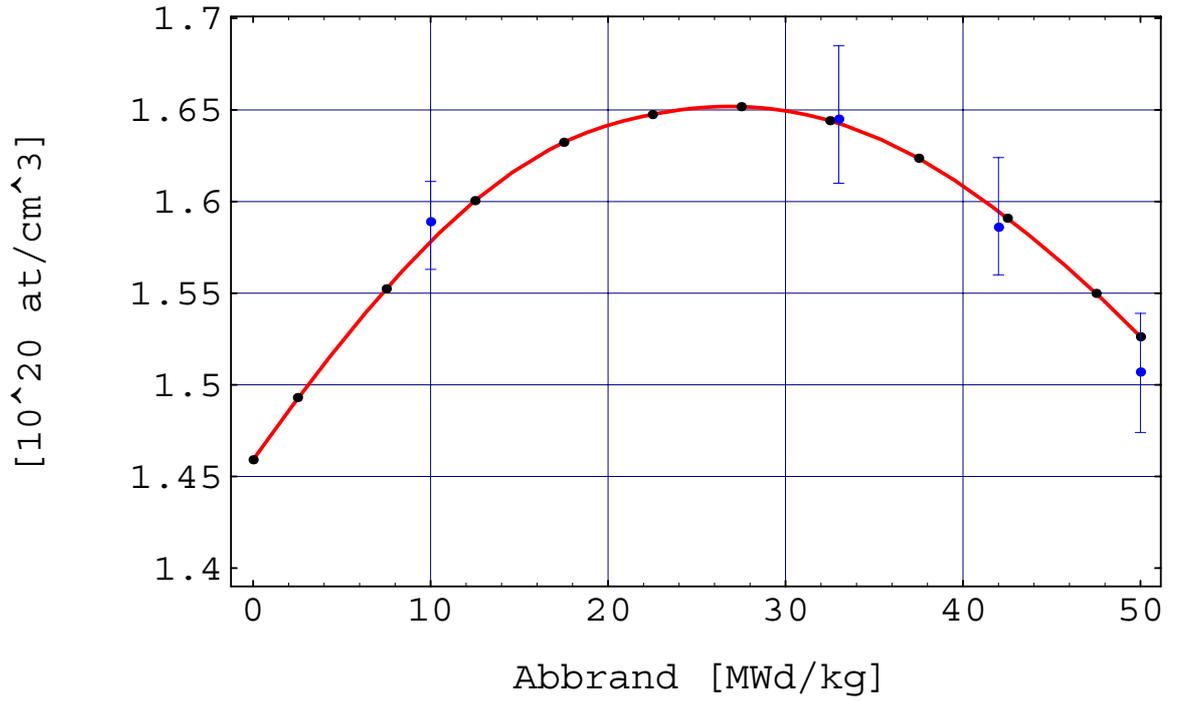
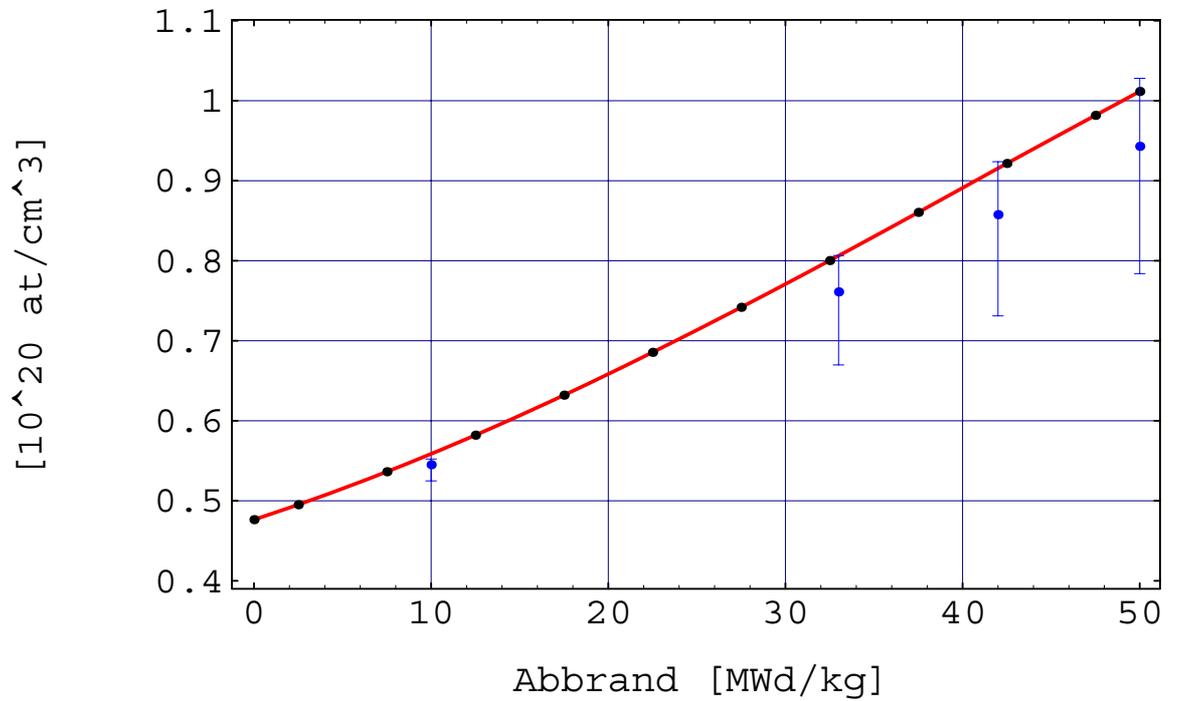


Abbildung 5.18: Nuklidkonzentration von ^{240}Pu , Benchmark B.

Abbildung 5.19: Nuklidkonzentration von ^{241}Pu , Benchmark B.Abbildung 5.20: Nuklidkonzentration von ^{242}Pu , Benchmark B.

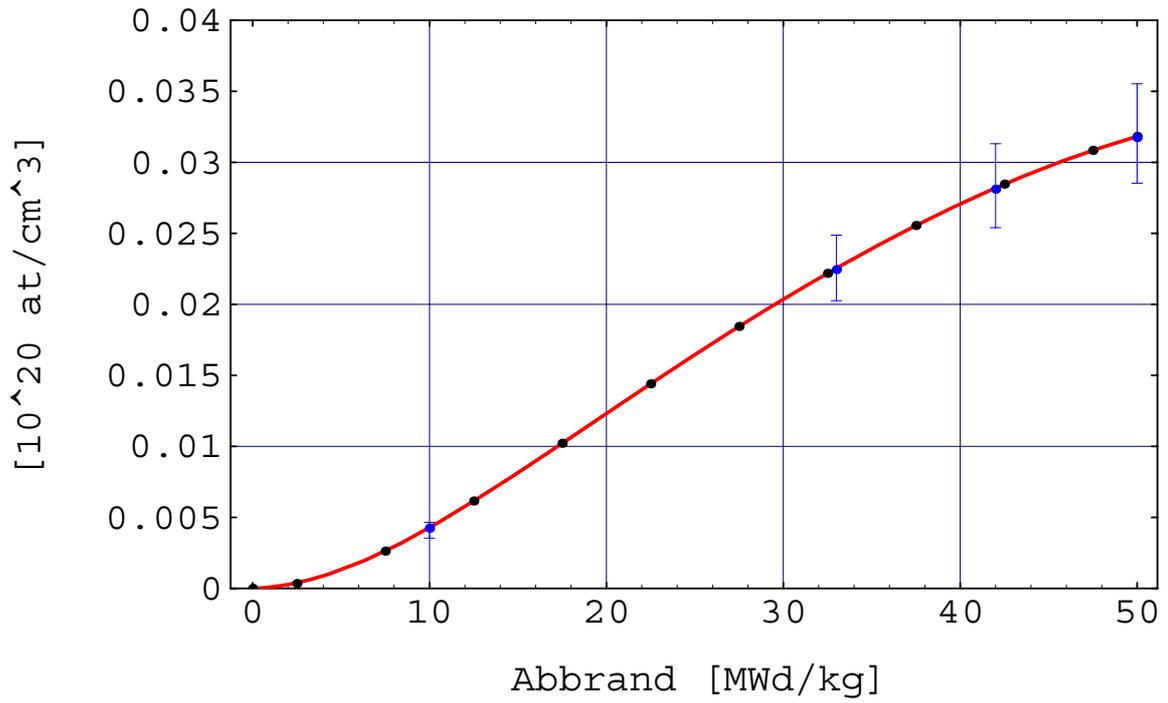


Abbildung 5.21: Nuklidkonzentration von ^{242}Cm , Benchmark B.

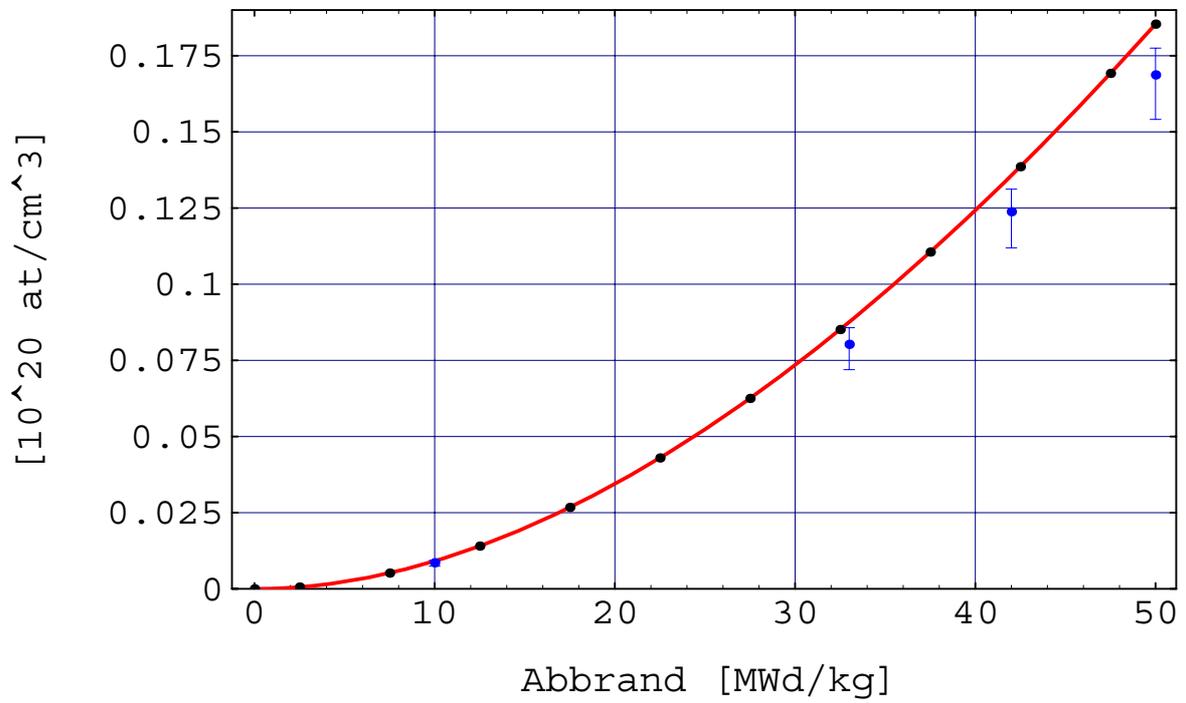


Abbildung 5.22: Nuklidkonzentration von ^{244}Cm , Benchmark B.

5.3 Diskussion

Wie bereits in der Einleitung zu diesem Kapitel festgestellt, steht bei dem hier gewählten Validierungsverfahren – einem Vergleich des entwickelten Programmsystems mit anderen existierenden Computer-Codes zur Bestimmung des nuklearen Abbrandes – naturgemäß kein „richtiges“ Ergebnis im Sinne einer experimentell bestimmten Nuklidzusammensetzung eines abgebrannten Brennstoffs zur Verfügung, mit welchem die Ergebnisse der Abbrandrechnungen verglichen werden könnten. Als Referenzwert für einen Vergleich der hier berechneten Ergebnisse soll daher der Mittelwert der Ergebnisse der Benchmark-Teilnehmer herangezogen werden, wobei die zugehörige Genauigkeit dieses Wertes durch die Abweichungen der einzelnen Benchmark-Teilnehmer von diesem abgeschätzt werden soll.

Aufgrund der Unterschiede in den zugrundeliegenden Rechenverfahren der Benchmark-Teilnehmer (insbesondere bei der Bestimmung der effektiven Wirkungsquerschnitte) kann es zu systematischen Abweichungen der Ergebnisse kommen. Auf derartige Effekte wird bei der folgenden Diskussion im einzelnen eingegangen werden.

5.3.1 Multiplikationsfaktoren k_∞

Generell liegen alle im Rahmen dieser Arbeit bestimmten Werte für k_∞ innerhalb des durch den Maximal- und Minimalwert der Benchmark-Teilnehmer definierten Intervalls. In beiden Benchmarks ist jedoch der Reaktivitätsverlust im Laufe des Abbrandes höher als für die Mittelwerte der Benchmark-Teilnehmer.

Zu besonders großen Abweichungen zwischen den Werten der Benchmark-Teilnehmer kommt es bei Benchmark A. Durch die hohe Plutonium-Konzentration spielt bei diesem Benchmark insbesondere der Effekt der Resonanzselbstabschirmung bei der Bestimmung der effektiven Wirkungsquerschnitte für die Nuklide ^{240}Pu und ^{242}Pu eine wichtige Rolle. Da dieser von zwei Benchmark-Teilnehmern nicht berücksichtigt wird, liegen deren Ergebnisse systematisch ca. 2.5 % unter den Werten der übrigen Benchmark-Teilnehmer (eine Vernachlässigung der Resonanzselbstabschirmung führt zu höheren Einfangsquerschnitten der beiden Plutonium-Isotope, so daß der Wert von k_∞ sinkt). Nimmt man statt der von diesen Teilnehmern berechneten Werte um 2.5 % erhöhte Werte an, um den Effekt der Resonanzselbstabschirmung angemessen zu berücksichtigen, so weichen die Ergebnisse der Benchmark-Teilnehmer voneinander zu Beginn des Abbrandes noch um 0.9 % und am Ende noch um 1.5 % ab. Die Abweichung der im Rahmen dieser Arbeit bestimmten Werte vom Mittelwert der Benchmark-Teilnehmer beträgt dann noch 0.5 % zu Beginn und 0.3 % am Ende des Abbrandes.

Als zu erzielende Genauigkeit für die Bestimmung von k_∞ werden in [NEA 95b] Abweichungen von 0.2 % mit gelegentlichen Ausreißern von bis zu 0.5 % genannt. Diese Genauigkeit wird von den Teilnehmern in beiden Benchmarks nicht erreicht.

In [NEA 95b] wird aufgrund der mangelnden Übereinstimmung der Ergebnisse der Benchmark-Teilnehmer die Situation als unzureichend für den Prozeß der Entwicklung und Lizenzierung von Brennstoffen eingestuft und eine gemeinsame Anstrengung zur

Beseitigung der Unstimmigkeiten, u.a. auch durch experimentelle Validierung gefordert.

Die im Rahmen dieser Arbeit angestrebten prinzipiellen Aussagen über die Entwicklung des Plutonium-Gehalts bei Bestrahlung im Reaktor hängen jedoch erst in zweiter Linie von einer hohen Genauigkeit bei der Bestimmung von k_{∞} ab (da hierdurch lediglich der erreichbare Abbrand festgelegt wird), so daß die erzielte Genauigkeit als für diese Aufgabe hinreichend angesehen werden kann.

5.3.2 Totaler Neutronenfluß

Zwischen den verschiedenen Teilnehmern kommt es bei Benchmark A zu Unterschieden von bis zu 7%, bei Benchmark B von bis zu 4% zwischen den Werten des totalen Neutronenflusses abhängig vom Abbrand. Da für die Abbrandrechnungen die gleiche mittlere Leistungsdichte von 38.3W/g zugrundegelegt werden sollte, welche über Gleichung (3.5) den totalen Neutronenfluß festlegt, sind systematische Abweichungen auf zwei Faktoren zurückzuführen. Einerseits wurden nicht von allen Benchmark-Teilnehmern die vorgegebenen Werte für die nuklidspezifische Energiefreisetzung pro Spaltung verwendet. Zum anderen führen Unterschiede in den berechneten effektiven Spaltquerschnitten zu Abweichungen im totalen Neutronenfluß.

Für die im Rahmen dieser Arbeit bestimmten Werte des totalen Neutronenflusses ergibt sich im Fall von Benchmark A eine Abweichung von weniger als 0.5 % zum Mittelwert der Benchmark-Teilnehmer. Für Benchmark B steigt die Abweichung vom Mittelwert von anfänglich 2.2% auf 4.2% bei 50 MWd/kg. Dies ist auf eine Abweichung der effektiven Spaltquerschnitte von ^{235}U und ^{239}Pu zurückzuführen, welche um ca. 8 % bzw. 6 % unter dem Mittelwert der Benchmark-Teilnehmer liegen, da diese bei konstant vorgegebener Leistungsdichte wesentlich den totalen Neutronenfluß bestimmen.

5.3.3 Effektive Wirkungsquerschnitte

Die im Rahmen dieser Arbeit bestimmten abbrandabhängigen effektiven Wirkungsquerschnitte sowie die Ergebnisse der einzelnen Benchmark-Teilnehmer weisen zum Teil bedeutende Abweichungen voneinander auf. Hierfür sind neben relevanten Unterschieden in den zugrundeliegenden mikroskopischen Wirkungsquerschnitts-Bibliotheken auch systematische Unterschiede im verwendeten Rechenverfahren sowie Abweichungen von den spezifizierten Problemparametern (Temperaturen von Brennstoff und Moderator) verantwortlich. Dabei sind die Abweichungen der im Rahmen dieser Arbeit bestimmten effektiven Querschnitte vom Mittelwert der Benchmark-Teilnehmer vergleichbar mit der Streuung der einzelnen Ergebnisse der Teilnehmer. Eine detaillierte Diskussion der Abweichungen bei einzelnen Nukliden kann an dieser Stelle nicht erfolgen (eine Auflistung der Mittelwerte der Benchmark-Teilnehmer im Vergleich zu den im Rahmen dieser Arbeit bestimmten Werten ist in Anhang C aufgeführt). Bei der anschließenden Diskussion der berechneten Nuklidkonzentrationen wird jedoch noch auf einige wichtige Abweichungen einzugehen sein.

5.3.4 Nuklidkonzentrationen

Für alle Aktinidenkonzentrationen läßt sich festhalten, das am Ende des Abbrandes (50 MWd/kg) die im Rahmen dieser Arbeit bestimmten Werte innerhalb des Intervalls der Ergebnisse der Benchmark-Teilnehmer liegen, d. h. das hier entwickelte Programmsystem mit anderen existierenden Programmen zur Bestimmung des nuklearen Abbrandes vergleichbar ist. Die einzigen Ausnahmen stellen ^{243}Cm im Fall von Benchmark A (ohne Abb.) und ^{244}Cm im Fall von Benchmark B (Abb. 5.22) dar.

Bevor daher im einzelnen auf die Genauigkeit der Ergebnisse der Plutonium-Isotope eingegangen wird, welche aufgrund der Fragestellung dieser Arbeit von besonderem Interesse sind, sollen nun zunächst die Abweichungen bei der Berechnung der Curiumkonzentrationen untersucht werden.

Dies ist insbesondere auch dadurch gerechtfertigt, daß die Curiumisotope, trotz ihrer im Vergleich zu anderen Nukliden relativ geringen Konzentration durch ihren α -Zerfall erheblich zur Wärmeentwicklung des abgebrannten Brennstoffs beitragen. Weiterhin dominieren die Isotope ^{242}Cm ($T_{1/2} = 163$ Tage) und ^{244}Cm ($T_{1/2} = 18$ Jahre) in den ersten Jahrzehnten durch Spontanspaltung den Neutronenhintergrund abgebrannter Brennelemente [Wan 82].

^{243}Cm : Im Falle des ^{243}Cm ist die Abweichung der Nuklidkonzentration vom Mittelwert der Benchmark-Teilnehmer auf eine Abweichung in den effektiven Wirkungsquerschnitten zurückzuführen. Diese beträgt unabhängig vom Abbrand ca. 40 % und beruht vermutlich auf Unterschieden in den zugrundeliegenden Wirkungsquerschnitts-Bibliotheken. Für Benchmark B liegt die Abweichung der effektiven Wirkungsquerschnitte in derselben Größenordnung. Sowohl wegen der geringeren anfänglichen Konzentration des Mutternuklids ^{241}Pu als auch des geringeren totalen Plutonium-Inventars kommt es jedoch zu einem deutlich reduzierten Aufbau an ^{243}Cm . Damit spielt auch der Neutroneneinfang im ^{243}Cm eine geringere Rolle für die sich am Ende des Abbrandes ergebende Konzentration, so daß die für Benchmark B bestimmte ^{243}Cm -Konzentration mit 10 % Abweichung vom Mittelwert noch im Intervall der Benchmark-Teilnehmer liegt.

^{244}Cm : Der Aufbau des ^{244}Cm findet vorwiegend über die Reaktionskette



statt (siehe auch Abb. 4.6). Zu Abweichungen in der ^{244}Cm -Konzentration tragen daher hauptsächlich Ungenauigkeiten der (n,γ) -Querschnitte für ^{242}Pu und ^{243}Am bei. Hierbei weichen die im Rahmen dieser Arbeit bestimmten effektiven Wirkungsquerschnitte sowohl für ^{242}Pu als auch ^{243}Am im Laufe des Abbrandes um bis zu 5 % vom Mittelwert der Benchmark-Teilnehmer ab, wobei der ^{242}Pu -Querschnitt über, der ^{243}Am -Querschnitt unter dem Mittelwert liegt. Dies führt im Ergebnis für Benchmark B zu einer höheren ^{244}Cm -Konzentration.

Das im Rahmen dieser Arbeit entwickelte Programmsystem soll in einer weiteren Arbeit [Gla 98] dazu verwendet werden, das Potential eines speziell zur Eliminierung

von Plutonium eingesetzten Reaktors abzuschätzen. Um hierfür eine Aussage über die erreichte Genauigkeit bei der Bestimmung der Plutonium-Konzentrationen zu ermöglichen, sind in Tab. 5.8 die prozentualen Abweichungen der verschiedenen im Rahmen dieser Arbeit berechneten Plutonium-Konzentrationen vom Mittelwert der Benchmark-Teilnehmer am Ende des Abbrandes (50 MWd/kg) angegeben. Unter Berücksichtigung

	^{238}Pu	^{239}Pu	^{240}Pu	^{241}Pu	^{242}Pu
Benchmark A	+2.2 %	+1.3 %	-1.7 %	+0.6 %	+7.0 %
Benchmark B	+4.9 %	+2.2 %	+1.4 %	+1.3 %	+7.3 %

Tabelle 5.8: Prozentuale Abweichung der berechneten Plutonium-Konzentrationen von den Mittelwerten der Benchmark-Teilnehmer am Ende des Abbrandes (50 MWd/kg).

der systematischen Ungenauigkeiten bei der Bestimmung der effektiven Wirkungsquerschnitte (siehe Kap. 3.3) und der Näherungen bei der iterativen Lösung der Abbrandgleichungen (Kap. 4.2) muß eine Abweichung der berechneten Nuklidkonzentrationen von tatsächlichen Werten in der Größenordnung von 2–3 % toleriert werden. Lediglich für ^{242}Pu (in beiden Benchmarks) sowie ^{238}Pu bei Benchmark B tritt eine größere Abweichung (>3%) zum Mittelwert der Benchmark-Teilnehmer auf, welcher in Ermangelung eines exakten Wertes als Referenz dienen muß. In allen übrigen Fällen kann die erzielte Genauigkeit somit als zufriedenstellend angesehen werden. Die auftretenden Abweichungen sollen im folgenden diskutiert werden.

^{238}Pu : Bei einem Vergleich der einzelnen Ergebnisse der Benchmark-Teilnehmer läßt sich feststellen, daß für einen Teilnehmer (British Nuclear Fuels, BNFL) im Falle von Benchmark B bzw. zwei Teilnehmer (BNFL und Belgonucléaire, BEN) für Benchmark A eine außergewöhnlich hohe Abweichung (> 30 % für Benchmark B bzw. > 10 % für Benchmark A) auftritt. Dies ist auf eine Vernachlässigung der Resonanzselbstabschirmung bei der Bestimmung der effektiven Wirkungsquerschnitte von diesen Teilnehmern zurückzuführen. Werden deren Werte daher bei der Bildung des Mittelwerts der Benchmark-Teilnehmer nicht berücksichtigt, so reduzieren sich die Abweichungen der im Rahmen dieser Arbeit bestimmten Werte zu den Benchmark-Mittelwerten auf < 0.1 % für Benchmark A und 1.1 % für Benchmark B, d. h. es liegt ebenfalls eine sehr gute Übereinstimmung vor.

^{242}Pu : Im Falle hoher Konzentrationen von ^{242}Pu (Benchmark A und hoher Abbrand bei Benchmark B) werden dessen effektive Wirkungsquerschnitte wesentlich durch Resonanzselbstabschirmung der dominanten Resonanz bei 2.65 eV beeinflusst. Daher lassen sich die von den verschiedenen Benchmark-Teilnehmern bestimmten effektiven Querschnitte in zwei Gruppen mit und ohne Berücksichtigung der Selbstabschirmung einteilen. Die Werte der zweiten Gruppe (BNFL und BEN) liegen dabei etwa 50 % über denjenigen der ersten Gruppe. Dies führt entsprechend bei einem Ab-

brand von 50 MWd/kg zu einer Abweichung der von diesen Teilnehmern berechneten ^{242}Pu -Konzentration von über 20 % zum Mittelwert der übrigen Teilnehmer.

Die im Rahmen dieser Arbeit bestimmten effektiven Wirkungsquerschnitte des ^{242}Pu liegen ca. 20 % unter dem Mittelwert aller Benchmark-Teilnehmer. Werden zur Mittelwertbildung jedoch nur noch die Werte der Gruppe mit Berücksichtigung der Resonanzselbstabschirmung herangezogen, so reduziert sich diese Abweichung auf etwa 9 %. Diese nach wie vor hohe Abweichung läßt sich dadurch erklären, daß zur Bestimmung des effektiven Wirkungsquerschnitts in MCNP eine Wirkungsquerschnitts-Bibliothek Verwendung findet, welche für eine Temperatur von 300 K erstellt wurde. Aufgrund des Doppler-Effekts führt eine höhere Temperatur zu einer Abnahme des Flußeinbruchs an der Stelle der Resonanz und somit zu einem höheren effektiven Wirkungsquerschnitt (siehe auch die Diskussion in Kap. 3.3.1). So werden in [NEA 95b] die berechneten effektiven Wirkungsquerschnitte für Neutronenabsorption des ^{242}Pu bei 300 K und 900 K zu 6.75 barn bzw. 7.21 barn für Benchmark A zu Beginn des Abbrandes angegeben (dies entspricht einem Unterschied von etwa 7 %, der im Rahmen dieser Arbeit bestimmte Wert beträgt 6.63 barn). Die hohe Abweichung bei der Bestimmung der ^{242}Pu -Konzentration im Rahmen dieser Arbeit ist also auf einen systematischen Fehler aufgrund der verwendeten Wirkungsquerschnitts-Bibliothek zurückzuführen.

5.3.5 Zusammenfassung

Somit läßt sich schließlich festhalten, daß sich — im Rahmen der zu erwartenden systematischen Abweichungen aufgrund der vorgegebenen Wirkungsquerschnitts-Bibliotheken — die Ergebnisse der Zellabbrandrechnungen in zufriedenstellender Übereinstimmung mit denjenigen anderer existierender Zellabbrandprogramme befinden. Daher kann das aus MCNP und *Mathematica* gebildete Programmsystem als validiert angesehen werden.

Für einzelne Nuklide muß bei der Bestimmung der effektiven Wirkungsquerschnitte mit MCNP ein relativ hoher systematischer Fehler in Kauf genommen werden, welcher auf die Tatsache zurückzuführen ist, daß nur für bestimmte vorgegebene Temperaturen Wirkungsquerschnitts-Bibliotheken vorliegen, wobei diese i. A. nicht mit den Temperaturen in einem Reaktor übereinstimmen. Sollte dieser systematische Fehler vermieden werden, so müßte entweder auf existierende kommerzielle Wirkungsquerschnitts-Bibliotheken zurückgegriffen werden, oder es müßten selbstständig Bibliotheken im MCNP-Format erzeugt werden. Der hierfür erforderliche Finanz- bzw. Arbeitsaufwand kann jedoch im Rahmen dieser Arbeit nicht erbracht werden.

Kapitel 6

Mischoxidbrennstoff mit Waffenplutonium

*I am in blood
Stepped in so far that, should I wade no more,
Returning were as tedious as go o'er.
Strange things I have in head that will to hand,
Which must be acted ere they may be scanned.*

William Shakespeare, Macbeth.

Eine der diskutierten Entsorgungsoptionen für waffengrädiges Plutonium besteht in der Verwendung des Plutoniums in MOX-Brennstoff (siehe Kap. 2). In diesem Kapitel soll daher MOX-Brennstoff auf WPU-Basis untersucht und dessen wesentliche Eigenschaften im Vergleich zu Uran-Brennstoff und den beiden im letzten Kapitel eingeführten MOX-Brennstofftypen diskutiert werden. Dabei soll die Diskussion nicht auf die Änderung der Konzentration einzelner Nuklide, sondern auf die Entwicklung relevanter Parameter wie derjenigen des Multiplikationsfaktors k_{∞} , des Plutonium-Isotopenvektors oder der totalen Umsatzrate von Transuranen gerichtet sein. In [G1a 98] wird ein Szenario zur Plutoniumeliminierung untersucht, welches auf dem Einsatz von WPU in inerten Brennstoffen basiert. Die wesentlichen in diesem Kapitel zusammengestellten Ergebnisse können dann zu einem Vergleich herangezogen werden.

6.1 Parameter einer WPu-MOX Strategie

Als Basis für die Berechnungen dieses Kapitels dient eine MOX Strategie unter Verwendung von waffengrädigem Plutonium [DoE 96].¹ Untersucht wird hier ein LWR-Brennstoff, welcher zu Beginn des Abbrandes (Begin Of Life, BOL) 4.2 wt% Plutonium in abgereichertem Uran enthält (siehe Tab. 6.1), was einem Anteil an thermisch spaltbarem Plutonium von 4.0 wt% entspricht. Alle weiteren Parameter (Dichte des

	WPu-MOX	LEU
^{234}U	0.00119	
^{235}U	0.25000	4.00
^{238}U	99.74881	96.00
^{238}Pu	0.01	
^{239}Pu	93.82	
^{240}Pu	5.80	
^{241}Pu	0.13	
^{242}Pu	0.02	
$^{241}\text{Am}^2$	0.22	

Tabelle 6.1: Isotopenzusammensetzung des Brennstoffs für WPu-MOX und LEU in wt% (siehe auch Tab. 2.1).

Brennstoffs, Geometrie der Brennstoff-Einheitszelle, Temperaturen von Moderator und Brennstoff sowie Leistungsdichte) entsprechen den in Kap. 5 definierten Werten für MOX-A und B. Als Zielabbrand (End Of Life, EOL) werden für eine Strategie mit Nutzung existierender LWR's 45 MWd/kg angestrebt.³

Zusätzlich zu MOX-Brennstoff auf WPu-Basis wird ein Uran-Brennstoff mit einer 4.0 wt% ^{235}U Anreicherung (LEU) untersucht, um einen direkten Vergleich verschiedener Brennstoffe bei gleicher Anfangsanreicherung thermisch spaltbarer Materialien und gleichem Zielabbrand zu ermöglichen.

¹Für den Umsatz von WPu in Reaktoren mit dem Ziel, dieses in den *Spent Fuel Standard* zu überführen, können verschiedenste Reaktortypen, Brennstoffe und Plutonium-Konzentrationen sowie ein unterschiedlicher Zielabbrand gewählt werden. Als Referenz soll an dieser Stelle eine Strategie zugrundegelegt werden, welche sich möglichst direkt mit den im letzten Kapitel untersuchten MOX-Brennstoffen vergleichen läßt. Diese stellt zugleich eine der wahrscheinlichsten Varianten für die Umsetzung von WPu in MOX dar.

²Der Gehalt von ^{241}Am im Plutonium kommt durch den β^- -Zerfall des ^{241}Pu zustande und ist daher vom Alter des WPu's abhängig. Die Angaben gelten für ein Alter von ca. 20 Jahren [NAS 95]. Im Falle einer zu hohen Americium-Konzentration im Waffenplutonium, müßte dieses vor der Verarbeitung des Plutoniums zu Brennstoff abgetrennt werden.

³[DoE 96], S. 2-12, Tab. 2-2.

6.2 Ergebnisse

6.2.1 Multiplikationsfaktor k_{∞}

Die Entwicklung des Multiplikationsfaktor k_{∞} spielt im Hinblick auf den Umsatz des Plutoniums eine Rolle, da zum einen der Reaktivitätsverlust $\Delta\rho$ makroskopische Betriebsparameter des verwendeten Reaktors beeinflusst, zum anderen der maximal erreichbare Abbrand durch den Grad der Unterkritikalität des Brennstoffs mitbestimmt wird.^{4,5}

In Abb. 6.1 ist der Verlauf des Multiplikationsfaktors k_{∞} für die verschiedenen untersuchten Brennstoffe in Abhängigkeit vom Abbrand dargestellt. Sowohl für WPU-MOX als auch für Uran-Brennstoff ist der Reaktivitätsverlust im Laufe des Abbrandes höher als für MOX-A und B. Eine Ursache für den ausgeprägteren Reaktivitäts-

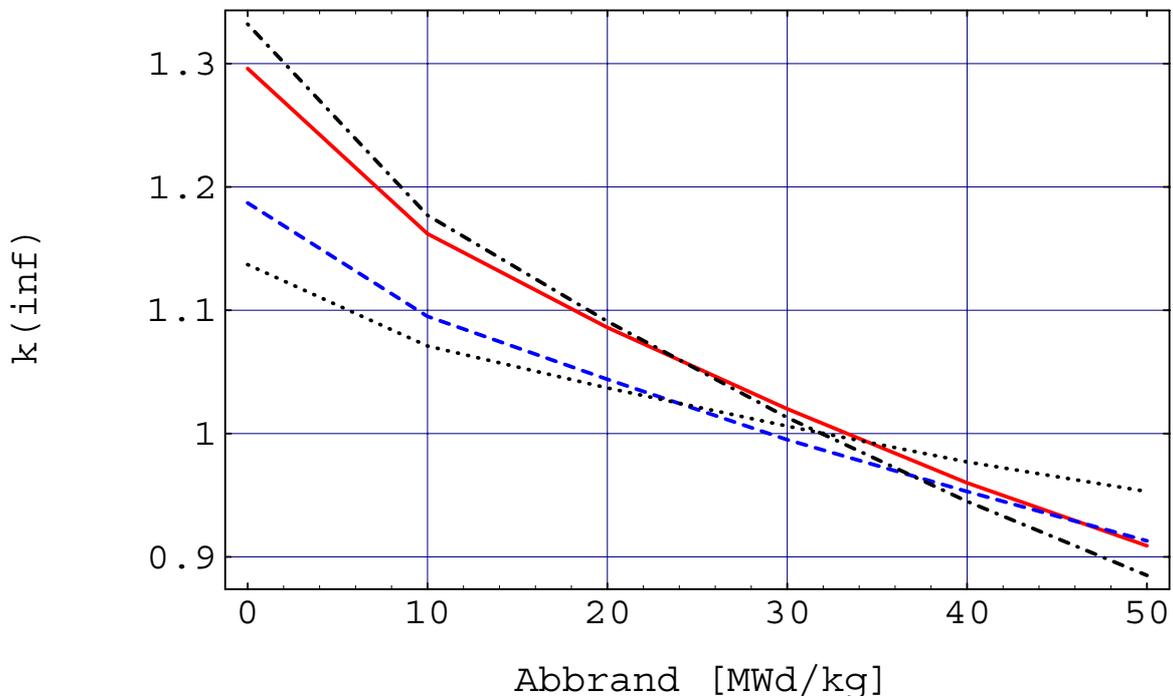


Abbildung 6.1: k_{∞} in Abhängigkeit vom Abbrand für WPU-MOX (—), im Vergleich der Verlauf für MOX-A (···), MOX-B (- -) und LEU (- · -).

verlust von LEU und WPU-MOX ist der vergleichsweise schnelle Aufbau von ^{240}Pu , welches mit seinem hohen (n, γ) -Wirkungsquerschnitt stark zur Neutronenabsorption

⁴Ein hoher Reaktivitätsverlust des Brennstoffs bedingt eine hohe anfängliche Überreaktivität des Reaktor-Kerns, welche durch eine entsprechend hohe Konzentration an Borsäure im Kühlwasser ausgeglichen werden muß.

⁵Eine Abschätzung des Zusammenhangs zwischen dem erreichbaren Abbrand und der Reaktivität des Brennstoffs wird in [G1a 98], Kapitel 7.1.1, mittels eines einfachen Modells angegeben.

beiträgt. In den beiden MOX-Brennstoffen mit RPu ist hingegen bereits annähernd eine Gleichgewichtskonzentration des ^{240}Pu erreicht, es wird daher in etwa gleichem Maße aus ^{240}Pu das thermisch spaltbare Isotop ^{241}Pu aufgebaut. Der im Vergleich zu WPu-MOX-Brennstoff bei LEU noch stärkere Abfall der Reaktivität ist neben der Produktion des ^{240}Pu auch auf die Tatsache zurückzuführen, daß es zu einer deutlichen Härtung des Neutronenspektrums aufgrund des Aufbaus der Plutoniumisotope mit ihren hohen thermischen Wirkungsquerschnitten kommt. Dadurch sinkt der effektive Wirkungsquerschnitt für Spaltung in ^{235}U bei etwa konstant bleibendem effektiven Wirkungsquerschnitt für Neutroneneinfang in ^{238}U , wodurch der Multiplikationsfaktor k_∞ abnimmt.

Insgesamt ist der Verlauf des Multiplikationsfaktor k_∞ für WPu-MOX vergleichbar zu Uran-Brennstoff, so daß sich hieraus keine relevanten Unterschiede für einen Reaktoreinsatz ergeben sollten.

6.2.2 Isotopenvektor

Die Frage nach der Isotopenzusammensetzung des Plutoniums für einen gegebenen Abbrand spielt neben den Auswirkungen auf die Reaktivität und Radiotoxizität des Brennstoffs eine Rolle für die Waffenfähigkeit des Plutoniums im Falle einer Wiedergewinnung aus dem abgebrannten Brennstoff. Neben Unterschieden in der für eine kritische Masse benötigten Plutonium-Menge aufgrund der geänderten Isotopenzusammensetzung ist hierbei vor allem die Frage nach der Wärmeentwicklung und nach dem erhöhten Neutronenhintergrund, verursacht durch den größeren Anteil an ^{238}Pu sowie ^{240}Pu , von besonderer Bedeutung (siehe auch Kap. 2.2.2 und [G1a 98], Anhang A).

In Tab. 6.2 sind die Isotopenvektoren für die untersuchten Brennstoffe bei 45 MWd/kg Abbrand zusammengestellt. Für WPu-MOX ist der Anteil des ^{238}Pu deutlich geringer als für die übrigen Brennstoffe. Dies ist auf die Tatsache zurückzuführen, daß ein wesentlicher Produktionspfad des ^{238}Pu aus ^{235}U durch sukzessiven Neutroneneinfang und β^- -Zerfall hier praktisch nicht relevant ist (da abgereichertes Uran verwendet wird) und der Anfangsgehalt des ^{238}Pu äußerst gering ist. Die von ^{238}Pu dominierte Wärmeentwicklung ist daher für Plutonium aus WPu-MOX mindestens um einen Faktor drei geringer als für Plutonium aus anderen Brennstoffen. Demgegenüber ist der ^{240}Pu -Anteil etwa gleich dem üblichen MOX-B Anteil und liegt ca. 6 % über dem von RPu. Der geringere Neutronenhintergrund von Plutonium aus abgebranntem WPu-MOX Brennstoff im Vergleich zu RPu aufgrund des niedrigeren ^{238}Pu -Anteils wird daher durch den höheren ^{240}Pu Gehalt kompensiert (die Rate an Neutronen aus Spontanspaltungen ist für ^{240}Pu um etwa einen Faktor drei niedriger als diejenige des ^{238}Pu). Stellt also die Wärmeentwicklung des Plutoniums kein wesentliches Ausschlußkriterium für den Einsatz in einer Kernwaffe dar, so ist der Isotopenvektor des Plutoniums bei Erreichen des Zielabbrandes im Falle von WPu-MOX in bezug auf den Neutronenhintergrund und damit die Problematik der Frühzündung etwa mit üblichem RPu vergleichbar. Damit läßt sich festhalten, daß nach dem Einsatz von WPu in MOX-Brennstoff dieses etwa dem *Spent Fuel Standard* genügt, jedoch in keinem Fall

Nuklid	LEU		MOX-A		MOX-B		WPu-MOX	
	BOL	EOL	BOL	EOL	BOL	EOL	BOL	EOL
^{238}Pu	—	2.35	4.0	4.06	1.8	2.38	0.01	0.72
^{239}Pu	—	52.88	36.0	29.45	59.0	38.24	93.82	46.38
^{240}Pu	—	23.45	28.0	27.65	23.0	29.48	5.80	29.22
^{241}Pu	—	14.63	12.0	14.88	12.2	18.62	0.13	17.54
^{242}Pu	—	6.69	20.0	23.96	4.0	11.28	0.02	6.14
^{241}Am	—	—	—	—	—	—	0.22	—

Tabelle 6.2: Isotopenvektor des Plutoniums bei 0 MWd/kg (BOL) und 45 MWd/kg (EOL) Abbrand für die verschiedenen Brennstoffe (Angaben für ^{241}Am nur für BOL). Alle Angaben in at%.

schlechter als RPu für einen erneuten Einsatz in Kernwaffen geeignet ist.

6.2.3 Umsatzraten

Als Motivation für die Umsetzung von WPu in MOX dient das Erreichen des *Spent-Fuel-Standards*, wobei durch die kommerzielle Nutzung des Plutoniums als Brennstoff eine zumindest teilweise Kompensation der aufzuwendenden Kosten für die Entsorgung angestrebt wird. Hierbei ist die Frage, ob eine Netto-Eliminierung von Plutonium durch den Einsatz in Reaktoren erreicht wird, von untergeordneter Bedeutung.

Für einen Vergleich mit einer auf die Eliminierung von Plutonium abzielenden Reaktorstrategie ist jedoch insbesondere die tatsächlich eliminierte Plutoniummenge sowie allgemeiner die Menge der gebildeten (bzw. abgebauten) Transurane von Interesse (siehe Abb. 6.2). Darüber hinaus ist für eine Beurteilung der Proliferationsgefahr, welche vom abgebrannten Brennstoff ausgeht auch die Frage nach der noch vorliegenden Konzentration von Plutonium im abgebrannten Brennstoff von Bedeutung.

Für eine ausführlichere Diskussion sind in Tab. 6.3 die Anteile der verschiedenen Schwermetalle am Brennstoff bezogen auf die Menge des Schwermetalls im frischen Brennstoff, bei BOL und EOL für die verschiedenen Brennstofftypen angegeben. Hieraus ergibt sich unmittelbar die Menge ΔN des umgesetzten Brennstoffs in absoluten und relativen Zahlen.

Für ein Reaktorsystem mit vorgegebener thermischer Leistung P bestimmt sich daraus die Umsatzrate R zu:

$$R[\text{kg/y}] = \frac{365}{1000} \frac{P[\text{MW}]}{A[\text{MWd/kg}]} \Delta N[\text{g/kg}].$$

Die insgesamt durch Spaltung umgesetzte Menge an Schwermetall ergibt sich unmittelbar aus der Leistung des Reaktors und der mittleren freigesetzten Spaltenergie und beträgt etwa 370 kg/y bei 1000 MW thermischer Leistung.

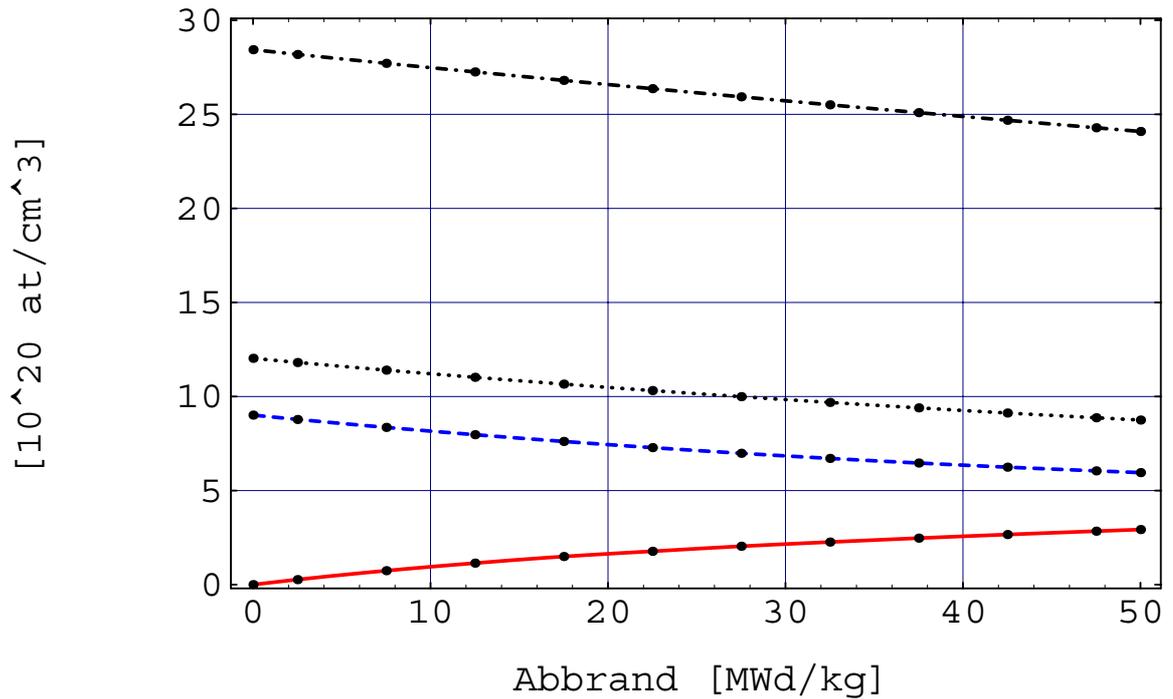


Abbildung 6.2: Transurankonzentration in Abhängigkeit vom Abbrand für WPu-MOX (- -), im Vergleich der Verlauf für MOX-A (- · -), MOX-B (···) und 4 wt% ^{235}U (—).

Für Uran-Brennstoff beträgt die Konzentration des Plutoniums im Schwermetall am Ende des Abbrandes etwa 1 wt%, der Anteil anderer Elemente am Schwermetall beträgt weniger als 0.1 wt%.⁶ Für Plutonium ergibt sich eine Netto-Produktion von 94.09 kg/y (bezogen auf eine thermische Leistung von 1000 MW), dies entspricht etwa einem Viertel der von einem solchen System gleichzeitig gespaltenen Schwermetall-Menge.

Bei MOX-A ist die anfängliche Plutonium-Konzentration am höchsten (die dreifache Konzentration im Vergleich zu WPu-MOX). Dies ist auf den schlechten Plutonium-Vektor und die daraus folgende hohe Neutronenabsorption in thermisch nicht spaltbarem Plutonium zurückzuführen, die dazu führt, daß für eine ausreichend hohen Anfangsreaktivität des Brennstoffs die Anfangskonzentration des Plutoniums erhöht werden muß. Entsprechend ist auch bei Erreichen des Zielabbrandes die Plutoniumkonzentration noch sehr hoch (> 10 wt%) und es kommt zudem zu einer besonders großen Produktion von Americium- und Curiumisotopen. Im Vergleich zu Uran-Brennstoff ist die Konzentration sowohl des Americiums als auch des Curiums im abgebrannten Brennstoff um einen Faktor 20 höher, im Vergleich zu MOX-B immer noch um einen

⁶Bei einem Gesamtgewicht eines typischen LWR Brennelementes von ca. 500 kg ergibt sich somit ein Plutoniumgehalt von etwa 5 kg pro Brennelement.

LEU					
	N_{BOL} [g/kg]	N_{EOL} [g/kg]	ΔN [g/kg]	ΔN [%]	R [kg/y]
U	1000.00	941.00	-59.00	-5.90	-478.56
Np		0.73	+0.73		+5.91
Pu		11.60	+11.60		+94.09
Am		0.24	+0.24		+1.98
Cm		0.11	+0.11		+0.868
MOX-A					
	N_{BOL} [g/kg]	N_{EOL} [g/kg]	ΔN [g/kg]	ΔN [%]	R [kg/y]
U	875.00	846.30	-28.70	-3.28	-232.79
Np		0.29	+0.29		+2.32
Pu	125.00	101.20	-23.77	-19.02	-192.80
Am		4.61	+4.61		+37.39
Cm		1.92	+1.93		+15.57
MOX-B					
	N_{BOL} [g/kg]	N_{EOL} [g/kg]	ΔN [g/kg]	ΔN [%]	R [kg/y]
U	943.80	912.00	-31.80	-3.37	-257.93
Np		0.25	+0.25		+2.06
Pu	56.20	39.50	-16.70	-29.73	-135.46
Am		1.66	+1.66		+13.46
Cm		0.96	+0.96		+7.81
WPu-MOX					
	N_{BOL} [g/kg]	N_{EOL} [g/kg]	ΔN [g/kg]	ΔN [%]	R [kg/y]
U	958.00	925.40	-32.60	-3.40	-264.75
Np		0.25	+0.25		+2.05
Pu	41.90	27.80	-14.10	-33.69	-114.53
Am	0.09	0.65	+0.56		+4.52
Cm		0.28	+0.28		+2.23

Tabelle 6.3: Anteil der verschiedenen Elemente am Brennstoff zu Beginn und am Ende des Abbrandes und die sich ergebende Differenz (total und relativ), sowie die sich daraus ergebende Umsatzrate R für einen Reaktor mit einer thermischen Leistung von 1000 MW.

Faktor 2–3.

Im Fall der Rezyklierung von RPu (MOX-B) kommt es zu einem Abbau des Plutoniums um etwa 30 %. Hierbei muß jedoch berücksichtigt werden, daß dieser Zahl eine vollständige Beladung eines Reaktors mit MOX-Brennstoff zugrundeliegt. Für gängige

Reaktoren ist jedoch lediglich eine teilweise Beladung mit MOX üblich.⁷ Geht man von einer 33 %igen MOX-Beladung aus, so ergibt sich eine Zunahme des Plutonium-Gesamtinventars um ca. 10 %. Die im abgebrannten Brennstoff enthaltene Plutoniumkonzentration ist um etwa einen Faktor 3.4 höher als in Uran-Brennstoff. Der Plutonium-Gehalt eines einzelnen Brennelementes beläuft sich somit auf etwa 20 kg, dies entspricht 2.5 signifikanten Mengen nach Definition der IAEA. Wie im Falle von MOX-A kommt es zu einer im Vergleich zu Uran-Brennstoff deutlich stärkeren Produktion an schwereren Elementen, die Americium-Konzentration ist um einen Faktor sieben, die Curium-Konzentration um einen Faktor neun erhöht.⁸

Eine vergleichbare Situation wie für MOX-B ergibt sich für WPu-MOX. Aufgrund der geringeren anfänglichen Plutonium-Konzentration (bei gleichem Anteil thermisch spaltbaren Plutoniums) ist auch die Konzentration bei EOL entsprechend reduziert (es verbleiben etwa 14 kg, dies entspricht 1.75 signifikanten Mengen pro Brennelement). Sowohl der absolute wie der relative Umsatz sind jedoch vergleichbar (etwa ein Drittel des ursprünglich enthaltenen Plutoniums). Der Unterschied in der absoluten Umsatzrate von ca. 20% resultiert zum einen aus einer geringeren Umwandlung von Plutonium in schwerere Elemente (aufgrund des hohen ^{239}Pu -Anteils im WPu), zum anderen aufgrund des niedrigeren totalen Neutronenflusses im Falle von WPu-MOX, was zu einem geringeren Neutroneneinfang in ^{238}U führt.

6.2.4 Zusammenfassung

Ein Vergleich des abgebrannten Brennstoffs von WPu-MOX mit abgebranntem LEU-Brennstoff verdeutlicht, daß der Isotopenvektor des WPu's etwa in denjenigen von RPu überführt wird. Zugleich verbleibt jedoch eine deutlich höhere Konzentration von Plutonium sowie anderen Transuranen im abgebrannten Brennstoff des WPu-MOX als im Falle von LEU.

Der absolute Plutoniumumsatz (bezogen auf eine 100 % MOX-Strategie) beträgt weniger als ein Drittel der physikalisch vorgegebenen Obergrenze von 370 kg/y bei 1000 MW thermischer Leistung, auch der relative Umsatz bezogen auf die anfänglich im Brennstoff enthaltene Plutonium-Konzentration beläuft sich nur auf etwa ein Drittel.

Im Hinblick auf eine langfristige Minimierung des Welt-Plutoniuminventares kann daher ein Einsatz von Plutonium in der Form von Mischoxid-Brennstoff nur eine untergeordnete Rolle spielen.⁹

⁷Dies ist auf die durch einen höheren Plutoniumgehalt im Reaktor-Kern verursachten Änderungen der neutronenphysikalischen Eigenschaften zurückzuführen. Durch den geringeren Anteil verzögerter Neutronen beeinflusst der Plutoniumanteil die Steuerbarkeit des Reaktors und aufgrund des härteren Neutronenspektrums ist die Wirksamkeit der zur Steuerung eingesetzten Neutronengifte reduziert.

⁸Bei einer ausführlicheren Diskussion im Hinblick auf die Radiotoxizität des abgebrannten Brennstoffs würde auch der Gehalt des ^{237}Np eine wichtige Rolle spielen. Dieser ist in Uran-Brennstoff aufgrund des Aufbaus aus ^{235}U um einen Faktor vier höher als in MOX-Brennstoff. Berücksichtigt man jedoch die Konzentration des ^{241}Am , welches mit einer Halbwertszeit von 432.6a in ^{237}Np zerfällt, so ergibt sich kein wesentlicher Unterschied zwischen Uran- und MOX-Brennstoff.

⁹Hierbei ist auch davon auszugehen, daß eine kontinuierliche Wiederaufarbeitung des Brennstoffs

mit dem Ziel einer Rückführung des Plutoniums in den Brennstoffkreislauf weder aufgrund von Überlegungen zur Proliferationsgefahr noch aufgrund des sich kontinuierlich verschlechternden Plutoniumvektors in Frage kommen könnte.

Kapitel 7

Zusammenfassung und Ausblick

So eine Arbeit wird eigentlich nie fertig, man muß sie für fertig erklären, wenn man nach Zeit und Umständen das mögliche getan hat.

J. W. Goethe, Italienische Reise.

Um die Unumkehrbarkeit von Abrüstungserfolgen im nuklearen Bereich sicherzustellen, aber auch um eine dauerhaft kernwaffenfreie Welt zu ermöglichen, ist es von besonderem Interesse, die Verfügbarkeit kernwaffenfähiger Materialien weitgehendst einzuschränken. Hierzu müssen die bereits existierenden Bestände von waffenfähigem Uran und Plutonium entweder in eine nicht-waffentaugliche Form überführt oder das Material möglichst vollständig eliminiert werden. Während dies für hochangereichertes Uran durch Mischung mit ^{238}U in verhältnismäßig einfacher Weise erreicht werden kann, existiert für Plutonium keine derartige Möglichkeit.

Um Plutonium dauerhaft dem menschlichen Zugriff zu entziehen, spielen aus heutiger Sicht lediglich reaktorbasierte Eliminierungsszenarien eine Rolle. Wenn daher eine Entscheidung getroffen werden soll, welche Strategie für die langfristige Entsorgung überschüssigen Waffenplutoniums gewählt wird, muß das Potential von geeigneten Eliminierungsszenarien abgeschätzt werden. Nur so kann ein angemessener Vergleich der verschiedensten Optionen erfolgen. So sollte insbesondere der durch die momentane zivile Kernenergienutzung implizierte *Spent Fuel Standard* nicht ohne weiteres als langfristig endgültiger Standard für die Entsorgung von waffenfähigem Material übernommen werden, da dann aufgrund der prinzipiellen Rückholbarkeit des Plutoniums ein dauerhaftes Proliferationsrisiko bestehen bleiben würde.

Die Randbedingungen für ein konkretes Szenario zur Eliminierung von Plutonium diskutiert eine weitere Diplomarbeit [G1a 98]. Dort werden insbesondere inerte Brennstoffe für den Einsatz in existierenden Leichtwasserreaktoren untersucht. Hierzu wurde im Rahmen dieser Arbeit ein Programmsystem für die Bestimmung der abbrandabhängigen Nuklidzusammensetzung neuartiger Brennstoffe entwickelt.

Von zentraler Bedeutung für die Bestimmung des nuklearen Abbrandes ist die Berechnung von effektiven Wirkungsquerschnitten der zu berücksichtigenden Nuklide. Dies setzt die Kenntnis der Energieverteilung der Neutronen im Reaktor voraus. Für die Ermittlung des Neutronenspektrums und der sich daraus ergebenden effektiven Wirkungsquerschnitte wurde im Rahmen dieser Arbeit das Monte-Carlo Programm MCNP4A genutzt. Die Verwendung eines dreidimensionalen Neutronentransportprogramms kontinuierlicher Energie gestattet eine außerordentliche Genauigkeit bei der Ermittlung der effektiven Wirkungsquerschnitte. Insbesondere lassen sich durch die Möglichkeit der vollständigen Simulation einzelner Brennelemente bzw. Brennelementgruppen Heterogenitätseffekte berücksichtigen, welche durch unterschiedliche Anreicherungen oder verschiedenen Abbrand verursacht werden. Diese können die Energieverteilung der Neutronen in einem gegebenen Brennelement wesentlich beeinflussen.

Ein Nachteil bei der Verwendung von Monte-Carlo Programmen zu Simulation des Neutronentransports ist durch den verhältnismäßig hohen Rechenaufwand bei der Bestimmung der effektiven Wirkungsquerschnitte gegeben. Durch die ständig steigende Rechengeschwindigkeit moderner Personalcomputer verliert dieser Aspekt jedoch zunehmend an Bedeutung. Eine weitere Einschränkung der Möglichkeiten von MCNP4A ist durch die zur Verfügung stehenden Bibliotheken der energieabhängigen Wirkungsquerschnitte gegeben. Diese umfassen nicht alle für Abbrandrechnungen relevanten Nuklide (insbesondere nicht alle Spaltprodukte). Weiterhin ist für die exakte Bestimmung der effektiven Wirkungsquerschnitte die bei der Erstellung der Bibliotheken zugrundegelegte Temperatur (aufgrund des Einflusses der Dopplerverbreiterung der Resonanzen) von Bedeutung. Für eine genauere Untersuchung einzelner Brennstoffe müssten daher die benötigten Wirkungsquerschnittsbibliotheken für alle berücksichtigten Nuklide und verschiedenen Temperaturen im MCNP Format erstellt oder von kommerziellen Anbietern erworben werden. Dies konnte im Rahmen dieser Arbeit aus zeitlichen und finanziellen Gründen nicht geleistet werden.

Für die Lösung der Abbrandgleichungen auf Grundlage der mittels MCNP bestimmten effektiven Wirkungsquerschnitte wurden Routinen in *Mathematica* entwickelt. Diese erlauben eine analytische Lösung der Abbrandgleichungen innerhalb vorgegebener Zeitintervalle, in welchen die effektiven Wirkungsquerschnitte konstant gehalten werden. Mit den veränderten Nuklidzusammensetzungen müssen dann erneut effektive Wirkungsquerschnitte bestimmt werden, so daß in einem iterativen Verfahren die Nuklidzusammensetzungen für den gesamten Abbrand ermittelt werden können. Die hierbei berücksichtigten Nuklide umfassen neben den in relevanten Konzentrationen auftretenden Aktiniden auch die im Hinblick auf die Beeinflussung des Neutronenspektrums bedeutenden Spaltprodukte. Die Ergänzung weiterer interessierender Nuklide ist mit geringem Aufwand jederzeit möglich.

Neben der Lösung der Abbrandgleichungen wird *Mathematica* zudem dazu verwendet, die erzielten Ergebnisse auszuwerten und graphisch darzustellen. *Mathematica* stellt hierbei ein umfassendes und flexibles Werkzeug für Datenmanagement und -präsentation dar.

Einen wesentlichen Aspekt bei der Entwicklung eines Programmsystem bildet die

Validierung der damit berechneten Ergebnisse. Daher wurde ein ausführlicher Benchmark auf der Grundlage einer Untersuchung der Nuclear Energy Agency zum Abbrandverhalten von Plutonium-Uran Mischoxid-Brennstoffen durchgeführt [NEA 95b]. Dies ermöglichte den Vergleich mit Ergebnissen (Multiplikationsfaktoren, totalem Neutronenfluß, effektiven Wirkungsquerschnitten und Nuklidzusammensetzungen) anderer Abbrandprogramme. Dabei ergab sich eine ausgezeichnete Übereinstimmung mit den Berechnungen anderer Programmsysteme. Für die im Rahmen der Fragestellung besonders interessierenden Plutoniumisotope sind relative Fehler in der Konzentrationsbestimmung von weniger als 2 % zu erwarten. Eine Ausnahme bildet lediglich ^{242}Pu . Die hierfür auftretenden größeren Abweichungen sind auf einen systematischen Fehler bei der Berechnung der effektiven Wirkungsquerschnitte aufgrund der verwendeten Wirkungsquerschnittsbibliothek zurückzuführen und könnten durch Verwendung einer besser geeigneten Bibliothek reduziert werden.

Neben Brennstoffen auf der Basis von Reaktorplutonium wurde zusätzlich ein Mischoxid-Brennstoff mit Waffenplutonium untersucht. Dies erlaubt einen Vergleich von Eliminierungsszenarien mit einer der vorgeschlagenen Optionen zur Erreichung des *Spent Fuel Standards*. Hierbei sind insbesondere Aussagen zur Plutonium-Eliminierungsrate, aber auch zur verbleibenden Plutoniummenge und der Isotopenzusammensetzung des Plutoniums im abgebrannten Brennstoff von besonderer Bedeutung.

So ist eine physikalische Obergrenze für die durch Spaltung eliminierbare Plutoniummenge durch einem Wert von 370 kg/y bei 1000 MW thermischer Leistung gegeben. Während diese sich im Rahmen einer Eliminierungsoption mittels inerte Brennstoffe realisieren läßt, ergibt sich für den untersuchten Mischoxid-Brennstoff lediglich eine Plutoniumdifferenz von etwa 115 kg/y, basierend auf einer vollständigen Beladung eines Reaktors mit Mischoxid-Brennelementen. Für die bei diesem Szenario vorgegebenen Parameter wie Anfangskonzentration des Plutoniums im Brennstoff und erreichbarer Abbrand ist weiterhin die bei maximalem Abbrand noch im Brennstoff verbleibende Plutoniumkonzentration mehr als doppelt so hoch wie in einem vergleichbaren Uranbrennstoff. Schließlich ist auch der Isotopenvektor des Plutoniums im Falle des Mischoxid-Brennstoffs nicht wesentlich von der Zusammensetzung von Reaktorplutonium verschieden, so daß jedenfalls die prinzipielle Waffentauglichkeit nicht in Frage steht.

Ein Vergleich mit einem gezielt auf die Eliminierung von Plutonium ausgerichteten Szenario, wie es in einer weiteren Diplomarbeit im Rahmen dieses Projekts untersucht wurde [G1a 98], ergibt daher, daß ein Einsatz von Waffenplutonium in der Form von Mischoxid-Brennstoff in kommerziellen Reaktoren im Hinblick auf langfristige Proliferationsicherheit keine Vorteile verspricht.

Mit dem im Rahmen dieser Arbeit entwickelten Programmsystem steht ein flexibles und anpassungsfähiges Werkzeug für die Untersuchung unterschiedlichster Brennstofftypen auch im Hinblick auf neuartige Reaktorsysteme zur Verfügung. So sind neben inerten Brennstoffen für den Einsatz in herkömmlichen Leichtwasserreaktoren auch Brennstoffe auf Thoriumbasis für die Eliminierung von Plutonium vorgeschlagen wor-

den. Diese könnten beispielsweise auch in neuartigen, beschleunigergestützten Reaktorsystemen zum Einsatz kommen (für eine Einführung in diese Problematik siehe auch [Lie 97]). Für detaillierte Untersuchungen zur Frage der Proliferationsicherheit solcher neuartiger Brennstoffe und Reaktorsysteme, aber auch zur Radiotoxizität des abgebrannten Brennstoffs, kann dieses Programmsystem daher einen Beitrag leisten.

Ich habe fertig.

Giovanni Trappatoni.

Literaturverzeichnis

- [Alb 96] Albright, D.; Berkhout, F.; Walker, W.: World Inventory of Plutonium and Highly Enriched Uranium 1996. Oxford University Press, 1996.
- [Bri 93] Briesmeister, J. (Editor): MCNP - A General Monte Carlo N-Particle Transport Code Version 4A. Los Alamos National Laboratory, LA-12625-M, 1993.
- [Bro 89] Bronstein, I. N.; Semendjajew, K. A.: Taschenbuch der Mathematik. Verlag Harry Deutsch, Frankfurt/Main, 1989.
- [Bur 96] Burtak, F.; Hetzelt, L.; Stach, W.: Advanced mixed oxide fuel assemblies with higher plutonium contents for pressurized water reactors. Nuclear Engineering and Design 162, S. 159–165, 1996.
- [DIN 78] DIN Norm 25478, Einsatz von Berechnungssystemen beim Nachweis der Kritikalitätssicherheit, Juli 1994.
- [DoE 96] Technical Summary Report for Surplus Weapons-Usable Plutonium Disposition. United States Department of Energy, Office of Fissile Materials Disposition, DOE/MD-0003 Rev. 1, 1996,
[HTTP://WEB.FIE.COM/HTDOC/FED/DOE/FSL/PUB/MENU/ANY.](http://web.fie.com/htdoc/fed/doe/fsl/pub/menu/any)
- [Eme 93] Emendörfer, D.; Höcker, K.-H.: Theorie der Kernreaktoren Bd. 2: Der in-stationäre Reaktor. BI Wissenschaftsverlag, 1993.
- [Fis 83] Fischer, U.; Wiese, H. W.: Verbesserte konsistente Berechnung des nuklearen Inventars abgebrannter DWR-Brennstoffe auf der Basis von Zell-Abbrand-Verfahren mit KORIGEN. Kernforschungszentrum Karlsruhe, KfK 3014, 1983.
- [Gar 94] Garwin, R. L.: Explosive Properties of Various Types of Plutonium. In: Garwin, R. L. et al.: *Managing the Plutonium Surplus: Applications and Technical Options*, NATO ASI Series, 1994.
- [Gla 98] Glaser, A.: Abbrandrechnungen für ein System zur Eliminierung von Waf-fenplutonium. Diplomarbeit, Darmstadt, Februar 1998.

- [Gsp 98] Gsponer, A.; Hurni, J. P.: The Physical Principles of Thermonuclear Explosives, Inertial Confinement Fusion, and the Quest for Fourth Generation Nuclear Weapons. INESAP Technical Report No. 1, dritte Auflage, März 1998.
- [IAL 97] IALANA (Hrsg.): Atomwaffen vor dem Internationalen Gerichtshof. Dokumentation — Analysen — Hintergründe. LIT-Verlag, Münster, 1997.
- [JEF 94] JEF-PC. A Personal Computer Program for Displaying Nuclear Data from the Joint Evaluated File Library. Version 1.0. JEF-2.2 Pointwise Cross Section Data (CD-ROM). Nuclear Energy Agency, OECD, 1994.
- [Kan 89] Kankeleit, E.; Küppers C.; Imkeller, U.: Bericht zur Waffentauglichkeit von Reaktorplutonium. Darmstadt: IANUS-Working Paper 1/1989. *Report on the Usability of Reactor-Plutonium in Weapons*. UCRL-TT-112792, Livermore, 01-21-93, Translation of the german original from 1989 by Berkeley Scientific Translation Service.
- [Kir 85] Kirchner, G.: Ein neuer Toxizitätsindex zur Ermittlung des Gefährdungspotentials endgelagerter radioaktiver Abfälle. Dissertation. Bremen, 1985.
- [Lie 97] Liebert, W.; Glaser, A.; Pistner, C.: The Role of Accelerator-Based Systems for Optimal Elimination of Plutonium to Minimize Global Proliferation Risks. In: Condé, H. (ed.): *Proceedings of the Second International Conference on Accelerator-Driven Transmutation Technologies and Applications*, Vol. 1, S. 377–384, Kalmar, Schweden, Uppsala University, 1997, [HTTP://WWW.TH-DARMSTADT.DE/ZE/IANUS/PUBLICATIONS](http://www.th-darmstadt.de/ze/ianus/publications).
- [Mar 93] Mark, J. C.: Explosive Properties of Reactor-Grade Plutonium. *Science and Global Security* 4, S. 111-128, 1993.
- [Meg 60] Meghreblian, R. V.; Holmes, D. K.: *Reactor Analysis*. McGraw-Hill Book Company, New York, 1960.
- [NAS 94] Management and Disposition of Excess Weapons Plutonium. U. S. National Academy of Sciences, Committee on International Security and Arms Control, National Academy Press, Washington, DC, 1994.
- [NAS 95] Management and Disposition of Excess Weapons Plutonium. Reactor-Related Options. U. S. National Academy of Sciences, Committee on International Security and Arms Control, National Academy Press, Washington, DC, 1995.
- [NEA 95a] Physics of Plutonium Recycling. Volume I, Issues and Perspectives. Nuclear Energy Agency, OECD Documents, 1995.

- [NEA 95b] Physics of Plutonium Recycling. Volume II, Plutonium Recycling in Pressurized-water Reactors. Nuclear Energy Agency, OECD Documents, 1995.
- [NPT 68] Treaty on the Non-Proliferation of Nuclear Weapons (1968). U.N.T.S. No. 10485, vol. 729, S. 169-175.
- [SAN 96] Proliferation Vulnerability Red Team Report. Sandia National Laboratories, SAND97-8203, Oktober 1996.
- [Te1 96] Tellier, H.: International Evaluation Co-operation of the NEA Nuclear Science Committee, Volume 3. Actinide Data in the Thermal Energy Range. Nuclear Energy Agency, 1996.
- [Wan 82] Wantschik, M.: Bestimmung der Curiumbildung in Leichtwasserreaktoren und Vergleich mit Berechnungen. Kernforschungszentrum Karlsruhe, KfK 3316, März 1982.
- [Wo1 92] Wolfram, S.: *Mathematica*. Ein System für Mathematik auf dem Computer. Addison-Wesley Publishing Company, 1992.
- [Zie 84] Ziegler, A.: Reaktortechnik. Bd. 1: Reaktortheorie. Bd. 2: Reaktortechnik. Bd. 3: Kernkraftwerkstechnik. Heidelberg 1984.

Anhang A

Spaltprodukte

Die Gl. (4.7) stellen zunächst ein gekoppeltes lineares Differentialgleichungssystem dar. Unter Berücksichtigung der Tatsache, daß es sich hierbei jedoch um Zerfallsketten handelt, zwischen denen es lediglich Übergänge durch Neutroneneinfangsprozesse gibt (siehe Abb. 4.7), können die Gleichungen entkoppelt werden, indem jeweils zunächst die Gleichung für das erste Nuklid einer Kette gelöst und diese Lösung in die Gleichung für den jeweiligen Nachfolger eingesetzt wird.

Für ein Nuklid am Anfang einer Kette ergibt sich die Differentialgleichung

$$\frac{d}{dt}N^1(t) = -k^1N^1(t) + \bar{Y}^1,$$

wobei k^1 durch $(\sigma_{a,k}^1 \bar{\phi}_k + \lambda^1)$ gegeben ist. Die Lösung dieser Gleichung mit der Anfangsbedingung $N^1(0) \equiv N^1(t_k)$ ist durch

$$\begin{aligned} N^1(t) &= \left(N^1(t_k) - \frac{\bar{Y}^1}{k^1} \right) \exp(-k^1 t) + \frac{\bar{Y}^1}{k^1} \\ &\equiv \alpha_1 \exp(-k^1 t) + \alpha_2 \end{aligned}$$

gegeben. Für ein Tochternuklid nimmt die Differentialgleichung dann die Form

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt}N^2(t) &= -k^2N^2(t) + l^{21}k^1N^1(t) + \bar{Y}^2 \\ &= -k^2N^2(t) + l^{21}k^1 \left(\alpha_1 \exp(-k^1 t) + \alpha_2 \right) + \bar{Y}^2 \end{aligned}$$

an, wobei l^{21} durch $(\sigma_{a,k}^1 \bar{\phi}_k) / k^1$ bzw. λ^1 / k^1 gegeben ist. Die Lösung dieser Gleichung ist durch

$$N^2(t) = \beta_1 \exp(-k^2 t) + \beta_2 \exp(-k^1 t) + \beta_3$$

wird wiederum durch gegeben, wobei die Konstanten sich zu

$$\beta_1 = N^2(t_k) - \beta_2 - \beta_3, \tag{A.1}$$

$$\beta_2 = \frac{l^{21}k^1\alpha_1}{k^2 - k^1}, \tag{A.2}$$

$$\beta_3 = \frac{l^{21}k^1\alpha_2}{k^2} \tag{A.3}$$

mit $N^2(0) \equiv N^2(t_k)$ bestimmen. Entsprechend ergeben sich die Funktionen für die später in einer Kette auftauchenden Nuklide.

Anhang B

Multiplikationsfaktoren k_{∞}

Brennstoff	0 MWd/kg	10 MWd/kg	30 MWd/kg	40 MWd/kg	50 MWd/kg
3.0 wt% ^{235}U	1.23134	1.08338	0.92755	0.86755	0.82210
4.0 wt% ^{235}U	1.33195	1.17749	1.01300	0.94545	0.88456
MOX-A	1.13744	1.07097	1.00554	0.97681	0.95256
MOX-B	1.18728	1.09481	0.99514	0.95342	0.91337
MOX-WPu	1.29611	1.16245	1.02000	0.95956	0.90923

Tabelle B.1: k_{∞} für verschiedene Brennstoffe in Abhängigkeit vom Abbrand.

Anhang C

Effektive Wirkungsquerschnitte

	0 MWd/kg	10 MWd/kg	33 MWd/kg	42 MWd/kg	50 MWd/kg
U-234	2.058E+01	2.051E+01	2.066E+01	2.078E+01	2.060E+01
U-235	2.612E+01	2.652E+01	2.981E+01	3.133E+01	3.268E+01
U-236	9.598E+00	9.677E+00	9.377E+00	9.224E+00	9.404E+00
U-238	9.626E-01	9.663E-01	9.824E-01	9.882E-01	9.903E-01
Np-237	2.742E+01	2.736E+01	2.844E+01	2.879E+01	2.932E+01
Pu-238	1.609E+01	1.645E+01	1.868E+01	1.977E+01	2.072E+01
Pu-239	6.004E+01	6.379E+01	7.869E+01	8.501E+01	9.067E+01
Pu-240	9.062E+01	6.616E+01	5.505E+01	5.512E+01	5.615E+01
Pu-241	6.454E+01	6.678E+01	7.845E+01	8.363E+01	8.826E+01
Pu-242	3.613E+01	3.562E+01	2.741E+01	2.489E+01	2.236E+01
Am-241	6.043E+01	6.087E+01	6.640E+01	6.878E+01	7.109E+01
Am-242m	3.035E+02	3.115E+02	3.704E+02	3.981E+02	4.221E+02
Am-243	5.172E+01	5.008E+01	4.792E+01	4.688E+01	4.647E+01
Cm-242	5.383E+00	5.410E+00	5.563E+00	5.614E+00	5.627E+00
Cm-243	4.828E+01	4.877E+01	5.364E+01	5.606E+01	5.813E+01
Cm-244	1.512E+01	1.577E+01	1.590E+01	1.604E+01	1.581E+01
Cm-245	6.849E+01	6.946E+01	7.882E+01	8.336E+01	8.736E+01

Tabelle C.1: Effektive Absorptionsquerschnitte, [10^{-24}cm^2], MOX mit waf-fenrädigem Plutonium.

		0 MWd/kg	10 MWd/kg	33 MWd/kg	42 MWd/kg	50 MWd/kg
U-234	NEA	1.615E+01	1.561E+01	1.447E+01	1.422E+01	1.405E+01
	IKDA	1.741E+01	1.712E+01	1.718E+01	1.667E+01	1.638E+01
U-235	NEA	1.614E+01	1.607E+01	1.657E+01	1.687E+01	1.715E+01
	IKDA	1.618E+01	1.600E+01	1.644E+01	1.662E+01	1.685E+01
U-236	NEA	8.132E+00	7.893E+00	7.299E+00	7.179E+00	7.103E+00
	IKDA	8.755E+00	8.702E+00	8.370E+00	8.205E+00	8.086E+00
U-238	NEA	9.314E-01	9.315E-01	9.331E-01	9.346E-01	9.361E-01
	IKDA	9.257E-01	9.280E-01	9.322E-01	9.346E-01	9.378E-01
Np-237	NEA	1.919E+01	1.887E+01	1.852E+01	1.856E+01	1.872E+01
	IKDA	1.981E+01	1.941E+01	1.960E+01	1.960E+01	1.981E+01
Pu-238	NEA	9.086E+00	8.990E+00	9.358E+00	9.549E+00	9.728E+00
	IKDA	9.263E+00	9.146E+00	9.430E+00	9.505E+00	9.641E+00
Pu-239	NEA	3.163E+01	3.188E+01	3.430E+01	3.550E+01	3.659E+01
	IKDA	3.131E+01	3.134E+01	3.371E+01	3.461E+01	3.567E+01
Pu-240	NEA	1.992E+01	1.964E+01	2.013E+01	2.054E+01	2.096E+01
	IKDA	2.012E+01	2.001E+01	2.083E+01	2.133E+01	2.178E+01
Pu-241	NEA	3.487E+01	3.451E+01	3.613E+01	3.697E+01	3.782E+01
	IKDA	3.535E+01	3.505E+01	3.662E+01	3.725E+01	3.798E+01
Pu-242	NEA	8.231E+00	8.394E+00	8.518E+00	8.601E+00	8.666E+00
	IKDA	6.633E+00	6.601E+00	6.621E+00	6.537E+00	6.622E+00
Am-241	NEA	3.487E+01	3.395E+01	3.410E+01	3.457E+01	3.516E+01
	IKDA	3.515E+01	3.450E+01	3.500E+01	3.537E+01	3.573E+01
Am-242m	NEA	1.325E+02	1.302E+02	1.374E+02	1.425E+02	1.482E+02
	IKDA	1.398E+02	1.369E+02	1.445E+02	1.478E+02	1.515E+02
Am-243	NEA	3.515E+01	3.194E+01	2.846E+01	2.778E+01	2.743E+01
	IKDA	3.528E+01	3.202E+01	2.960E+01	2.883E+01	2.863E+01
Cm-242	NEA	4.700E+00	4.663E+00	4.659E+00	4.668E+00	4.678E+00
	IKDA	4.879E+00	4.850E+00	4.944E+00	4.949E+00	4.964E+00
Cm-243	NEA	5.154E+01	5.068E+01	5.020E+01	5.023E+01	5.033E+01
	IKDA	2.980E+01	2.929E+01	2.988E+01	3.009E+01	3.044E+01
Cm-244	NEA	1.325E+01	1.338E+01	1.233E+01	1.200E+01	1.172E+01
	IKDA	1.382E+01	1.369E+01	1.235E+01	1.145E+01	1.091E+01
Cm-245	NEA	3.606E+01	3.414E+01	3.616E+01	3.683E+01	3.749E+01
	IKDA	3.729E+01	3.657E+01	3.764E+01	3.809E+01	3.870E+01

Tabelle C.2: Effektive Absorptionsquerschnitte, [10^{-24}cm^2], Benchmark A.

		0 MWd/kg	10 MWd/kg	33 MWd/kg	42 MWd/kg	50 MWd/kg
U-234	NEA	1.882E+01	1.810E+01	1.747E+01	1.742E+01	1.741E+01
	IKDA	1.970E+01	1.919E+01	1.979E+01	1.998E+01	1.980E+01
U-235	NEA	2.357E+01	2.402E+01	2.681E+01	2.820E+01	2.942E+01
	IKDA	2.320E+01	2.330E+01	2.555E+01	2.653E+01	2.735E+01
U-236	NEA	8.970E+00	8.782E+00	8.164E+00	8.032E+00	7.975E+00
	IKDA	9.530E+00	9.425E+00	9.209E+00	9.328E+00	9.276E+00
U-238	NEA	9.693E-01	9.708E-01	9.792E-01	9.834E-01	9.876E-01
	IKDA	9.590E-01	9.609E-01	9.718E-01	9.743E-01	9.804E-01
Np-237	NEA	2.478E+01	2.470E+01	2.502E+01	2.536E+01	2.582E+01
	IKDA	2.517E+01	2.527E+01	2.606E+01	2.647E+01	2.664E+01
Pu-238	NEA	1.411E+01	1.430E+01	1.622E+01	1.712E+01	1.798E+01
	IKDA	1.416E+01	1.425E+01	1.571E+01	1.639E+01	1.697E+01
Pu-239	NEA	5.406E+01	5.687E+01	6.782E+01	7.279E+01	7.726E+01
	IKDA	5.322E+01	5.550E+01	6.528E+01	6.935E+01	7.284E+01
Pu-240	NEA	4.108E+01	3.992E+01	4.103E+01	4.229E+01	4.373E+01
	IKDA	4.026E+01	3.988E+01	4.144E+01	4.282E+01	4.431E+01
Pu-241	NEA	5.590E+01	5.693E+01	6.598E+01	7.011E+01	7.410E+01
	IKDA	5.653E+01	5.749E+01	6.526E+01	6.870E+01	7.152E+01
Pu-242	NEA	2.207E+01	2.108E+01	1.905E+01	1.835E+01	1.785E+01
	IKDA	2.129E+01	2.009E+01	1.767E+01	1.685E+01	1.638E+01
Am-241	NEA	5.370E+01	5.364E+01	5.756E+01	5.988E+01	6.224E+01
	IKDA	5.268E+01	5.323E+01	5.713E+01	5.912E+01	6.066E+01
Am-242m	NEA	2.548E+02	2.605E+02	3.066E+02	3.310E+02	3.557E+02
	IKDA	2.558E+02	2.577E+02	2.978E+02	3.148E+02	3.293E+02
Am-243	NEA	4.582E+01	4.338E+01	4.011E+01	3.943E+01	3.912E+01
	IKDA	4.553E+01	4.396E+01	4.182E+01	4.143E+01	4.099E+01
Cm-242	NEA	5.295E+00	5.245E+00	5.331E+00	5.379E+00	5.424E+00
	IKDA	5.327E+00	5.377E+00	5.363E+00	5.416E+00	5.480E+00
Cm-243	NEA	6.707E+01	6.656E+01	6.818E+01	6.914E+01	7.012E+01
	IKDA	4.276E+01	4.279E+01	4.627E+01	4.784E+01	4.914E+01
Cm-244	NEA	1.471E+01	1.536E+01	1.462E+01	1.441E+01	1.421E+01
	IKDA	1.541E+01	1.516E+01	1.481E+01	1.480E+01	1.418E+01
Cm-245	NEA	5.800E+01	5.678E+01	6.541E+01	6.902E+01	7.253E+01
	IKDA	5.909E+01	5.908E+01	6.560E+01	6.841E+01	7.085E+01

Tabelle C.3: Effektive Absorptionsquerschnitte, [10^{-24}cm^2], Benchmark B.

	0 MWd/kg	10 MWd/kg	33 MWd/kg	42 MWd/kg	50 MWd/kg
U-234	5.646E-01	5.633E-01	5.575E-01	5.548E-01	5.535E-01
U-235	2.021E+01	2.053E+01	2.331E+01	2.460E+01	2.575E+01
U-236	3.441E-01	3.444E-01	3.367E-01	3.335E-01	3.349E-01
U-238	1.119E-01	1.114E-01	1.091E-01	1.085E-01	1.078E-01
Np-237	5.856E-01	5.839E-01	5.752E-01	5.713E-01	5.693E-01
Pu-238	1.934E+00	1.946E+00	1.993E+00	2.018E+00	2.043E+00
Pu-239	3.867E+01	4.092E+01	5.024E+01	5.424E+01	5.780E+01
Pu-240	6.284E-01	6.216E-01	6.106E-01	6.065E-01	6.043E-01
Pu-241	4.750E+01	4.914E+01	5.763E+01	6.141E+01	6.476E+01
Pu-242	4.862E-01	4.846E-01	4.771E-01	4.738E-01	4.720E-01
Am-241	8.835E-01	8.850E-01	9.080E-01	9.182E-01	9.293E-01
Am-242m	2.541E+02	2.606E+02	3.094E+02	3.324E+02	3.522E+02
Am-243	4.714E-01	4.696E-01	4.618E-01	4.589E-01	4.567E-01
Cm-242	4.672E-01	4.670E-01	4.746E-01	4.794E-01	4.835E-01
Cm-243	3.749E+01	3.778E+01	4.096E+01	4.257E+01	4.393E+01
Cm-244	9.759E-01	9.851E-01	9.780E-01	9.762E-01	9.709E-01
Cm-245	5.770E+01	5.848E+01	6.614E+01	6.986E+01	7.315E+01

Tabelle C.4: Effektive Spaltquerschnitte, [10^{-24}cm^2], MOX mit waffenfähigem Plutonium.

		0 MWd/kg	10 MWd/kg	33 MWd/kg	42 MWd/kg	50 MWd/kg
U-234	NEA	5.852E-01	5.801E-01	5.795E-01	5.790E-01	5.786E-01
	IKDA	5.882E-01	5.891E-01	5.860E-01	5.863E-01	5.860E-01
U-235	NEA	1.186E+01	1.178E+01	1.221E+01	1.246E+01	1.268E+01
	IKDA	1.186E+01	1.172E+01	1.208E+01	1.223E+01	1.242E+01
U-236	NEA	3.282E-01	3.074E-01	3.097E-01	3.083E-01	3.078E-01
	IKDA	3.462E-01	3.462E-01	3.402E-01	3.388E-01	3.372E-01
U-238	NEA	1.221E-01	1.223E-01	1.222E-01	1.221E-01	1.220E-01
	IKDA	1.173E-01	1.175E-01	1.165E-01	1.166E-01	1.168E-01
Np-237	NEA	5.926E-01	5.629E-01	5.856E-01	5.852E-01	5.873E-01
	IKDA	6.176E-01	6.189E-01	6.150E-01	6.154E-01	6.157E-01
Pu-238	NEA	1.866E+00	1.869E+00	1.881E+00	1.888E+00	1.891E+00
	IKDA	1.795E+00	1.795E+00	1.801E+00	1.799E+00	1.806E+00
Pu-239	NEA	2.019E+01	2.030E+01	2.182E+01	2.256E+01	2.325E+01
	IKDA	2.000E+01	1.996E+01	2.143E+01	2.199E+01	2.262E+01
Pu-240	NEA	6.502E-01	6.482E-01	6.487E-01	6.489E-01	6.484E-01
	IKDA	6.463E-01	6.479E-01	6.440E-01	6.447E-01	6.449E-01
Pu-241	NEA	2.657E+01	2.627E+01	2.744E+01	2.806E+01	2.868E+01
	IKDA	2.639E+01	2.615E+01	2.727E+01	2.773E+01	2.826E+01
Pu-242	NEA	5.128E-01	5.145E-01	5.142E-01	5.143E-01	5.136E-01
	IKDA	5.112E-01	5.124E-01	5.091E-01	5.092E-01	5.096E-01
Am-241	NEA	7.832E-01	7.510E-01	7.788E-01	7.826E-01	7.870E-01
	IKDA	7.905E-01	7.888E-01	7.874E-01	7.898E-01	7.923E-01
Am-242m	NEA	1.111E+02	9.964E+01	1.145E+02	1.187E+02	1.234E+02
	IKDA	1.177E+02	1.152E+02	1.215E+02	1.242E+02	1.273E+02
Am-243	NEA	4.893E-01	4.817E-01	4.941E-01	4.935E-01	4.942E-01
	IKDA	4.962E-01	4.975E-01	4.939E-01	4.942E-01	4.946E-01
Cm-242	NEA	1.065E+00	1.043E+00	1.043E+00	1.043E+00	1.043E+00
	IKDA	4.424E-01	4.426E-01	4.413E-01	4.423E-01	4.439E-01
Cm-243	NEA	4.458E+01	4.381E+01	4.337E+01	4.338E+01	4.347E+01
	IKDA	2.429E+01	2.390E+01	2.427E+01	2.440E+01	2.464E+01
Cm-244	NEA	9.623E-01	9.620E-01	9.499E-01	9.463E-01	9.430E-01
	IKDA	9.891E-01	9.888E-01	9.642E-01	9.525E-01	9.435E-01
Cm-245	NEA	3.136E+01	2.974E+01	3.146E+01	3.204E+01	3.261E+01
	IKDA	3.178E+01	3.117E+01	3.204E+01	3.241E+01	3.290E+01

Tabelle C.5: Effektive Spaltquerschnitte, [10^{-24}cm^2], Benchmark A.

		0 MWd/kg	10 MWd/kg	33 MWd/kg	42 MWd/kg	50 MWd/kg
U-234	NEA	5.556E-01	5.566E-01	5.523E-01	5.518E-01	5.493E-01
	IKDA	5.705E-01	5.683E-01	5.652E-01	5.636E-01	5.624E-01
U-235	NEA	1.806E+01	1.840E+01	2.079E+01	2.196E+01	2.301E+01
	IKDA	1.773E+01	1.781E+01	1.971E+01	2.053E+01	2.123E+01
U-236	NEA	3.446E-01	3.142E-01	3.148E-01	3.126E-01	3.114E-01
	IKDA	3.467E-01	3.443E-01	3.394E-01	3.402E-01	3.386E-01
U-238	NEA	1.172E-01	1.172E-01	1.162E-01	1.156E-01	1.152E-01
	IKDA	1.132E-01	1.126E-01	1.113E-01	1.110E-01	1.105E-01
Np-237	NEA	5.677E-01	5.354E-01	5.554E-01	5.535E-01	5.536E-01
	IKDA	5.939E-01	5.916E-01	5.868E-01	5.845E-01	5.826E-01
Pu-238	NEA	1.981E+00	1.994E+00	2.042E+00	2.067E+00	2.086E+00
	IKDA	1.900E+00	1.904E+00	1.935E+00	1.951E+00	1.962E+00
Pu-239	NEA	3.473E+01	3.644E+01	4.340E+01	4.658E+01	4.945E+01
	IKDA	3.410E+01	3.543E+01	4.156E+01	4.412E+01	4.633E+01
Pu-240	NEA	6.355E-01	6.306E-01	6.276E-01	6.265E-01	6.244E-01
	IKDA	6.268E-01	6.246E-01	6.199E-01	6.177E-01	6.160E-01
Pu-241	NEA	4.222E+01	4.293E+01	4.960E+01	5.265E+01	5.559E+01
	IKDA	4.174E+01	4.240E+01	4.805E+01	5.051E+01	5.255E+01
Pu-242	NEA	4.970E-01	4.933E-01	4.890E-01	4.864E-01	4.850E-01
	IKDA	4.929E-01	4.909E-01	4.867E-01	4.847E-01	4.829E-01
Am-241	NEA	8.754E-01	8.393E-01	8.973E-01	9.113E-01	9.256E-01
	IKDA	8.542E-01	8.554E-01	8.725E-01	8.811E-01	8.875E-01
Am-242m	NEA	2.118E+02	1.959E+02	2.546E+02	2.747E+02	2.951E+02
	IKDA	2.142E+02	2.158E+02	2.490E+02	2.631E+02	2.752E+02
Am-243	NEA	4.764E-01	4.701E-01	4.818E-01	4.794E-01	4.788E-01
	IKDA	4.777E-01	4.759E-01	4.714E-01	4.695E-01	4.677E-01
Cm-242	NEA	1.109E+00	1.088E+00	1.102E+00	1.108E+00	1.115E+00
	IKDA	4.586E-01	4.570E-01	4.631E-01	4.664E-01	4.685E-01
Cm-243	NEA	5.804E+01	5.757E+01	5.890E+01	5.970E+01	6.053E+01
	IKDA	3.354E+01	3.355E+01	3.587E+01	3.694E+01	3.780E+01
Cm-244	NEA	9.587E-01	9.647E-01	9.521E-01	9.486E-01	9.450E-01
	IKDA	9.895E-01	9.827E-01	9.729E-01	9.715E-01	9.604E-01
Cm-245	NEA	5.044E+01	4.939E+01	5.681E+01	5.993E+01	6.296E+01
	IKDA	4.987E+01	4.985E+01	5.520E+01	5.751E+01	5.951E+01

Tabelle C.6: Effektive Spaltquerschnitte, [10^{-24}cm^2], Benchmark B.

Anhang D

Brennstoff-Zusammensetzungen

D.1 Aktinide

	0 MWd/kg	10 MWd/kg	33 MWd/kg	42 MWd/kg	50 MWd/kg
U-234	2.499E-07	2.207E-07	1.698E-07	1.599E-07	1.574E-07
U-235	5.228E-05	4.415E-05	2.721E-05	2.159E-05	1.722E-05
U-236	0.000E+00	1.806E-06	5.038E-06	5.890E-06	6.435E-06
U-238	2.060E-02	2.047E-02	2.012E-02	1.997E-02	1.983E-02
Np-237	0.000E+00	7.763E-07	2.618E-06	3.259E-06	3.768E-06
Pu-238	9.052E-08	3.424E-07	2.371E-06	3.773E-06	5.253E-06
Pu-239	8.457E-04	6.594E-04	3.631E-04	2.941E-04	2.499E-04
Pu-240	5.207E-05	1.160E-04	1.757E-04	1.756E-04	1.689E-04
Pu-241	1.162E-06	3.543E-05	9.525E-05	1.034E-04	1.042E-04
Pu-242	1.781E-07	2.147E-06	2.099E-05	3.242E-05	4.345E-05
Am-241	1.967E-06	1.873E-06	4.157E-06	4.918E-06	5.252E-06
Am-242m	0.000E+00	3.038E-08	6.751E-08	8.058E-08	8.619E-08
Am-243	0.000E+00	1.877E-07	4.117E-06	7.322E-06	1.060E-05
Cm-242	0.000E+00	3.115E-07	1.032E-06	1.445E-06	1.787E-06
Cm-243	0.000E+00	5.237E-09	4.099E-08	6.628E-08	9.231E-08
Cm-244	0.000E+00	1.901E-08	1.298E-06	3.007E-06	5.394E-06
Cm-245	0.000E+00	4.280E-10	7.965E-08	2.281E-07	4.619E-07

Tabelle D.1: Nukliddichten, [10^{24} cm^{-3}], MOX mit waffengrädigem Plutonium.

		0 MWd/kg	10 MWd/kg	33 MWd/kg	42 MWd/kg	50 MWd/kg
U-234	NEA	0.000E+00	5.815E-07	1.600E-06	1.905E-06	2.144E-06
	IKDA	0.000E+00	5.927E-07	1.580E-06	1.860E-06	2.075E-06
U-235	NEA	1.446E-04	1.294E-04	9.841E-05	8.771E-05	7.886E-05
	IKDA	1.446E-04	1.293E-04	9.841E-05	8.780E-05	7.906E-05
U-236	NEA	0.000E+00	3.948E-06	1.121E-05	1.341E-05	1.508E-05
	IKDA	0.000E+00	4.021E-06	1.135E-05	1.353E-05	1.518E-05
U-238	NEA	1.994E-02	1.981E-02	1.950E-02	1.937E-02	1.926E-02
	IKDA	1.994E-02	1.981E-02	1.950E-02	1.937E-02	1.925E-02
Np-237	NEA	0.000E+00	8.870E-07	3.291E-06	4.260E-06	5.104E-06
	IKDA	0.000E+00	9.406E-07	3.558E-06	4.600E-06	5.519E-06
Pu-238	NEA	1.147E-04	1.075E-04	9.560E-05	9.268E-05	9.073E-05
	IKDA	1.147E-04	1.073E-04	9.614E-05	9.393E-05	9.275E-05
Pu-239	NEA	1.028E-03	9.311E-04	7.483E-04	6.890E-04	6.415E-04
	IKDA	1.028E-03	9.320E-04	7.526E-04	6.955E-04	6.499E-04
Pu-240	NEA	7.966E-04	7.661E-04	6.892E-04	6.570E-04	6.276E-04
	IKDA	7.966E-04	7.651E-04	6.830E-04	6.482E-04	6.170E-04
Pu-241	NEA	3.400E-04	3.496E-04	3.497E-04	3.434E-04	3.357E-04
	IKDA	3.400E-04	3.490E-04	3.501E-04	3.448E-04	3.378E-04
Pu-242	NEA	5.639E-04	5.520E-04	5.290E-04	5.212E-04	5.146E-04
	IKDA	5.639E-04	5.595E-04	5.531E-04	5.517E-04	5.506E-04
Am-241	NEA	0.000E+00	1.034E-05	2.657E-05	3.033E-05	3.262E-05
	IKDA	0.000E+00	1.058E-05	2.682E-05	3.047E-05	3.266E-05
Am-242m	NEA	0.000E+00	1.114E-07	5.904E-07	7.310E-07	8.198E-07
	IKDA	0.000E+00	9.628E-08	4.990E-07	6.169E-07	6.903E-07
Am-243	NEA	0.000E+00	2.660E-05	7.121E-05	8.404E-05	9.375E-05
	IKDA	0.000E+00	2.135E-05	5.798E-05	6.857E-05	7.674E-05
Cm-242	NEA	0.000E+00	6.691E-07	3.525E-06	4.499E-06	5.230E-06
	IKDA	0.000E+00	6.763E-07	3.541E-06	4.521E-06	5.246E-06
Cm-243	NEA	0.000E+00	5.708E-09	9.747E-08	1.543E-07	2.077E-07
	IKDA	0.000E+00	7.345E-09	1.386E-07	2.262E-07	3.124E-07
Cm-244	NEA	0.000E+00	2.585E-06	2.148E-05	3.170E-05	4.156E-05
	IKDA	0.000E+00	2.405E-06	2.052E-05	3.057E-05	4.043E-05
Cm-245	NEA	0.000E+00	7.208E-08	1.796E-06	3.221E-06	4.810E-06
	IKDA	0.000E+00	6.984E-08	1.772E-06	3.082E-06	4.474E-06

Tabelle D.2: Nukliddichten, [10^{24} cm^{-3}], Benchmark A.

		0 MWd/kg	10 MWd/kg	33 MWd/kg	42 MWd/kg	50 MWd/kg
U-234	NEA	2.463E-07	3.131E-07	4.177E-07	4.484E-07	4.735E-07
	IKDA	2.463E-07	3.267E-07	4.440E-07	4.751E-07	5.005E-07
U-235	NEA	5.151E-05	4.404E-05	2.888E-05	2.382E-05	1.977E-05
	IKDA	5.152E-05	4.406E-05	2.896E-05	2.396E-05	1.998E-05
U-236	NEA	0.000E+00	1.716E-06	4.742E-06	5.578E-06	6.163E-06
	IKDA	0.000E+00	1.746E-06	4.798E-06	5.616E-06	6.170E-06
U-238	NEA	2.030E-02	2.016E-02	1.983E-02	1.969E-02	1.957E-02
	IKDA	2.030E-02	2.016E-02	1.982E-02	1.968E-02	1.955E-02
Np-237	NEA	0.000E+00	7.744E-07	2.529E-06	3.136E-06	3.624E-06
	IKDA	0.000E+00	8.126E-07	2.729E-06	3.406E-06	3.948E-06
Pu-238	NEA	2.180E-05	1.996E-05	1.861E-05	1.906E-05	1.970E-05
	IKDA	2.180E-05	1.993E-05	1.899E-05	1.974E-05	2.067E-05
Pu-239	NEA	7.115E-04	5.907E-04	3.886E-04	3.336E-04	2.943E-04
	IKDA	7.115E-04	5.898E-04	3.906E-04	3.377E-04	3.008E-04
Pu-240	NEA	2.762E-04	2.845E-04	2.711E-04	2.568E-04	2.415E-04
	IKDA	2.762E-04	2.854E-04	2.705E-04	2.548E-04	2.381E-04
Pu-241	NEA	1.459E-04	1.589E-04	1.645E-04	1.586E-04	1.507E-04
	IKDA	1.459E-04	1.577E-04	1.642E-04	1.594E-04	1.526E-04
Pu-242	NEA	4.764E-05	5.451E-05	7.611E-05	8.576E-05	9.430E-05
	IKDA	4.764E-05	5.589E-05	8.064E-05	9.157E-05	1.012E-04
Am-241	NEA	0.000E+00	4.279E-06	9.849E-06	1.051E-05	1.051E-05
	IKDA	0.000E+00	4.414E-06	9.941E-06	1.055E-05	1.052E-05
Am-242m	NEA	0.000E+00	5.624E-08	2.023E-07	2.192E-07	2.184E-07
	IKDA	0.000E+00	4.930E-08	1.760E-07	1.918E-07	1.923E-07
Am-243	NEA	0.000E+00	6.224E-06	1.867E-05	2.313E-05	2.693E-05
	IKDA	0.000E+00	6.156E-06	1.853E-05	2.287E-05	2.661E-05
Cm-242	NEA	0.000E+00	4.241E-07	2.245E-06	2.811E-06	3.174E-06
	IKDA	0.000E+00	4.290E-07	2.254E-06	2.820E-06	3.182E-06
Cm-243	NEA	0.000E+00	3.932E-09	6.587E-08	1.016E-07	1.322E-07
	IKDA	0.000E+00	4.895E-09	8.908E-08	1.404E-07	1.868E-07
Cm-244	NEA	0.000E+00	8.565E-07	8.026E-06	1.238E-05	1.687E-05
	IKDA	0.000E+00	9.049E-07	8.750E-06	1.356E-05	1.854E-05
Cm-245	NEA	0.000E+00	2.514E-08	6.648E-07	1.195E-06	1.780E-06
	IKDA	0.000E+00	2.736E-08	7.455E-07	1.371E-06	2.036E-06

Tabelle D.3: Nukliddichten, [10^{24} cm^{-3}], Benchmark B.

D.2 Spaltprodukte

	10 MWd/kg	33 MWd/kg	42 MWd/kg	50 MWd/kg
Mo-95	1.094E-05	3.496E-05	4.392E-05	5.167E-05
Tc-99	1.360E-05	4.309E-05	5.375E-05	6.281E-05
Ru-101	1.413E-05	4.548E-05	5.729E-05	6.756E-05
Rh-103	1.175E-05	4.196E-05	5.218E-05	6.053E-05
Pd-105	1.235E-05	4.026E-05	5.087E-05	6.015E-05
Pd-107	8.002E-06	2.609E-05	3.300E-05	3.905E-05
Pd-108	5.593E-06	1.886E-05	2.417E-05	2.894E-05
Ag-109	7.185E-06	1.992E-05	2.369E-05	2.658E-05
Xe-131	7.414E-06	2.132E-05	2.543E-05	2.855E-05
Xe-135	2.568E-08	2.447E-08	2.426E-08	2.377E-08
Cs-133	1.533E-05	4.803E-05	5.945E-05	6.898E-05
Cs-135	1.223E-05	3.917E-05	4.920E-05	5.786E-05
Nd-143	9.597E-06	3.195E-05	4.006E-05	4.696E-05
Nd-145	7.269E-06	2.292E-05	2.863E-05	3.351E-05
Pm-147	3.827E-06	8.281E-06	8.987E-06	9.362E-06
Sm-149	5.490E-07	5.163E-07	5.025E-07	4.816E-07
Sm-150	2.524E-06	9.558E-06	1.220E-05	1.448E-05
Sm-151	1.278E-06	2.347E-06	2.500E-06	2.592E-06
Sm-152	1.744E-06	5.736E-06	6.920E-06	7.776E-06
Eu-153	1.142E-06	5.059E-06	6.844E-06	8.439E-06
Eu-154	1.077E-07	1.237E-06	1.992E-06	2.774E-06
Eu-155	4.068E-07	8.764E-07	1.079E-06	1.292E-06

Tabelle D.4: Nukliddichten, [10^{24} cm^{-3}], MOX mit waffengrädigem Plutonium.

		10 MWd/kg	33 MWd/kg	42 MWd/kg	50 MWd/kg
Mo-95	NEA	7.606E-06	3.206E-05	4.133E-05	4.934E-05
	IKDA	1.094E-05	3.496E-05	4.392E-05	5.167E-05
Tc-99	NEA	1.353E-05	4.272E-05	5.330E-05	6.232E-05
	IKDA	1.360E-05	4.309E-05	5.375E-05	6.281E-05
Ru-101	NEA	1.379E-05	4.446E-05	5.605E-05	6.614E-05
	IKDA	1.413E-05	4.548E-05	5.729E-05	6.756E-05
Rh-103	NEA	1.170E-05	4.042E-05	5.008E-05	5.793E-05
	IKDA	1.175E-05	4.196E-05	5.218E-05	6.053E-05
Pd-105	NEA	1.193E-05	3.884E-05	4.905E-05	5.796E-05
	IKDA	1.235E-05	4.026E-05	5.087E-05	6.015E-05
Pd-107	NEA	8.132E-06	2.646E-05	3.344E-05	3.955E-05
	IKDA	8.002E-06	2.609E-05	3.300E-05	3.905E-05
Pd-108	NEA	5.651E-06	1.865E-05	2.373E-05	2.823E-05
	IKDA	5.593E-06	1.886E-05	2.417E-05	2.894E-05
Ag-109	NEA	3.367E-06	9.532E-06	1.149E-05	1.306E-05
	IKDA	7.185E-06	1.992E-05	2.369E-05	2.658E-05
Xe-131	NEA	7.358E-06	2.105E-05	2.519E-05	2.838E-05
	IKDA	7.414E-06	2.132E-05	2.543E-05	2.855E-05
Xe-135	NEA	2.635E-08	2.462E-08	2.388E-08	2.327E-08
	IKDA	2.568E-08	2.447E-08	2.426E-08	2.377E-08
Cs-133	NEA	1.490E-05	4.633E-05	5.733E-05	6.650E-05
	IKDA	1.533E-05	4.803E-05	5.945E-05	6.898E-05
Cs-135	NEA	1.231E-05	3.932E-05	4.931E-05	5.790E-05
	IKDA	1.223E-05	3.917E-05	4.920E-05	5.786E-05
Nd-143	NEA	1.048E-05	3.445E-05	4.314E-05	5.052E-05
	IKDA	9.597E-06	3.195E-05	4.006E-05	4.696E-05
Nd-145	NEA	7.449E-06	2.349E-05	2.933E-05	3.432E-05
	IKDA	7.269E-06	2.292E-05	2.863E-05	3.351E-05
Pm-147	NEA	3.396E-06	7.201E-06	7.817E-06	8.149E-06
	IKDA	3.827E-06	8.281E-06	8.987E-06	9.362E-06
Sm-149	NEA	6.005E-07	6.025E-07	5.816E-07	5.590E-07
	IKDA	5.490E-07	5.163E-07	5.025E-07	4.816E-07
Sm-150	NEA	2.540E-06	1.030E-05	1.334E-05	1.599E-05
	IKDA	2.524E-06	9.558E-06	1.220E-05	1.448E-05
Sm-151	NEA	1.288E-06	2.436E-06	2.626E-06	2.744E-06
	IKDA	1.278E-06	2.347E-06	2.500E-06	2.592E-06
Sm-152	NEA	1.633E-06	5.363E-06	6.521E-06	7.410E-06
	IKDA	1.744E-06	5.736E-06	6.920E-06	7.776E-06
Eu-153	NEA	1.090E-06	4.782E-06	6.398E-06	7.808E-06
	IKDA	1.142E-06	5.059E-06	6.844E-06	8.439E-06
Eu-154	NEA	1.121E-07	1.299E-06	2.083E-06	2.886E-06
	IKDA	1.077E-07	1.237E-06	1.992E-06	2.774E-06
Eu-155	NEA	2.610E-07	4.651E-07	7.077E-07	8.702E-07
	IKDA	4.068E-07	8.764E-07	1.079E-06	1.292E-06

Tabelle D.5: Nukliddichten, [10^{24} cm^{-3}], Benchmark A.

		10 MWd/kg	33 MWd/kg	42 MWd/kg	50 MWd/kg
Mo-95	NEA	6.556E-06	2.934E-05	3.792E-05	4.530E-05
	IKDA	1.037E-05	3.291E-05	4.120E-05	4.831E-05
Tc-99	NEA	1.273E-05	3.980E-05	4.941E-05	5.748E-05
	IKDA	1.284E-05	4.027E-05	4.996E-05	5.809E-05
Ru-101	NEA	1.292E-05	4.155E-05	5.228E-05	6.158E-05
	IKDA	1.334E-05	4.281E-05	5.384E-05	6.339E-05
Rh-103	NEA	1.115E-05	3.573E-05	4.281E-05	4.796E-05
	IKDA	1.095E-05	3.679E-05	4.448E-05	5.019E-05
Pd-105	NEA	1.116E-05	3.620E-05	4.558E-05	5.369E-05
	IKDA	1.166E-05	3.778E-05	4.759E-05	5.608E-05
Pd-107	NEA	7.459E-06	2.439E-05	3.087E-05	3.651E-05
	IKDA	7.300E-06	2.397E-05	3.038E-05	3.599E-05
Pd-108	NEA	5.077E-06	1.716E-05	2.201E-05	2.636E-05
	IKDA	4.989E-06	1.705E-05	2.195E-05	2.636E-05
Ag-109	NEA	3.131E-06	8.560E-06	1.016E-05	1.139E-05
	IKDA	6.403E-06	1.737E-05	2.037E-05	2.257E-05
Xe-131	NEA	7.010E-06	1.940E-05	2.283E-05	2.530E-05
	IKDA	7.071E-06	1.959E-05	2.294E-05	2.528E-05
Xe-135	NEA	1.884E-08	1.565E-08	1.443E-08	1.346E-08
	IKDA	1.824E-08	1.536E-08	1.497E-08	1.409E-08
Cs-133	NEA	1.400E-05	4.302E-05	5.289E-05	6.097E-05
	IKDA	1.443E-05	4.458E-05	5.477E-05	6.309E-05
Cs-135	NEA	8.737E-06	2.665E-05	3.280E-05	3.789E-05
	IKDA	8.782E-06	2.679E-05	3.304E-05	3.827E-05
Nd-143	NEA	9.468E-06	3.023E-05	3.715E-05	4.262E-05
	IKDA	8.871E-06	2.851E-05	3.510E-05	4.038E-05
Nd-145	NEA	6.855E-06	2.149E-05	2.674E-05	3.116E-05
	IKDA	6.754E-06	2.113E-05	2.627E-05	3.060E-05
Pm-147	NEA	3.265E-06	6.690E-06	7.140E-06	7.324E-06
	IKDA	3.499E-06	7.245E-06	7.693E-06	7.872E-06
Sm-149	NEA	2.623E-07	2.366E-07	2.193E-07	2.038E-07
	IKDA	2.441E-07	2.005E-07	1.924E-07	1.785E-07
Sm-150	NEA	2.685E-06	1.024E-05	1.320E-05	1.575E-05
	IKDA	2.618E-06	9.250E-06	1.172E-05	1.383E-05
Sm-151	NEA	9.177E-07	1.212E-06	1.216E-06	1.212E-06
	IKDA	9.435E-07	1.248E-06	1.255E-06	1.252E-06
Sm-152	NEA	1.759E-06	5.331E-06	6.237E-06	6.881E-06
	IKDA	1.820E-06	5.575E-06	6.455E-06	7.037E-06
Eu-153	NEA	1.065E-06	4.905E-06	6.479E-06	7.769E-06
	IKDA	1.105E-06	5.138E-06	6.875E-06	8.317E-06
Eu-154	NEA	1.238E-07	1.405E-06	2.172E-06	2.888E-06
	IKDA	1.175E-07	1.387E-06	2.201E-06	2.994E-06
Eu-155	NEA	1.903E-07	4.275E-07	5.704E-07	7.054E-07
	IKDA	2.941E-07	5.880E-07	7.546E-07	9.232E-07

Tabelle D.6: Nukliddichten, [10^{24} cm^{-3}], Benchmark B.

Hiermit erkläre ich an Eides Statt, daß ich die vorliegende Arbeit selbstständig und nur mit den genannten Hilfsmitteln verfaßt habe.

Darmstadt, den 20. Mai 1998

Danksagung

Die vorliegende Diplomarbeit wurde am *Institut für Kernphysik* der *Technischen Universität Darmstadt* (TUD) durchgeführt. Sie ist gleichzeitig in das Projekt „Nichtverbreitung und Abrüstung von Kernwaffen“ der *Interdisziplinären Arbeitsgruppe Naturwissenschaft, Technik und Sicherheit* (IANUS) der TUD eingebettet.

Den verschiedenen Personen, die zur Entstehung dieser Arbeit beigetragen haben, möchte ich an dieser Stelle meinen Dank aussprechen.

Zunächst ist hierbei Prof. Dr. E. Kankeleit zu nennen, der mir die Durchführung dieser Arbeit ermöglichte und ein großes Interesse an der damit verbundenen Fragestellung zeigte. Weiterhin möchte ich Dr. W. Liebert nennen, der diese Arbeit anregte und durch immer wieder fruchtbare Diskussionen begleitet hat. Ebenso habe allen Mitgliedern von IANUS, sowie der Arbeitsgruppe von Prof. Kankeleit für ein angenehmes und anregendes Arbeitsklima zu danken.

Mein besonderer Dank gilt Alexander Glaser, der ebenfalls im Rahmen dieses Projekts seine Physik-Diplomarbeit absolviert hat. Nur durch die kontinuierliche und überaus angenehme und effektive Kooperation konnte diese Arbeit durchgeführt werden.

Schließlich möchte ich meinen Eltern meinen herzlichsten Dank aussprechen, meinem Vater Otto Pistner, der den erfolgreichen Abschluß dieser Arbeit leider nicht mehr erleben durfte, sowie meiner Mutter Katharina Pistner, ohne deren Unterstützung ich gerade in der Schlußphase meines Studiums sicher nicht ausgekommen wäre.