

Kritische Massen von Transuranen aus Leichtwasserreaktor-Brennelementen

Bachelorarbeit im Studiengang Physik

von

Erik Buhmann

geboren am 11. Oktober 1991

Universität Hamburg

Carl Friedrich von Weizsäcker-Zentrum für
Naturwissenschaft und Friedensforschung (ZNF)

November 2015

Gutachter: Prof. Dr. Gerald Kirchner

Carl Friedrich von Weizsäcker-Zentrum
für Naturwissenschaft und Friedensforschung
Universität Hamburg

Dr. Markus Kohler

Carl Friedrich von Weizsäcker-Zentrum
für Naturwissenschaft und Friedensforschung
Universität Hamburg

Eidesstattliche Versicherung

Hiermit versichere ich, die vorliegende Bachelorarbeit selbstständig und nur unter Zuhilfenahme der angegebenen Quellen und Hilfsmittel verfasst zu haben.

Mit einer Veröffentlichung dieser Arbeit erkläre ich mich einverstanden.

Erik Buhmann
Hamburg, den 2. Dezember 2015

Zusammenfassung

Durch Partitionierung und Transmutation (P&T) kann eine Erweiterung des nuklearen Brennstoffkreislaufes stattfinden, da neben Plutonium weitere Minore Actinoide wiederaufbereitet werden. Eine solche Veränderung kann Einfluss auf die (Nicht-)Proliferation von Kernwaffen haben. Um dieses Proliferationsrisiko abzuschätzen, werden Kritische Massen von Transuranen aus Leichtwasserreaktor-Brennelementen berechnet. Diese Kritischen Massen von Kugeln aus reinem Spaltmaterial geben Aufschluss über die benötigte Materialmenge zur Konstruktion einer simplen Kernwaffe.

Die Kritischen Massen der Transurane Plutonium, Neptunium, Americium, Curium und eines Gemisches aus Americium und Curium wurden mit Hilfe des Monte-Carlo-Codes KENO berechnet. KENO ist Teil der SCALE Programmumgebung, welche am Oak Ridge National Laboratory entwickelt wurde. Die Transurane wurden mit Isotopenvektoren simuliert, wie sie nach verschiedenen Abbränden und konsekutiven Lagerungszeiten in Leichtwasserreaktor-Brennelementen auftreten. Transurane mit diesen Isotopenvektoren wären bei industrieller Nutzung von P&T zugänglich.

Eine Bewertung des Proliferationsrisikos wird unter Berücksichtigung der Spontanspaltungsrate und der damit einhergehenden Prädetonationswahrscheinlichkeit der einzelnen Transurane vorgenommen. Die berechneten Kritischen Massen zeigen, dass bei Plutonium ein sehr hohes Proliferationsrisiko vorliegt. Bei Neptunium und bei einige Jahre gelagertem Americium ist das Risiko ebenfalls hoch. Kurz nach Entladung ist das Risiko bei Americium geringer. Curium und ein Gemisch aus Americium und Curium sind nicht proliferationsrelevant.

Bei Anwendung von P&T im industriellen Maßstab werden für Neptunium und Americium die gleichen IAEO „Safeguards“ Maßnahmen wie bei Plutonium notwendig.

Abstract

By partitioning and transmutation (P&T) the nuclear fuel cycle is enhanced. Such a change leads to implications on (non-)proliferation of nuclear weapons. Critical masses of transuranic elements from light water reactor fuel elements are calculated to estimate the risk of proliferation. This critical mass of a bare sphere gives an estimate of the minimal amount of fissile material necessary to produce a simple nuclear bomb.

The Monte-Carlo code KENO was used to determine critical masses of the transuranic elements plutonium, neptunium, americium, curium, and a mixture of americium and curium. KENO is part of the SCALE code package developed by the Oak Ridge National Laboratory. The elements were simulated with isotopic vectors determined with different burnups and subsequent storage time. With an industrial implementation of P&T such transuranic elements would become available.

The risk of proliferation is evaluated under consideration of the spontaneous fission rate and the probability of predetonation. The calculated critical mass of plutonium indicates a very high relevance for proliferation. Neptunium as well as americium for several years stored present a high risk, too. Shortly after discharge there is a lower risk for americium. Curium and a mixture of americium and curium are not relevant under these considerations.

If the application of P&T reaches an industrial scale the IAEA needs to apply the same safeguards monitoring of neptunium and americium as for plutonium.

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	7
2	Theoretische Grundlagen	12
2.1	Kernphysikalische Grundlagen	12
2.1.1	Kernreaktionen	12
2.1.2	Wirkungsquerschnitt	13
2.2	Kernspaltung	15
2.2.1	Spontane Kernspaltung	18
2.3	Neutronentransport	18
2.3.1	Neutronentransporttheorie	19
2.3.2	Kritikalität	20
2.3.3	Neutronendiffusionstheorie	21
2.4	Monte-Carlo-Methode	22
2.5	SCALE und KENO	23
2.5.1	Wirkungsquerschnitts-Bibliotheken in SCALE	23
2.5.2	CSAS5 & KENO-V.a	25
3	Berechnung Kritischer Massen	28
3.1	Vergleich mit Literaturwerten und der Theorie	28
3.1.1	Vergleich mit Glasstone (1972)	28
3.1.2	Vergleich mit dem Handbuch für Kritikalität (1970-73)	29
3.1.3	Vergleich mit der Neutronendiffusionstheorie	30
3.1.4	Vergleich mit anderen Veröffentlichungen	31
3.2	Transurane aus LWR-Brennelementen	32
3.2.1	Plutonium	34
3.2.2	Neptunium	37
3.2.3	Americium	38
3.2.4	Curium	42
3.2.5	Americium & Curium	44
3.3	Einfluss eines Neutronen-Reflektors	46
3.4	Einfluss der Spontanspaltungsrate	48

4 Zusammenfassung & Ausblick	51
Literaturverzeichnis	54
A Kritische Gleichung	57
B KENO Eingabedatei	60
C Mikroskopische Wirkungsquerschnitte	62
D Halbwertszeiten einiger Isotope	65

Kapitel 1

Einleitung

Otto Hahn und Fritz Straßmann beobachteten Ende 1938 erstmals eine durch Neutronen induzierte Spaltung von Uranatomen (Hahn und Straßmann, 1939). Die daraus resultierende Möglichkeit einer Energiegewinnung durch eine nukleare Kettenreaktion wurde schnell erkannt, da bei der Kernspaltung im Mittel mehr als zwei Neutronen entstehen und gleichzeitig ca. 200 MeV Energie freigesetzt werden. Die militärische Anwendung dieser Entdeckung wurde bereits am 16. Juli 1945 mit dem *Trinity*-Test demonstriert.

Seitdem wurden weltweit zehntausende Kernwaffen hergestellt und hunderte Kernkraftwerke gebaut. In den Kernreaktoren wird Uran in Brennelementen gespalten, um Energie zu erzeugen. Die anfallenden Spaltprodukte sind meist radioaktiv, weshalb die abgebrannten Brennelemente sicher gelagert werden müssen. Beispielsweise fielen 2009 in Deutschland 450 Tonnen radioaktiven Abfalls an (Die Welt, 2009). Außerdem prognostiziert das Bundesamt für Umwelt, Naturschutz, Bau und Reaktorsicherheit, dass nach Abschaltung aller deutschen Kernkraftwerke im Jahr 2022 etwa 10.500 Tonnen bestrahlte Brennelemente endgelagert werden müssen (Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz, Bau und Reaktorsicherheit, 2015). Die Bestände eines Teils dieses radioaktiven Abfalls werden gemäß des Nuklearen Nichtverbreitungsvertrages durch die Internationale Atomenergie-Organisation (IAEO) überwacht (NPT, 1977). Dies betrifft momentan hoch angereichertes Uran und Plutonium. Beides kann für den Bau von Kernwaffen verwendet werden, weshalb ein hohes Proliferationsrisiko vorliegt.

Im Jahr 1998 gab das amerikanische Energieministerium bekannt, dass sich nach ihren Erkenntnissen ebenfalls das Neptuniumisotop Np-237 und einige Americiumisotope für den Bau von Kernwaffen eignen (Hafner und Winkelmann, 2002). Ob Kernwaffen aus diesen Materialien gebaut und

getestet wurden, ist bisher nicht öffentlich bekannt gegeben worden. Im darauffolgenden Jahr, im September 1999, beschäftigte sich das *Board of Governors* der IAEA mit dem Proliferationsrisiko von Neptunium und Americium. Dabei war die abschließende Einschätzung der Mitgliedsstaaten, dass das Proliferationsrisiko von Neptunium und Americium wesentlich geringer ist als jenes von Uran oder Plutonium. Dennoch wurde entschieden, dass die Neptunium- und Americiumbestände der Mitgliedsstaaten von der IAEA überwacht werden sollen, sofern diese freiwillig ihre Kooperation anbietet (IAEO, 2004).

In dieser Arbeit soll das Proliferationsrisiko wichtiger Transurane eingeschätzt werden. Um zu prüfen, ob eine Kernwaffe aus diesen Elementen herzustellen wäre, wird deren *Kritische Masse* berechnet. Diese bezeichnet bei einer spezifischen Geometrie die Menge eines Elements, bei der gerade die durch Spaltung erzeugten Neutronen eine sich selbst erhaltende Kettenreaktion ermöglichen. Sie kann mit Hilfe von Neutronentransportmodellen bestimmt werden und gibt Aufschluss über die Größenordnung der benötigten Materialmenge zur Konstruktion einer simplen Kernwaffe.

Diese Überlegungen sind von aktuellem Interesse, weil an einer industriellen Einführung von *Partitionierung und Transmutation* (P&T) geforscht wird, was das Proliferationsrisiko potentiell erhöht, da der Brennstoffkreislauf im Zuge dessen erweitert wird. Während schon heute in Wiederaufbereitungsanlagen Plutonium aus den abgebrannten Brennelementen abgetrennt wird, um erneut in Kernreaktoren oder Kernwaffen verwendet zu werden, sollen bei P&T zusätzlich *Minore Actinoide* chemisch abgetrennt werden. Dieser Vorgang wird als *Partitionierung* bezeichnet. Zu den Minoren Actinoiden zählen insbesondere die Transurane Neptunium (Np), Americium (Am) und Curium (Cm). Diese abgetrennten Minoren Actinoide sollen genau wie Plutonium in Brennelementen eingesetzt werden, um sie in einem Kernreaktor zu verbrennen. Dabei werden die Minoren Actinoide in nicht weiter spaltbare Spaltprodukte umgewandelt. Dieser Prozess wird *Transmutation* genannt.

Durch einen iterativen Abtrennungs- und Verbrennungsvorgang erhoffen sich die Befürworter von P&T eine effizientere Nutzung des Brennstoffes und insbesondere eine Reduzierung der Menge des radioaktiven Abfalls und dessen Lagerungsdauer um mehrere Größenordnungen (Mueller und Abderrahim, 2010). Einige Studien stellen diesen Vorteil im Hinblick auf die Endlagerungsproblematik wiederum in Frage (Schmidt et al., 2013).

In dieser Arbeit wird der effektive Nutzen von P&T weitgehend ausgeklammert. Der Schwerpunkt liegt auf der Betrachtung des Proliferationsrisikos von Kernwaffen durch einen durch P&T veränderten Brennstoffkreislauf. Dieser muss erweitert werden, da neue Wiederaufbereitungsanlagen

notwendig sind, in denen die Partitionierung der Minoren Actinoide vorgenommen werden kann. Außerdem werden schnelle Kernreaktoren benötigt, um die Minoren Actinoide zu verbrennen. Ein um Abtrennungsanlagen und schnelle Reaktoren erweiterter Brennstoffkreislauf ist in Abbildung 1.1 dargestellt.

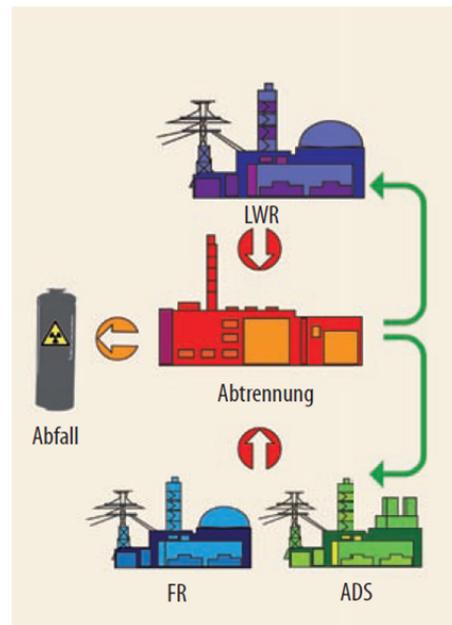


Abbildung 1.1: Darstellung eines bei *Partitionierung und Transmutation* um Abtrennungsanlagen und schnelle Reaktoren erweiterten Brennstoffkreislaufes. FR bezeichnet schnelle Brüter (Fast Reactor) und ADS bezeichnet beschleunigergetriebene Systeme (Accelerator Driven Systems) (Mueller und Abderrahim, 2010).

Schnelle Reaktoren sind notwendig, da es eines schnellen Neutronenspektrums bedarf, um bei der Spaltung der Actinoide Neptunium, Americium und Curium einen Neutronenüberschuss zur Erhaltung einer Kettenreaktion zu bekommen. Herkömmliche thermische Reaktoren wie Leichtwasserreaktoren reichen nicht aus. Dieser Umstand ist in Abbildung 1.2 am Beispiel des Americiumisotops Am-241 verdeutlicht. Unterhalb einer Energie von etwa 1 MeV liegt der mikroskopische Einfangwirkungsquerschnitt wesentlich über dem Spaltungswirkungsquerschnitt. Dieser überwiegt erst bei schnellen Neutronen, wodurch eine induzierte Kernspaltung in diesem Bereich deutlich wahrscheinlicher wird (Mueller und Abderrahim, 2010).

Während separierte Minoren Actinoide momentan nur in sehr geringen Mengen vorhanden sind, werden sie durch die industrielle Partitionierung

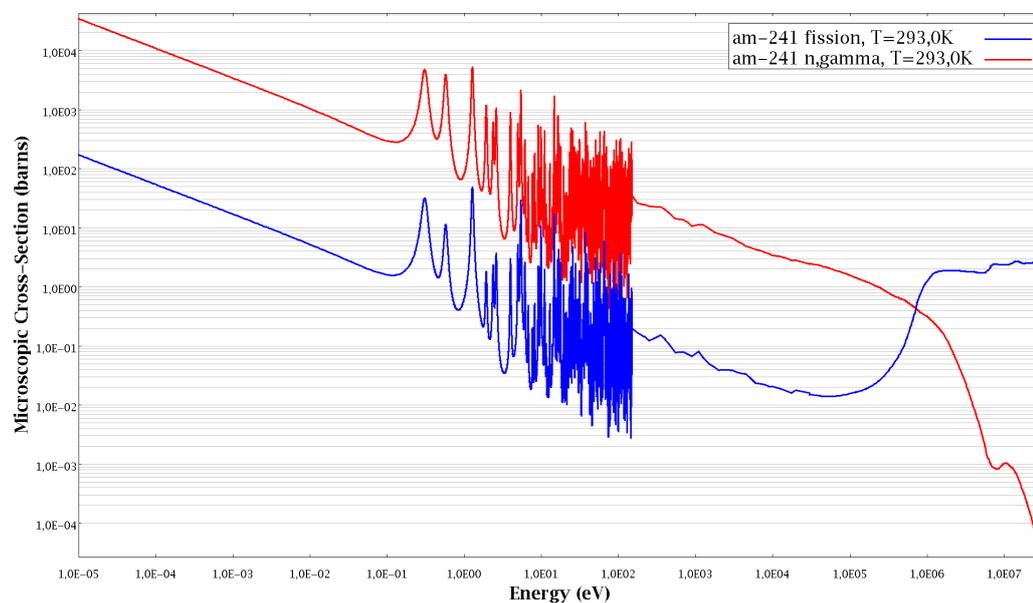


Abbildung 1.2: Mikroskopischer Spaltungs- und Einfangwirkungsquerschnitt von Am-241 bei einer Temperatur von 293 K. Die Daten sind der ENDF/B-VII Datenbank entnommen.

in größerer Menge als einzelne Elemente vorliegen. Diese Elemente werden in den Brennelementen mit einem gewissen Isotopenvektor erbrütet. Daher soll die Frage behandelt werden, ob sich bereits aus *Reaktor-Transuranen* eine simple Kernwaffe konstruieren lässt. Bei Reaktor-Transuranen findet eine weitere Bearbeitung des Elements, beispielsweise in Form einer Anreicherung eines bestimmten Isotops, nicht statt. Sofern keine Anreicherung nötig ist, hätte ein Staat, welcher P&T einsetzt, zum Bau einer Kernwaffe leichten Zugriff auf ein Transuran mit diesem Isotopenvektor. Das stellt ein Proliferationsrisiko dar.

Ähnliche Ansätze zur Abschätzung des Proliferationsrisikos wurden in den folgenden Arbeiten verfolgt: Magill und Perrani (1999) haben auf Basis von Kritischen Massen von Plutonium und Uran die Proliferationsaspekte von beschleunigergetriebenen Reaktoren behandelt. Dabei wurden die Kritischen Massen mit Hilfe von KENO-V.a aus SCALE 4.3 bestimmt. Hafner und Winkelmann (2002) besprechen die Gefahr des Missbrauches von Atommüll für den Bau von Kernwaffen und führen Literaturwerte für Kritische Massen einiger Neptunium- und Americiumisotope an. In einem technischen Bericht der IAEA (2004) werden neben dem Proliferationsrisiko die Implikationen von P&T auf die Behandlung des radioaktiven Abfalls erläutert. Allerdings werden keine konkreten Angaben zu

Kritischen Massen gemacht. Albright und Kramer (2005) behandeln die Separation von Neptunium und Americium und beziehen sich auf Literaturwerte für einige Isotope. Kang und von Hippel (2005) beschäftigen sich ebenfalls mit dem Proliferationsrisiko einer Wiederaufbereitung von Transuranen und haben Literaturwerte für Kritische Massen von einzelnen Plutonium-, Neptunium-, Americium- und Curiumisotopen mit eigenen MCNP-Berechnungen überprüft.

In diesen Arbeiten wurden zwar Kritische Massen von Transuranen berechnet, allerdings nur von einzelnen Isotopen. Transurane mit einem Isotopenvektor, wie er in Brennelementen vorzufinden ist, wurden nicht behandelt. Für diese Elemente lassen sich keine Kritischen Massen in der vorliegenden Literatur finden. Daher wurden diese im Verlauf dieser Bachelorarbeit berechnet.

In Kapitel 2 dieser Arbeit werden die kern- und neutronenphysikalischen Grundlagen eingeführt. Es wird unter anderem die Neutronentransportgleichung in Kapitel 2.3 erläutert. Zur Lösung dieser Gleichung ist in Kapitel 2.5 der Monte-Carlo-Code KENO als Teil der SCALE Programmumgebung beschrieben.

Mit diesem Code wurden die Kritischen Massen der Transurane Plutonium, Neptunium, Americium und Curium berechnet, um das Proliferationsrisiko dieser Elemente in freiliegender Form abzuschätzen zu können. Die berechneten Ergebnisse werden in Kapitel 3 präsentiert. Ein Vergleich von Ergebnissen mit Literaturwerten und der Theorie findet sich in Kapitel 3.1, bevor in Kapitel 3.2 die Ergebnisse der Kritischen Massen von Transuranen aus Leichtwasserreaktor-Brennelementen vorgestellt werden. Zum Abschluss wird in Kapitel 3.4 eine Analyse der Spontanspaltungsraten vorgenommen, um das militärische Einsatzpotential dieser abgetrennten Elemente bewerten zu können.

Kapitel 2

Theoretische Grundlagen

Die theoretischen Grundlagen dieser Arbeit umfassen kernphysikalische Betrachtungen und eine Einführung in das für die Berechnungen in Kapitel 3 genutzte Computerprogramm. Im Bereich der Kernphysik werden Begriffe wie *Wirkungsquerschnitt* und *Kernspaltung* erläutert, um im Folgenden einen Einblick in die Theorie des Neutronentransportes zu geben. Als genutztes Computerprogramm wird SCALE vorgestellt, welches den *Monte-Carlo-Code* KENO beinhaltet.

2.1 Kernphysikalische Grundlagen

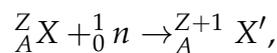
In diesem Abschnitt werden die wichtigsten Wechselwirkungen zwischen Atomkernen und Neutronen vorgestellt. Es wird eine Einführung in den für diese Arbeit besonders wichtigen Begriff des *Wirkungsquerschnitts* gegeben.

2.1.1 Kernreaktionen

Es kann zu vielfältigen Reaktionen kommen, wenn bewegte Teilchen mit Atomkernen wechselwirken. Diese bewegten Teilchen können Protonen, Neutronen, Photonen oder ganze Atomkerne sein. In dieser Arbeit werden Wechselwirkungen mit Neutronen betrachtet. Dabei kann es zu diversen unterschiedlichen Kernreaktionen zwischen Neutronen und Atomkernen kommen. Im Folgenden sind die wesentlichsten Wechselwirkungen beschrieben (Hansen, 2006):

- Die *elastische Streuung* (n, n) bezeichnet den Stoß von Neutron und Kern, bei welchem die kinetische Energie und der Impuls des Gesamtsystems erhalten sind. Der Kern bleibt beim Stoß im Grundzustand.

- Die *inelastische Streuung* ($n, n'+\gamma$) definiert einen Stoß, bei dem das Neutron in den Kern eindringt und ihn energetisch anregt. Ein Neutron wird wieder abgegeben, wobei dies unter energetischer Abregung zum Grundzustand passiert und ein γ -Quant emittiert wird.
- Beim *Neutroneneinfang* (n, γ) wird das Neutron vom Kern absorbiert und energetisch angeregt. Die Abregung zum Grundzustand findet unter Photonenemission statt. Das Reaktionsschema sieht im Allgemeinen folgendermaßen aus:



wobei ${}^1_0 n$ ein Neutron, A die Massenzahl und Z die Kernladungszahl des Atoms X bezeichnet.

- Die induzierte *Kernspaltung* (n, f) beschreibt die durch ein bewegtes Neutron induzierte Teilung eines Atomkerns in zwei oder mehr Spaltprodukte unter Emission von Neutronen. Sie wird in Kapitel 2.2 näher beleuchtet. Neben der induzierten Kernspaltung gibt es die spontane Kernspaltung, welche in Kapitel 2.2.1 behandelt wird.

2.1.2 Wirkungsquerschnitt

Als mikroskopischen Wirkungsquerschnitt σ bezeichnet man die Wahrscheinlichkeit der Wechselwirkung von Kern und Teilchen. Dabei hat der Wirkungsquerschnitt die Dimension einer Fläche.

Die Anzahl der Kernwechselwirkungen kann mit der Beziehung

$$\text{Anzahl der Interaktionen pro Sekunde} = \sigma I n_a \quad (2.1)$$

bestimmt werden. Dabei bezeichnet I die Teilchenstromdichte und n_a die Dichte der Atom im Medium. Daraus folgt, dass innerhalb eines Mediums bei konstanter Teilchenstromdichte der Wirkungsquerschnitt σ ein Faktor ist, mit welchem die Wechselwirkungswahrscheinlichkeit pro Volumen des Mediums beschrieben werden kann (Lamarsh und Baratta, 2001).

Um sich die Bedeutung des Wirkungsquerschnittes zu verdeutlichen, kann man ihn geometrisch interpretieren. Ein Atomkern hat einen Radius in der Größenordnung von 1×10^{-12} cm, was eine Querschnittsfläche im Bereich von 1×10^{-24} cm² ergibt. Dieser Querschnittsbereich wäre geometrisch betrachtet ein Stoßwirkungsquerschnitt. Durch quantenmechanische Effekte kann der Wert der Wirkungsquerschnitte jedoch deutlich abweichen (Hansen, 2006). Oftmals wird der Wirkungsquerschnitt in der Einheit

barn angegeben. Für diese Einheit gilt

$$1 \text{ barn} = 10^{-24} \text{ cm}^2.$$

Für jede Art der Kernwechselwirkung kann ein eigener Wirkungsquerschnitt bestimmt werden (Lamarsh und Baratta, 2001). Die wichtigsten Wirkungsquerschnitte sind der elastische und der inelastische Streuungswirkungsquerschnitt, σ_e bzw. σ_i , der Einfangwirkungsquerschnitt σ_c und der Spaltungswirkungsquerschnitt σ_f . Die Summe der Wirkungsquerschnitte, bei denen eine Neutronenabsorption stattfindet, wird als Absorptionswirkungsquerschnitt σ_a bezeichnet:

$$\sigma_a = \sigma_c + \sigma_f + \dots$$

Ähnlich wird der totale Streuungswirkungsquerschnitt σ_s als

$$\sigma_s = \sigma_e + \sigma_i$$

definiert. Die Summe aller möglichen Wirkungsquerschnitte wird als totaler Wirkungsquerschnitt σ_t bezeichnet:

$$\sigma_t = \sigma_s + \sigma_a.$$

Im Allgemeinen ist mit σ der *mikroskopische* oder *atomare* Wirkungsquerschnitt bezeichnet, welcher die Wechselwirkungswahrscheinlichkeit unabhängig von der Atomanzahldichte n_a angibt. Möchte man Faktoren wie die Dichte und die Temperatur des Stoffes einbeziehen, nutzt man den *makroskopischen* Wirkungsquerschnitt, welcher über die Beziehung

$$\Sigma = \sigma n_a \tag{2.2}$$

definiert ist.

Von Interesse ist weiterhin die *mittlere freie Weglänge* μ , welche die durchschnittliche Weglänge beschreibt, die ein Teilchen zurücklegt, bevor eine Wechselwirkung mit einem Kern stattfindet. Sie hängt unmittelbar mit dem makroskopischen Wirkungsquerschnitt über

$$\mu = \frac{1}{\Sigma} = \frac{1}{\sigma n_a} \tag{2.3}$$

zusammen.

Im Anhang C finden sich Abbildungen der mikroskopischen Streuungswirkungsquerschnitte der für diese Arbeit wichtigen Isotope. Im mittleren Energiebereich sind die *Resonanzlinien* bei den meisten Isotopen deutlich

zu erkennen. Diese entstehen, da Neutronen mit einer höheren Wahrscheinlichkeit absorbiert werden, wenn ihre Energie gerade der Energiedifferenz zwischen zwei angeregten Zuständen des zu entstehenden Kerns entspricht (Oldekop, 1975). Nur ein Teil dieses Bereiches ist durch experimentelle Daten aufgelöst, da einige der Linien zu dicht aneinander liegen. Für diesen nicht-aufgelösten Bereich existieren gemittelte Werte.

2.2 Kernspaltung

Bei der Kernspaltung kommt es zur Teilung eines Atomkerns in zwei oder mehr Spaltprodukte. Die Spaltung kann dabei spontan auftreten oder durch eine Reaktion mit einem anderen Teilchen ausgelöst werden. Im Kernreaktor werden die Spaltungen durch Neutronen induziert. Bei einer induzierten Kernspaltung absorbiert der Kern zunächst ein Neutron. Es bildet sich ein so genannter *Zwischenkern* mit einer um eins höheren Massenzahl und einer um die Energie des absorbierten Neutron und der Bindungsenergie des Neutron in dem Zwischenkern höheren Gesamtenergie. Dieser Zwischenkern hat eine sehr kurze Lebenszeit wodurch es zu einer Generationszeit im Bereich von 10^{-8} Sekunden kommt (Serber, 1992).

Wie in Abbildung 2.1 zu sehen ist, sinkt die Bindungsenergie pro Nukleon für Kerne mit einer Massenzahl größer als ungefähr 60. Wenn ein besonders schwerer Kern, wie beispielsweise Uran, in zwei oder mehr leichte Kerne spaltet, wird Energie frei. Diese Energiedifferenz wird als *Massendefekt* bezeichnet.

Bei dem Zerfall des Uran-Zwischenkerns in mehrere Spaltprodukte werden meist zwei bis drei Neutronen emittiert. Diese Spaltneutronen können weitere Kernspaltungen auslösen. Es entsteht eine Kettenreaktion von Kernspaltungen, die sich selbst erhalten kann. Um diese Kettenreaktion zu kontrollieren, muss im Reaktor sichergestellt werden, dass die Anzahl der Neutronen im thermischen Bereich konstant bleibt. Es müssen daher genauso viele Neutronen durch Spaltungen produziert und moderiert werden, wie Neutronen durch Absorption und Ausfluss aus dem Reaktor verloren gehen.

Neben diesen *prompten Neutronen*, die direkt bei der Spaltung des Kerns emittiert werden, existieren *verzögerte Neutronen*, welche bei dem Zerfall verschiedener Spaltprodukte emittiert werden. Die Halbwertszeit für deren Emission liegt dabei zwischen 0,23 und 55,72 Sekunden bei U-235 (Emen-dörfer und Höcker, 1969). Diese Neutronen sind für die Regelung des Kernreaktors notwendig. Um die sich selbst erhaltende Kettenreaktion im Reaktor steuern zu können, wird der Reaktor zu über 99 % mit spontanen

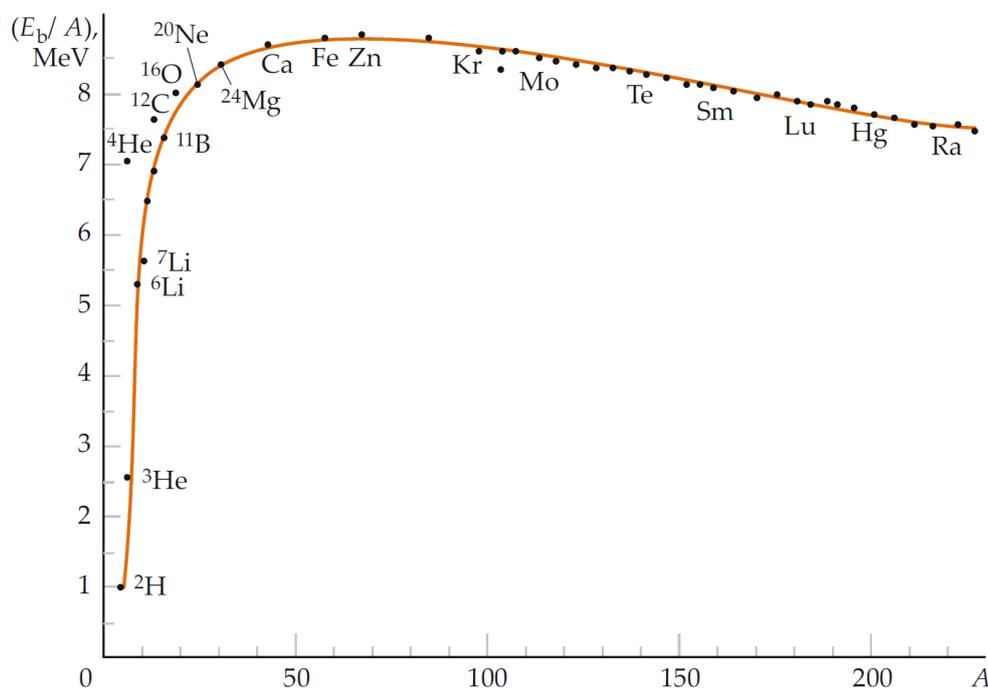


Abbildung 2.1: Bindungsenergie E_b pro Nukleon in Abhängigkeit von der Massenzahl A (Tipler und Mosca, 2015).

Neutronen und mit je nach Spaltstoff unter 1 % verzögerten Neutronen betrieben. Dadurch, dass die verzögerten Neutronen erst einige Sekunden nach der Neutronenabsorption emittiert werden, kann die Neutronenzahl im Reaktor kontrolliert werden. Würde der Reaktor nur mit spontanen Neutronen betrieben werden, müsste die Steuerung innerhalb von Millisekunden durchgeführt werden, da es zu einem sehr schnellen exponentiellen Wachstum der Neutronen im Reaktor kommt. Dies ist technisch nicht machbar.

Die Energieverteilung der emittierten Spaltneutronen bei der spontanen Spaltung von Cf-252 ist in Abbildung 2.2 dargestellt. Es ist zu erkennen, dass die wahrscheinlichste Neutronenenergie ca. 1 MeV beträgt, während die mittlere Energie der Spaltneutronen bei 2 MeV liegt. Neutronen oberhalb von 10 keV werden als *schnelle Neutronen* bezeichnet, unterhalb von 0,4 eV als *thermische Neutronen* (Hansen, 2006). Viele Reaktortypen, wie Leichtwasserreaktoren, basieren auf Kettenreaktionen mit thermischen Neutronen, weil bei U-235 der Spaltungswirkungsquerschnitt im thermischen Bereich um mehrere Größenordnungen höher ist als im schnellen Bereich. Da wesentlich mehr emittierte Neutronen eine Energie im schnel-

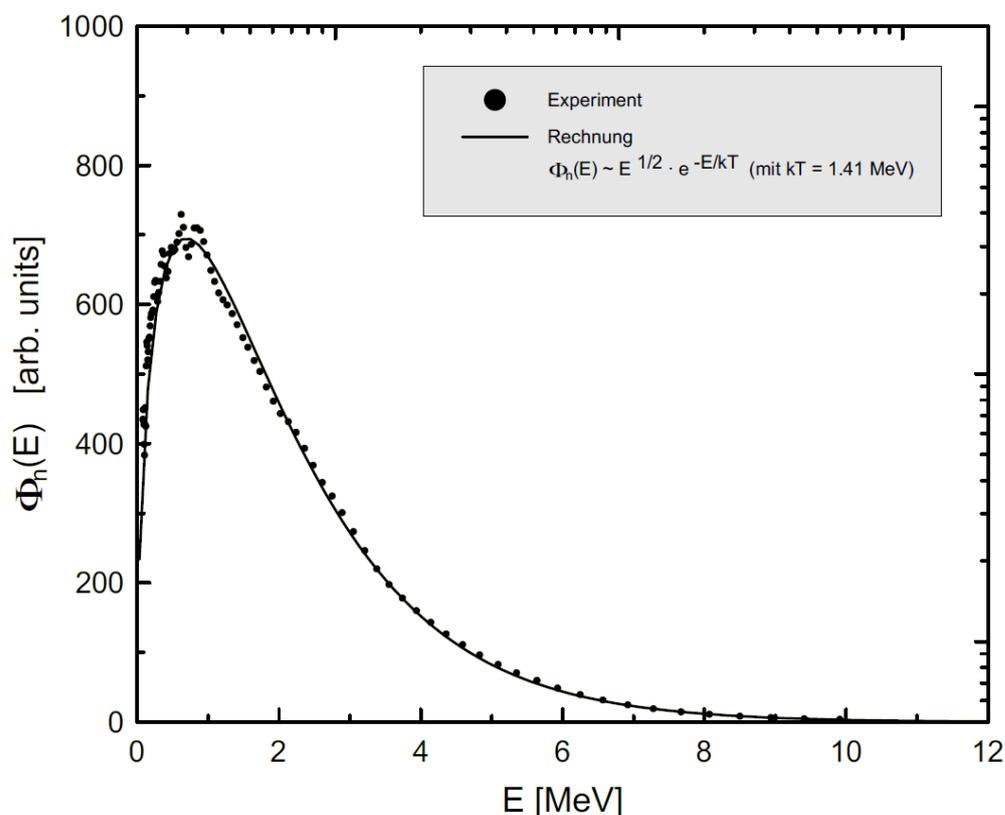


Abbildung 2.2: Energieverteilung schneller Spaltneutronen (Spaltspektrum einer spontanspaltenden Cf-252 Neutronenquelle) (Hansen, 2006).

len Bereich haben, werden sie im Reaktor *thermalisiert*. Dies geschieht durch elastische Streuungen an Atomkernen, welche schnelle Neutronen auf thermischen Energien abbremsen. Für dieses so genannte *Moderatormaterial* werden Elemente mit leichten Atomkernen genutzt, bei denen es zu einem hohen Energieverlust pro Stoß kommt. Hierfür wird in Kernreaktoren oftmals Wasser oder Kohlenstoff verwendet.

Für die Funktionsweise von Kernwaffen sind die schnellen Neutronen von Interesse. Eine simple Kernwaffe wird ohne Moderatormaterial zur Explosion gebracht. Dies ist praktisch umsetzbar, da Pu-239 und U-235, beides häufig und in hoher Konzentration in Kernwaffen verwendete Materialien, einen ausreichend hohen Spaltwirkungsquerschnitt im energiereichen, schnellen Bereich haben und bei einer Spaltung meist Neutronen in diesem Energiebereich emittiert werden.

2.2.1 Spontane Kernspaltung

Eine Kernspaltung kann bei schweren Kernen durch ein absorbiertes Neutron ausgelöst werden, es kann aber auch zu einer spontanen Spaltung ohne Einwirkung von außen kommen. Bei einem stabilen Kern wird die spontane Kernspaltung durch eine Potentialbarriere verhindert. Mit einer gewissen Wahrscheinlichkeit kann dabei der quantenmechanische Tunneleffekt auftreten, wobei ein Teil des Kerns durch diese Potentialbarriere tunnelt. Es kommt zur spontanen Spaltung. Die spontane Spaltung ist nicht mit dem Alphazerfall zu verwechseln. Da beim Alphazerfall nur ein sehr kleiner Teil des Kerns, ein Helium-4-Kern, tunnelt, ist diese Art des Zerfalls sehr viel wahrscheinlicher als eine spontane Kernspaltung (Emendörfer und Höcker, 1969). Um zu bestimmen, wie viele spontane Spaltungen bei einem Isotop auftreten, werden die folgenden Überlegungen angestellt.

Für einen exponentiellen Zerfall ist die mittlere Lebensdauer τ eines Atoms mit

$$\tau = \frac{1}{\lambda} \quad (2.4)$$

definiert. Die totale Zerfallskonstante λ ist die Summe einzelner Zerfallskonstanten λ_i für unterschiedliche Zerfallskanäle und ergibt sich aus der Halbwertszeit $T_{1/2}$ über

$$\lambda = \frac{\ln(2)}{T_{1/2}}. \quad (2.5)$$

Die Spontanspaltungsrate lässt sich aus der *Spontanspaltungshalbwertszeit* $T_{1/2, SF}$ berechnen. Diese Halbwertszeit bezieht sich nur auf die spontanen Spaltungen und berechnet sich über das *Spontanspaltungsverzweigungsverhältnis* Ω_{SF} mit

$$T_{1/2, SF} = \frac{T_{1/2}}{\Omega_{SF}}. \quad (2.6)$$

Die Spontanspaltungsrate N_{SF} , d. h. die Anzahl der Spontanspaltungen pro Gramm und Sekunde, ist mit der mittleren Lebensdauer bestimmbar:

$$N_{SF} = N_a \cdot \frac{1}{\tau_{SF}} = N_a \cdot \frac{\ln(2)}{T_{1/2, SF}}, \quad (2.7)$$

wobei N_a die Anzahl der Atome in einem Gramm angibt. Diese Rechnung wird in Kapitel 3.4 angewandt.

2.3 Neutronentransport

In diesem Abschnitt wird der Transport von Neutronen innerhalb eines endlichen homogenen Mediums behandelt. Es wird eine Einführung in

die *Neutronentransporttheorie* gegeben, mit welcher der für diese Arbeit zentrale Begriff der *Kritikalität* erklärt wird. Als Vereinfachung der Neutronentransporttheorie wird die Neutronendiffusionstheorie beschrieben, mit welcher es möglich ist, analytisch Berechnungen zur Kritikalität von einfachen Systemen anzustellen.

2.3.1 Neutronentransporttheorie

Ludwig Boltzmann formulierte im Rahmen der kinetischen Gastheorie eine Bilanzgleichung für Teilchendichten im Phasenraum: die Boltzmann-Gleichung. Eine ähnliche Bilanzgleichung kann für Neutronen im spaltbaren Material aufgestellt werden. Im Gegensatz zur Gastheorie können hier äußere Kräfte, die auf die Neutronen wirken, und Stöße unter den Neutronen vernachlässigt werden. Auf der anderen Seite müssen andere Reaktionen, wie das Entstehen von Neutronen durch Kernspaltung, beachtet werden. Eine detaillierte Erklärung der Neutronentransporttheorie, -gleichung und ihrer Lösungsverfahren findet sich in Emendörfer und Höcker (1969).

Um die Neutronenbilanz innerhalb eines Mediums zu beschreiben, kann allgemein folgende Bilanzgleichung aufgestellt werden:

$$\text{Gewinne} - \text{Verluste} = \text{zeitl. Änderung der Neutronenflussdichte.} \quad (2.8)$$

Gewonnen werden Neutronen durch Kernspaltung und durch das Eintreten in das betrachtete Volumen- oder Energieelement aus anderen Elementen. Zu Verlusten kommt es, wenn Neutronen das Medium verlassen oder wenn Neutronen mit Atomkernen wechselwirken. Bei diesen Kernreaktionen kann es zur Absorption des Neutrons oder Streuung in nicht betrachtete Raumwinkel- oder Energieintervalle kommen.

Die elementare Größe in der Transporttheorie ist die *Neutronenflussdichte* Φ :

$$\Phi(\vec{r}, E, \vec{\Omega}, t) dE d\vec{\Omega} dV = v_n(E) n_n(\vec{r}, E, \vec{\Omega}, t) dE d\vec{\Omega} dV, \quad (2.9)$$

wobei $\vec{\Omega}$ die Neutronenflugrichtung und $v_n(E)$ den Betrag der Geschwindigkeit der Neutronen bezeichnen; $n_n(\vec{r}, E, \vec{\Omega}, t) dE d\vec{\Omega} dV$ beschreibt die Dichte der Neutronen, die im Volumenelement dV am Ort \vec{r} zum Zeitpunkt t , im Energieelement dE bei E und im Richtungselement $d\vec{\Omega}$ bei $\vec{\Omega}$ liegen.

Ein Volumenelement des Phasenraumes werde mit $dq = dE d\vec{\Omega} dV$ bezeichnet. Damit ergibt sich für die zeitabhängige Bilanzgleichung aus Relation 2.8 die Beziehung

$$\text{Gewinne} - \text{Verluste} = \frac{1}{v_n(E)} \frac{\partial \Phi(\vec{r}, E, \vec{\Omega}, t)}{\partial t} dq. \quad (2.10)$$

Die verschiedenen Möglichkeiten Neutronen zu gewinnen oder zu verlieren können in der Bilanzgleichung betrachtet werden. Daraus ergibt sich die *Neutronentransportgleichung*:

$$\begin{aligned}
& + \underbrace{dq \int_{E'} \int_{\vec{\Omega}'} \Sigma_s(E', \vec{\Omega}' \rightarrow E, \vec{\Omega}) \Phi(r, E', \vec{\Omega}') dE' d\vec{\Omega}'}_{\text{Gewinne durch Streuung aus allen Intervallen } dE' d\vec{\Omega}' \text{ bei } (E', \vec{\Omega}') \text{ in das Intervall } dE d\vec{\Omega} \text{ bei } (E, \vec{\Omega})} \\
& + \underbrace{\frac{dq}{4\pi} \chi(E) \int_{E'} \int_{\vec{\Omega}'} \Sigma_f(E') \nu(E') \Phi(\vec{r}, E', \vec{\Omega}') dE' d\vec{\Omega}'}_{\text{Gewinn durch erzeugte Spaltneutronen im Phasenraumelement } dq} \\
& - \underbrace{\vec{\Omega} \cdot \text{grad } \Phi(\vec{r}, E, \vec{\Omega}) dq}_{\text{Verlust durch Ausfluss aus dem Phasenraumelement } dq} \\
& - \underbrace{\Sigma_t \cdot \Phi(\vec{r}, E, \vec{\Omega}) dq}_{\text{Verluste durch Kernreaktionen}} \\
& = \frac{1}{v_n(E)} \frac{\partial \Phi(\vec{r}, E, \vec{\Omega}, t)}{\partial t} dq.
\end{aligned} \tag{2.11}$$

Die Bedeutung der einzelnen Komponenten der Gleichung sind unterhalb der Terme erläutert. Σ_t , Σ_s und Σ_f bezeichnen jeweils den makroskopischen totalen Wirkungsquerschnitt, den Streuungs- und den Spaltungswirkungsquerschnitt. Die mittlere Anzahl der pro Spaltprozess freigesetzten Neutronen wird mit ν angegeben. Die Richtungsverteilung der Spaltneutronen wird als isotrop angenommen, weshalb auf das Raumwinkelelement $d\vec{\Omega}$ der Anteil $d\vec{\Omega}/4\pi$ entfällt. $\chi(E)$ beschreibt das Energiespektrum der erzeugten Spaltneutronen, welches als unabhängig von der Energie E' der die Spaltung auslösenden Neutronen angenommen wird (Emendörfer und Höcker, 1969).

2.3.2 Kritikalität

Die räumliche Änderung der Neutronenflussdichte ist von besonderem Interesse, da Neutronen, die das Medium durch die Oberfläche verlassen, nicht mehr zum Erhalt der Kettenreaktion beitragen können. Somit lässt sich mit der Neutronentransporttheorie die Kritische Masse eines Mediums berechnen. Dabei werden zwei gegenläufige Effekte betrachtet: Die Anzahl der Neutronen, die innerhalb des spaltbaren Mediums erzeugt werden und die Anzahl der Neutronen, die das Medium verlassen oder absorbiert werden. Sobald eine bestimmte Geometrie ausreichend Neutronen innerhalb

des Mediums erzeugt, um den Neutronenausfluss zu kompensieren, kann sich die Kettenreaktion innerhalb des Mediums selbst erhalten. Man spricht von einer Kritischen Geometrie.

Der Multiplikationsfaktor k beschreibt die *Kritikalität* einer geometrischen Anordnung mit Spaltmaterialien. Der Multiplikationsfaktor ist durch die Zahl der Neutronen in einer Generation im Verhältnis zur Zahl der Neutronen in der vorherigen Generation definiert:

$$k = \frac{N_{n,i}}{N_{n,i-1}}, \quad (2.12)$$

wobei i der Generationsindex ist.

Überwiegen in der Anordnung die Neutronenverluste ($k < 1$), spricht man von einer *unterkritischen* Anordnung. In diesem Fall kann keine selbst erhaltende Kettenreaktion existieren. Wenn die Neutronenverluste exakt durch die Neutronengewinne ausgeglichen werden ($k = 1$), nennt man die Anordnung *kritisch*. Dieser Zustand ist in einem Kernreaktor zu erhalten. Sollten die Neutronengewinne die Verluste übertreffen ($k > 1$), kommt es zu einer *überkritischen* Anordnung. Dies ist im Fall eines Kernreaktors zu vermeiden, da sich hier die Kettenreaktion und die Leistung des Reaktors nicht mehr kontrollieren lassen. Für eine Atomwaffe ist genau dieser Zustand notwendig: Durch die exponentiell steigende Neutronenproduktion durch Kernspaltung wird eine große Menge an Energie frei und es kommt zur Explosion.

Die Kritische Masse hängt von Parametern wie der Dichte des Spaltmaterials, dem Spaltwirkungsquerschnitt, der mittleren Anzahl der erzeugten Neutronen pro Spaltprozess und dem Energiespektrum der Neutronen ab (Reed, 2015).

2.3.3 Neutronendiffusionstheorie

Für die meisten Geometrien ist keine Lösung der Transportgleichung bekannt. Selbst für sehr simple Geometrien ist die Neutronentransportgleichung nur schwer analytisch zu lösen. Um die Bilanzgleichung einfacher analytisch lösen zu können, wurde historisch zu Beginn des Manhattan-Projektes auf die *Neutronendiffusionstheorie* zurückgegriffen. Dabei werden einige Vereinfachungen eingeführt. Es wird von einem homogenen Medium ausgegangen, in welchem es zu isotroper Streuung kommt. Auch wird angenommen, dass sich die Flussdichte über wenige mittlere freie Weglängen nicht verändert. Kommt es zu größeren Flussdichteänderungen innerhalb des Mediums, versagt die Diffusionstheorie. Bei starken Schwankungen an Grenzflächen (u. a. an Steuerstäben, an Neutronenquellen oder

an Hohlräumen) sollte auf die präzisere Transporttheorie zurückgegriffen werden (Emendörfer und Höcker, 1969). Für den einfachsten Fall einer Vollkugel im unendlichen homogenen Medium liefert sie dennoch mit der Transporttheorie vergleichbare Ergebnisse, wie in Kapitel 3.1.3 zu sehen ist.

Die verschiedenen Möglichkeiten Neutronen zu gewinnen oder zu verlieren können analog zu Gleichung 2.8 in einer Bilanzgleichung betrachtet werden. Mit der Annahme, dass das Volumen aus reinem Spaltmaterial besteht, ergibt sich für die monoenergetische *Neutronendifusionsgleichung*:

$$\begin{aligned}
 & + \underbrace{\Sigma_f v \Phi(\vec{r}, t) dV}_{\text{Gewinn durch erzeugte Spaltneutronen im Volumen } dV} \\
 & - \underbrace{- D \cdot \text{grad } \Phi(\vec{r}, t) dV}_{\text{Verlust durch Ausfluss aus dem Volumen}} \\
 & - \underbrace{\Sigma_a \Phi(\vec{r}, t) dV}_{\text{Verlust durch Neutronenabsorption}} \\
 & = \frac{dV}{v_n} \frac{\partial \Phi(\vec{r}, t)}{\partial t},
 \end{aligned} \tag{2.13}$$

wobei D die ortsunabhängige Diffusionskonstante und Σ_a den makroskopischen Absorptionswirkungsquerschnitt bezeichnen. Der negative zweite Term ergibt sich aus dem *Ersten Fick'schen Gesetz* (Emendörfer und Höcker, 1969).

Aus historischem Interesse ist im Anhang A ein Herleitung der Kritische Gleichung für eine Vollkugel im homogenen Medium aus der monoenergetischen Diffusionstheorie beschrieben.

2.4 Monte-Carlo-Methode

Bei dreidimensionalen Anordnungen mit unterschiedlichen Materialien und vielen Energiebereichen kann eine Näherung der Transportgleichung 2.11 sehr aufwendig sein. Eine explizite Lösung kann nur für stark vereinfachte Systeme, wie beispielsweise Kugeln in einem unendlichen homogenen Medium, gefunden werden. Man greift daher auf statistische oder numerische Lösungsverfahren zurück. In dieser Arbeit wurde als computergestütztes statistisches Lösungsverfahren die Monte-Carlo-Methode genutzt (Emendörfer und Höcker, 1969).

Um einen Wert mittels der Monte-Carlo-Methode auszurechnen, werden Zahlen zufällig ausgewählt. In dem hier betrachteten Fall des Neutronentransportes wird eine große Zahl von Neutronen simuliert. Dabei wird

der Verlauf eines Neutrons zwischen Emission bei der Spaltung bis zur Absorption oder bis zum Verlassen der Geometrie verfolgt. Dies geschieht, indem die physikalischen Eigenschaften, wie die Flugrichtung und Energie des Neutrons, die zurückgelegte Strecke bis zur nächsten Kernwechselwirkung und deren Art der Kernwechselwirkung mit Hilfe von Zufallszahlen festgelegt werden. Bei der Auswahl der Zufallszahlen werden die physikalischen Verteilungsfunktionen für jede Art von Vorgang einbezogen. Wird dieses Verfahren für sehr viele Neutronen durchgeführt, gewinnt man eine statistische Stichprobe, welche das System mit einer gewissen Wahrscheinlichkeit repräsentiert. Auf diese Weise kann eine Aussage über den mittleren Ort, die mittlere Energie und die mittlere Flugrichtung und -strecke der Neutronen getroffen werden (Emendörfer und Höcker, 1969). Mit diesen Informationen über das kernphysikalische System kann eine numerische Lösung der Transportgleichung bestimmt werden.

2.5 SCALE und KENO

Die SCALE Programmumgebung wird seit 1980 vom Oak Ridge National Laboratory, kurz ORNL, entwickelt und betreut. Mit dem Programm lassen sich plattformunabhängig kernphysikalische Systeme modellieren und simulieren. Die Umgebung enthält diverse durch Experimente verifizierte Programmschnittstellen zur Berechnung von beispielsweise Kritikalitätssicherheit, Reaktorphysik oder Strahlungsabschirmung. Insgesamt umfasst SCALE 89 Berechnungsmodule inklusive drei verschiedener Monte-Carlo-Codes zum Lösen der Transportgleichung. Weiterhin sind aktuelle kernphysikalische Datenbanken, wie die ENDF/B-Datenbanken, und problemabhängige Verarbeitungsmodulare zur Berechnung von Eigenschaften neutronenphysikalischer Systeme enthalten. Dabei kann die Energie der Neutronen als kontinuierlich oder als in Gruppen eingeteilt behandelt werden. Eine grafische Oberfläche kann den Nutzer bei der Anwendung von SCALE auf Windows-Systemen unterstützen (Scale, 2011).

2.5.1 Wirkungsquerschnitts-Bibliotheken in SCALE

SCALE enthält mehrere Wirkungsquerschnittsbibliotheken. Die meisten sind Multigruppenbibliotheken, einige kontinuierliche Bibliotheken. Mit kontinuierlichen Bibliotheken sind Wirkungsquerschnittsbibliotheken gemeint, die kontinuierlich über das gesamte Energiespektrum eines Neutrons punktweise Werte beinhalten. Diese sind die umfangreichsten Wirkungsquerschnittsbibliotheken, die in SCALE vorhanden sind. Bei einer

Multigruppenbibliothek sind die Neutronenenergien in Energieintervalle eingeteilt. Es wird in dieser Datenbank ein gemittelter Wirkungsquerschnittswert für jede Energiegruppe gespeichert. Diese Gruppeneinteilung wird vorgenommen, da sie im Vergleich zu einer kontinuierlichen Bibliothek signifikant Rechenzeit spart.

In dieser Arbeit wurde die 238-Multigruppen-Bibliothek genutzt. Diese enthält 148 schnelle und 90 thermische Gruppen. Thermische Gruppen bezeichnen dabei Gruppen mit Neutronenenergien unterhalb von 3 eV. Viele Kerne in diesen Bibliotheken haben Resonanzdaten für den aufgelösten Resonanzbereich und Bondarenkofaktoren für den nicht-aufgelösten Bereich gespeichert. Mit Hilfe der Bondarenkofaktoren können die Wirkungsquerschnitte im nicht-aufgelösten Bereich angenähert werden.

Neben den gemittelten Wirkungsquerschnitten für jede Energiegruppe beinhaltet die Bibliothek eine Gewichtungsfunktion, um innerhalb der jeweiligen Gruppe den Wirkungsquerschnitt anpassen zu können. Diese Gewichtungsfunktion besteht aus folgenden Einzelspektren:

1. Maxwellspektrum von 10^{-5} bis 0,125 eV
2. 1/e-Spektrum von 0,125 bis 67,4 keV
3. Spaltspektrum bzw. Watt-Verteilung von 67,4 keV bis 10 MeV
4. 1/e-Spektrum von 10 bis 20 MeV.

Diese Funktion ist in Abbildung 2.3 dargestellt.

Neben diesen 238-Gruppen-Bibliotheken gibt es weitere Multigruppenwirkungsquerschnittsbibliotheken in SCALE. Die unterschiedlichen Bibliotheken eignen sich für verschiedene Anwendungen. Einige sind besonders gut geeignet für die Analyse von Leichtwasserreaktorsystemen oder zur Modellierung von Strahlungsabschirmung. In dieser Arbeit wurde die 238-Gruppen-Bibliothek genutzt, weil sie die höchste Anzahl von Gruppen im schnellen Neutronenspektrum aufweist. Dieser Energiebereich ist für die Simulation von kritischen Massen von Vollkugeln aus Spaltmaterial besonders interessant, da es hier kaum zu einer Moderation der Neutronen kommt.

Die Bibliotheken enthalten für jedes Isotop Daten für bis zu fünf verschiedene Temperaturen: 239 K, 600 K, 900 K, 1200 K und 2400 K. Sollte die Temperatur des simulierten Systems zwischen diesen Temperaturen liegen, wird bei den Multigruppenbibliotheken interpoliert, wobei die Dopplerverbreiterung berücksichtigt wird. Bei der Anwendung einer kontinuierlichen Bibliothek kommt es zu keiner Interpolation. Hier wird der Temperaturwert

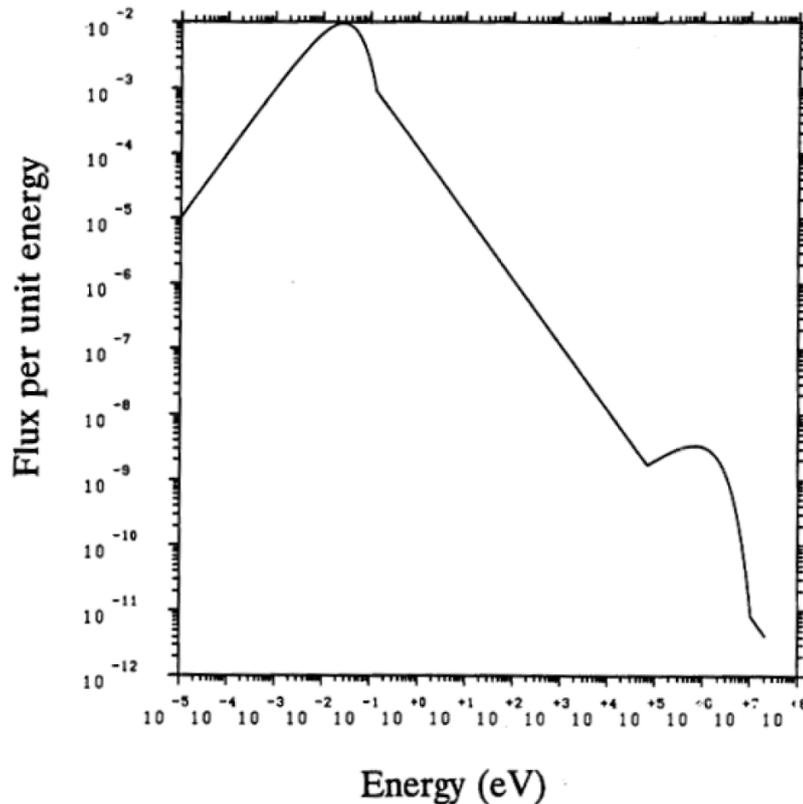


Abbildung 2.3: Gewichtungsfunktion für die 238-Gruppen-Wirkungsquerschnittsbibliothek (Scale, 2011).

verwendet, welcher am nächsten an der Temperatur des Problems liegt. In dieser Arbeit wurde bei fast allen Simulationen von einer Temperatur des Systems von 293 K ausgegangen.

Alle Bibliotheken wurden durch diverse Kritikalitätsexperimente und Messungen an Reaktorexperimenten verifiziert (Scale, 2011).

2.5.2 CSAS5 & KENO-V.a

CSAS5 (Criticality Safety Analysis SequenS) für KENO-V.a beschreibt eine Sequenz von Modulen, die in SCALE 6.1 ausgeführt werden kann. Mittels dieser Sequenz wird eine problemabhängige Wirkungsquerschnittsbibliothek erstellt, mit welcher der Neutronenmultiplikationsfaktor des Systems berechnet werden kann (Scale, 2011).

Wenn CSAS5 mit einer Multigruppenwirkungsquerschnittsbibliothek und dem Modul CENTRM aufgerufen wird, werden Module in folgender

Reihenfolge ausgeführt:

CSAS5 → CRAWDAD → BONAMI → WORKER → CENTRM
→ PMC → WORKER → KENO-V.a.

Diese Module haben die folgenden Aufgaben:

- **CRAWDAD** (Code to Read And Write DA for Discretized solution) sucht die notwendigen Wirkungsquerschnittsbibliotheken für kontinuierliche Energien für alle Materialien im System heraus. Diese werden von CENTRM & PMC weiter verwendet.
- **BONAMI** (BONdarenko AMpx Interpolator) nutzt die Bondarenko-Methode, um Wirkungsquerschnitte im Resonanzbereich zu berechnen. In einem Teil des Resonanzbereiches liegen die Resonanzen so eng, dass eine experimentelle Auflösung nicht möglich ist. Daher muss entweder die Nordheim-Integral-Näherung oder die Bondarenko-Methode angewandt werden, um die Wirkungsquerschnitte in diesem Bereich anzunähern. Die theoretischen Grundlagen beider Methoden sind in Scale (2011) erklärt.
- **CENTRM & PMC** interpolieren die Wirkungsquerschnittsdaten für die Temperatur des Systems. Die Bibliothek wird an jede mögliche Temperatur angepasst, wobei die Dopplerverbreiterung beachtet wird.
- **WORKER** erstellt eine Multigruppenbibliothek aus den bisher berechneten Wirkungsquerschnittsdaten. Diese wird abschließend in KENO verwendet.
- **KENO-V.a** ermöglicht es dem Nutzer, den Neutronenmultiplikationsfaktor eines Systems aus Spaltmaterialien mittels des Monte-Carlo-Verfahrens zu berechnen. Dabei wird die erstellte Wirkungsquerschnittsbibliothek verwendet.

Um den Neutronenmultiplikationsfaktor zu bestimmen, wurde in dieser Arbeit das Programm CSAS5S (Criticality Safety Analysis Sequence Search) in SCALE genutzt. CSAS5S ist eine um eine Suchfunktion erweiterte Version von CSAS5. In diesem Programm kann ein System aus Spaltmaterialien modelliert werden. Dabei können einige Parameter des Systems innerhalb vorgegebener Grenzen als variabel deklariert werden. Diese variablen Größen können die Geometrie des Systems oder die Zusammensetzung des Spaltmaterials betreffen. Als Ziel der Suchfunktion wird ein

bestimmter Neutronenmultiplikationsfaktor eingegeben. Ist die kritische Konfiguration des Systems von Interesse, wird ein k -Wert von eins als Ziel formuliert. Der CSAS5S-Code verändert bei jedem Programmdurchlauf die Systemparameter von CSAS5, um dem gewünschten Neutronenmultiplikationsfaktor möglichst nahezukommen. Die Iteration bricht ab, sobald der k -Wert innerhalb einer gewissen Unsicherheit erreicht ist. Für diese maximale Unsicherheit wurde bei allen KENO-Berechnungen $\Delta k_{eff} = \pm 0,0025$ als Parameter festgelegt.

In CSAS5 wird bei jedem Durchlauf der *best estimate* k_{eff} -Wert für jene Neutronengeneration bestimmt. Dieser beschreibt den Neutronenmultiplikationsfaktor, welcher die geringste Standardabweichung aller k -Werte aufweist, nachdem eine gewisse Anzahl k -Werte übersprungen wurde. Aus mehreren dieser *best estimate* k_{eff} -Werte nähert CSAS5S einen empfehlenswerten Wert für den gesuchten Parameter an.

Bei diesem gesuchten Parameter handelt es sich bei den Berechnungen in Kapitel 3 stets um den Kritischen Radius einer Vollkugel aus Spaltmaterial. Für diesen Radius wurde der durch CSAS5S angenäherte Wert verwendet.

Es ist zu beachten, dass bereits ein leicht veränderter Startparameter zu einer Abweichung des gefundenen Kritischen Radius um wenige Millimeter führen kann. Dies kann je nach Spaltstoff eine Veränderung der Kritischen Masse im Kilogramm-Bereich zur Folge haben. Da bei den Berechnungen stets sehr ähnliche Startparameter verwendet wurden, kann diese Unsicherheit im Bezug auf die Veränderung der Kritischen Masse vernachlässigt werden.

Kapitel 3

Berechnung Kritischer Massen

Die Ergebnisse der mit KENO berechneten Kritischen Massen werden im Folgenden vorgestellt. Zunächst werden die berechneten Werte mit anderen Quellen verglichen. Danach werden die zentralen Ergebnisse dieser Arbeit präsentiert: die Kritischen Massen von Transuranen aus Leichtwasserreaktor-Brennelementen. Unter Berücksichtigung des Einflusses eines Neutronenreflektors und der Spontanspaltungsrate werden diese Ergebnisse bewertet.

3.1 Vergleich mit Literaturwerten und der Theorie

In diesem Abschnitt werden mit KENO berechnete Werte für Kritische Massen mit Werten aus einem freigegebenen amerikanischen Bericht aus dem Jahr 1972 und aus dem *Handbuch der Kritikalität* aus den Jahren 1970 bis 1973 verglichen. Außerdem wird ein Vergleich mit analytisch berechneten Werten angestellt und Werte aus anderen Veröffentlichungen betrachtet.

3.1.1 Vergleich mit Glasstone (1972)

Im mittlerweile freigegebenen Bericht *An Introduction to Nuclear Weapons* von Samuel Glasstone und Leslie M. Redman aus dem Jahr 1972 sind experimentell bestimmte Werte für Kritische Massen von Vollkugeln aus Uran oder Plutonium veröffentlicht. Diese Literaturwerte sind in Tabelle 3.1 aufgelistet. Neben der Kritischen Masse dieser Elemente sind jeweils die Dichte und der Isotopenvektor in dem Bericht angegeben (Glasstone und Redman, 1972).

Tabelle 3.1: Vergleich zwischen Literaturwerten für Kritische Massen von Vollkugeln ohne Reflektor aus Glasstone und Redman (1972) und mit KENO simulierten Werten. Das δ -Plutonium enthält etwa 1 Gewichtsprozent (wt %) Gallium.

Spaltmaterial	Pu-240 [wt %]	Dichte [g/cm ³]	M _{c,Lit} [kg]	M _{c,KENO} [kg]	Differenz [%]
U-235 (93,2 wt %)	-	18,8	52,5	53,4	+1,7
Pu-239 (α)	4,8	19,7	10,5	10,5	-
Pu-239 (δ)	4,8	15,8	16,6	16,8	+1,2
Pu-239 (δ)	21,0	15,8	18,8	19,3	+2,7

Mit diesen Angaben ist es möglich die jeweiligen Systeme mit KENO zu simulieren. Hierfür wurde der Code CSAS5S mit der Multigruppenwirkungsquerschnittsbibliothek *v7-238* in SCALE 6.1 genutzt. Dabei wurde jeweils von einer Temperatur von 300 K ausgegangen. Die Dichten der α - und δ -Plutoniumallotrope sind in der Quelle angegeben. Die Ergebnisse für die auf diese Weise mit KENO berechneten Kritischen Massen und ihre Abweichungen von den Literaturwerten finden sich ebenfalls in Tabelle 3.1.

Anhand der Differenz, die jeweils unter 3 % liegt, lässt sich erkennen, dass KENO verlässliche Ergebnisse für Kritische Massen dieser Uran- und Plutoniumkugeln liefert.

3.1.2 Vergleich mit dem Handbuch für Kritikalität (1970-73)

Im *Handbuch für Kritikalität* des Laboratoriums für Reaktorregelung und Anlagensicherung, Garching, aus den Jahren 1970 bis 1973 sind Werte für die Kritischen Massen einzelner Isotope aufgelistet. Die Quelle dieser Daten wird mit Clayton (1973) angegeben (Thomas et al., 1970 - 1973).

Diese Literaturwerte der kleinsten Kritischen Massen unmoderierter Metallkugeln ohne Reflektor wurden mit von KENO berechneten Werten verglichen. Dabei wurde die Multigruppenwirkungsquerschnittsbibliothek *v6-238* mit dem Modul CENTRM in CSAS5S verwendet. Es wurde jeweils von einer Temperatur von 300 K ausgegangen. Da in der Quelle Clayton (1973) keine Dichten angegeben sind, wurden die Dichten aus Lide (2004) verwendet. Die Ergebnisse der mittels KENO berechneten Kritischen Massen im Vergleich zu den Literaturwerten finden sich in Tabelle 3.2.

Anhand der Differenz ist deutlich zu erkennen, dass die simulierten

Tabelle 3.2: Vergleich zwischen Literaturwerten für Kritische Massen von Vollkugeln ohne Reflektor aus Thomas et al. (1970 - 1973) und mit KENO simulierten Werten.

Isotop	$M_{c,Lit}$ [kg]	$M_{c,KENO}$ [kg]	Differenz [%]
Np-237	68,6	65,1	-5,1
Pu-238	7,2	9,9	+37,5
Pu-239	10,0	10,2	+2,0
Pu-240	158,7	38,0	-76,0
Am-241	113,5	75,4	-33,6
Cm-244	23,2	27,0	+16,4

Werte stark von den Literaturwerten abweichen. Insbesondere Pu-240 sticht mit einer um 76 % geringeren simulierten Kritischen Masse im Vergleich zum Literaturwert hervor.

Aus der Quelle Clayton (1973) ist ersichtlich, dass auch diese Veröffentlichung andere Quellen für die Kritischen Massen verwendet hat. Beim Recherchieren dieser Quellen wurde nicht ersichtlich, wie genau die Daten zustande gekommen sind. Es ist nicht dargestellt, ob es sich bei diesen Literaturwerten um experimentell bestimmte Werte oder ebenfalls um berechnete Massen handelt.

Sollte es sich ebenfalls um simulierte Daten handeln, würden sich die starken Abweichungen durch Verwendung anderer Parameter erklären lassen. Es wäre beispielsweise möglich, dass andere Dichten, andere Wirkungsquerschnittsbibliotheken oder andere Temperaturen verwendet wurden.

3.1.3 Vergleich mit der Neutronendiffusionstheorie

In Kapitel 2.3.3 wurde die Neutronendiffusionstheorie als vereinfachte Neutronentransporttheorie eingeführt. Mit Hilfe der im Anhang hergeleiteten Cotangens-Gleichung A.12 kann der Kritische Radius einer Vollkugel analytisch bestimmt werden. Dafür ist lediglich die Dichte ρ , die Nukleonenzahl A , der mikroskopische Spaltungswirkungsquerschnitt σ_f und die mittlere Anzahl der bei der Spaltung erzeugten Neutronen ν notwendig. In der Cotangens-Gleichung A.12 wird x so gewählt, dass die Gleichung gegen Null läuft, wobei $x = 0$ keine sinnvolle Lösung darstellt. Dies kann manuell beispielsweise mit Hilfe einer *OriginPro* oder *Microsoft Excel* Tabelle durchgeführt werden.

Auf diese Weise wurden die Kritischen Massen von U-233, U-235, Pu-239

Tabelle 3.3: Vergleich zwischen Ergebnissen für Kritische Massen von Kugeln einzelner Isotope, welche mit Hilfe der Neutronendiffusionstheorie und mit KENO bestimmt wurden.

Isotop	$M_{c,Theorie}$ [kg]	$M_{c,KENO}$ [kg]	Differenz [%]
U-233	18,0	15,4	-14,4
U-235	49,1	46,2	-5,9
Pu-239	9,5	10,2	+7,4
Pu-241	13,5	13,2	-2,2

und Pu-241 bestimmt. Dabei stammen die Werte für ν aus Emendörfer und Höcker (1969), während die Werte für σ_f der ENDF/B-VI.8-Datenbank entnommen wurden und sich auf eine Neutronenenergie von 2 MeV beziehen. Die Dichten wurden Lide (2004) entnommen. Für diese Isotope wurden die Kritischen Massen ebenfalls mit KENO berechnet und verglichen. Als Parameter wurden die gleichen Werte wie oben genutzt. Die Ergebnisse der Berechnung nach der Neutronendiffusionstheorie, die Ergebnisse der KENO-Simulation und deren prozentuale Abweichungen finden sich in Tabelle 3.3.

Anhand der Differenz ist zu erkennen, dass die Diffusionstheorie zur Transporttheorie passende Werte liefert. Lediglich bei dem Isotop U-233 liegt die Abweichung über 10 %. Für eine grobe Abschätzung der Kritischen Masse einer Vollkugel eines einzelnen Isotops ist die monoenergetische Neutronendiffusionstheorie daher zu gebrauchen. Diese Ergebnis war zu erwarten, da hier von dem sehr einfachen Fall einer unmoderierten Vollkugel im unendlichen homogenen Medium ausgegangen wird. Für abstraktere geometrische Anordnungen wird die Abweichung wesentlich größer und die Neutronendiffusionstheorie aufwendiger anzuwenden sein. Zudem sind die Spaltungswirkungsquerschnitte der Isotope im schnellen Bereich oberhalb von 1 MeV quasi konstant.

3.1.4 Vergleich mit anderen Veröffentlichungen

Wie einleitend erwähnt wurden Betrachtungen des Proliferationsrisikos durch Transurane unter Berücksichtigung der Kritischen Massen bereits in anderen Veröffentlichungen publiziert. Die vorliegenden Werte für die Isotope verschiedener Transurane sind in Tabelle 3.4 angegeben.

Die Werte für Plutonium aus Magill und Perrani (1999) wurden mit KENO-V.a aus SCALE 4.3 berechnet. Hafner und Winkelmann (2002) haben die von ihnen angegebenen Werte durch eigene nicht näher beschriebene

Tabelle 3.4: Werte für Kritische Massen einzelner Isotope aus verschiedenen Veröffentlichungen. Die Werte sind [1] Magill und Perrani (1999), [2] Hafner und Winkelmann (2002), [3] Albright und Kramer (2005) und [4] Kang und von Hippel (2005) entnommen.

Isotop	$M_{c,[1]}$ [kg]	$M_{c,[2]}$ [kg]	$M_{c,[3]}$ [kg]	$M_{c,[4]}$ [kg]
Pu-236	-	-	-	6 - 8
Pu-238	9,60	-	10	9,6 - 9,8
Pu-239	10,16	17	13	10,1
Pu-240	36,54	-	-	36,9
Pu-241	12,67	-	-	13,0
Pu-242	88,76	-	-	83,4
Np-237	-	56 - 68	56	57,0
Am-241	-	58 - 110	60	60,0
Am-242m	-	9	9	9,1
Am-243	-	150 - 155	150	144
Cm-243	-	-	-	8,6
Cm-244	-	-	-	27,0
Cm-245	-	-	-	9,2

Rechnungen überprüft. Als Quelle für die Daten aus Albright und Kramer (2005) wird lediglich die IEAO angegeben. Die Werte für Am-242m und Am-243 wurden selbst berechnet. Kang und von Hippel (2005) haben die Kritischen Massen ebenfalls berechnet. Hierzu haben sie MCNP und die Wirkungsquerschnittsbibliothek ENDF/B-VI.5 genutzt.

Im Vergleich mit den in Kapitel 3.1 und 3.2 mittels KENO berechneten Kritischen Massen zeigt sich, dass die Werte in einer ähnlichen Größenordnung liegen. Es fällt auf, dass die Kritische Masse von Pu-240 nah an dem hier berechneten Wert und weit ab vom im *Handbuch für Kritikalität* (1970-73) angegebenen Wert von 158,7 kg liegt.

3.2 Transurane aus LWR-Brennelementen

Mit KENO-V.a wurden Kritische Massen von Transuranen in Form einer Kugel aus reinem Spaltmaterial berechnet. Dabei wurde bei den Transuranen von einem Isotopenvektor ausgegangen, wie er in Leichtwasserreaktor-Brennelementen auftritt. Der Isotopenvektor der Brennelemente verändert sich im Laufe des Abbrandzyklus und während des Abklingzeitraumes. Daher wurden die Kritischen Massen mit Isotopenvektoren verschiedener

Abbrände und Lagerungszeiten simuliert.

Die Daten für die Isotopenmenge im Brennstoffinventar wurden mit Hilfe des Programms TRITON (Transport Rigor Implemented with Time-dependent Operation for Neutronic depletion) aus SCALE 6 bestimmt und für dieser Arbeit zur Verfügung gestellt (Kirchner, 2015). TRITON kann genutzt werden, um problemspezifische Wirkungsquerschnittsbibliotheken zu erstellen und mit diesen in mehrdimensionalen Konfigurationen Neutronentransportberechnungen durchzuführen (Scale, 2011). Mit TRITON wurde ein moderner Druckwasserreaktor der Kraftwerk Union AG (KWU) mit 18x18 Brennstäben pro Brennelement simuliert. Einige dieser Brennstäbe sind mit Gd_2O_3 als abbremsenden Neutronenabsorber angereichert, um einen Abbrandzyklus über vier Jahre zu erreichen. Dabei wurde von einer Standardbestrahlungsgeschichte ausgegangen, um einen Abbrand von 50 GWd/t zu erhalten. Die folgende Einsatzgeschichte wurde angewandt:

1. 444 Tage Volllastbetrieb bei 37,51 MW/t Leistung,
2. 30 Tagen Stillstand,
3. 444 Tagen Volllastbetrieb bei 37,45 MW/t Leistung,
4. 30 Tagen Stillstand und
5. 445 Tage Volllastbetrieb bei 37,50 MW/t Leistung.

In TRITON wurde die 238-Gruppen Wirkungsquerschnittsbibliothek aus der ENDF/B-VII.0 Datenbank genutzt. Der gesamte Reaktor wird mit etwa 96,5 Tonnen Schwermetall in 193 Brennelementen beladen.

Weiterhin wurde simuliert, wie sich das Brennstoffinventar bei unterschiedlichen Lagerungszeiträumen verhält. Dafür wurde mit der gleichen Methode die Isotopenzusammensetzung zu verschiedenen Zeiten nach der Entladung bis zu einer Lagerungszeit von 50 Jahren bestimmt. Dabei wird davon ausgegangen, dass die Elemente erst nach dem entsprechenden Zeitraum vom Brennstoff abgetrennt werden. Dadurch zerfallen einzelne Isotope und es ergeben sich die in dieser Arbeit genutzten Isotopenvektoren. Insbesondere der Zerfall der kurzlebigen Isotope Pu-241, Cm-242 und Cm-244 hat einen starken Einfluss auf den Isotopenvektor.

Im Folgenden werden die Ergebnisse für die Transurane Plutonium, Neptunium, Americium, Curium und für ein Gemisch aus Americium und Curium graphisch dargestellt. Für jedes Element werden die Daten in Teilbildern präsentiert:

- (a) Kritische Masse bei verschiedenen Abbränden und Lagerungszeiten

- (b) Kritischer Radius bei verschiedenen Abbränden und Lagerungszeiten
- (c) Gesamtproduktion für eine Tonne Schwermetallbrennstoff
- (d) Isotopenvektor

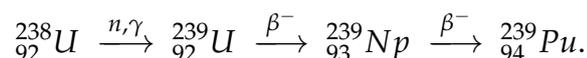
Zur Suche des Kritischen Radius wurde das Modul CSAS5S genutzt. Ein Beispiel für eine Eingabedatei mit den Spezifikationen der gesuchten Geometrie findet sich im Anhang B.

Die Transurane wurden jeweils in ihrer Metallform betrachtet. Dabei wurden die Dichten aus Lide (2004) entnommen.

Weiterhin wurden die Ergebnisse für jedes Transuran in Hinblick auf das Proliferationsrisiko interpretiert. Dazu wurde auch betrachtet, wie viele Kritische Massen eines Elements in den einleitend erwähnten 10.500 Tonnen in Deutschland endzulagernden Brennelementen vorhanden sind. Es wurde jeweils von den berechneten Daten zum Zeitpunkt der Entladung und nach einer 50 jährigen Lagerung ausgegangen. Dabei ist zu beachten, dass ein Teil dieser Brennelemente bereits seit Jahrzehnten zwischengelagert werden und daher deren Isotopenvektoren von den angenommenen abweichen. Dennoch lohnt sich dieser Vergleich, um das Proliferationsrisiko grob zu quantifizieren.

3.2.1 Plutonium

Plutonium wurde als zweites Transuran entdeckt und erstmals 1940 am Zyklotron in Berkeley, Kalifornien hergestellt. Dabei wurde Plutonium aus Natururan mittels Neutroneneinfang erbrütet. In Kernreaktoren wird in großen Mengen das Isotop Pu-239 aus U-238 gewonnen:



Plutonium hat je nach Temperatur sechs Allotrope mit verschiedenen Kristallstrukturen. Ein siebtes Allotrop bildet sich unter hohem Druck. Alle Allotrope haben unterschiedliche physikalische Eigenschaften, beispielsweise unterscheiden sich die Dichten und die thermischen Expansionsraten. Die Dichten variieren dabei zwischen 16,0 und 19,9 g/cm³. In dieser Arbeit wurde von dem α -Allotrop mit einer Dichte von 19,7 g/cm³ ausgegangen (Lide, 2004).

Abbrand

In Abbildung 3.1a ist die berechnete Kritische Masse für eine Vollkugel aus Plutonium beim jeweiligen Abbrand dargestellt. Es ist zu erkennen, dass

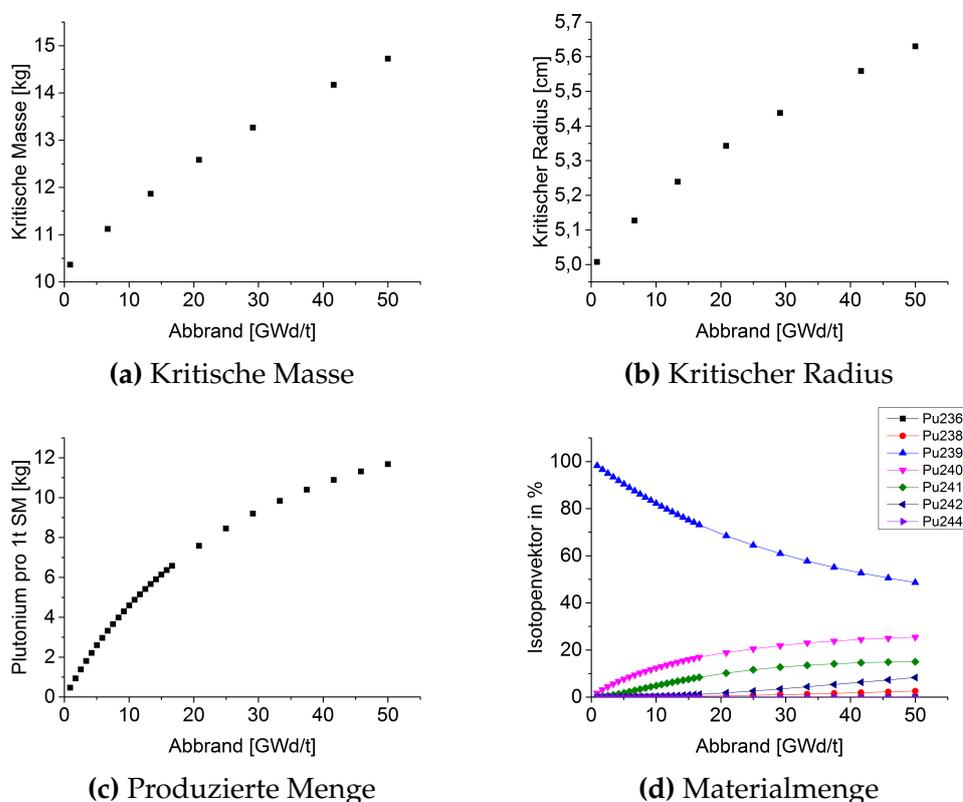


Abbildung 3.1: Ergebnisse für Plutonium in Abhängigkeit verschiedener Abbrände.

die Kritische Masse von 10,2 kg bei einem Abbrand von 0,1 GWd/t leicht auf eine Kritische Masse von 14,7 kg bei 50 GWd/t steigt, da der Anteil von Pu-239 im Laufe der Standzeit bis auf 48,6 % bei Entladung sinkt. Da Pu-239 unterhalb von 1 MeV einen wesentlich höheren Spaltwirkungsquerschnitt als Pu-240 hat, nimmt die Kritische Masse entsprechend zu. Eine Übersicht einiger Spaltwirkungsquerschnitte von Plutoniumisotopen findet sich im Anhang in Abbildung C.1.

Zerfall

Während der Lagerung von Plutonium steigt die Kritische Masse leicht von 14,7 kg bei Entladung auf 15,1 kg nach 50 Jahren (Abbildung 3.2a). Dies liegt insbesondere an der mit 14,4 Jahren verhältnismäßig kurzen Halbwertszeit von Pu-241, dessen Anteil von 15,0 % bei Entladung auf ca. 1,5 % nach 50 Jahren sinkt. Wie anhand der Spaltungswirkungsquerschnitte zu erkennen

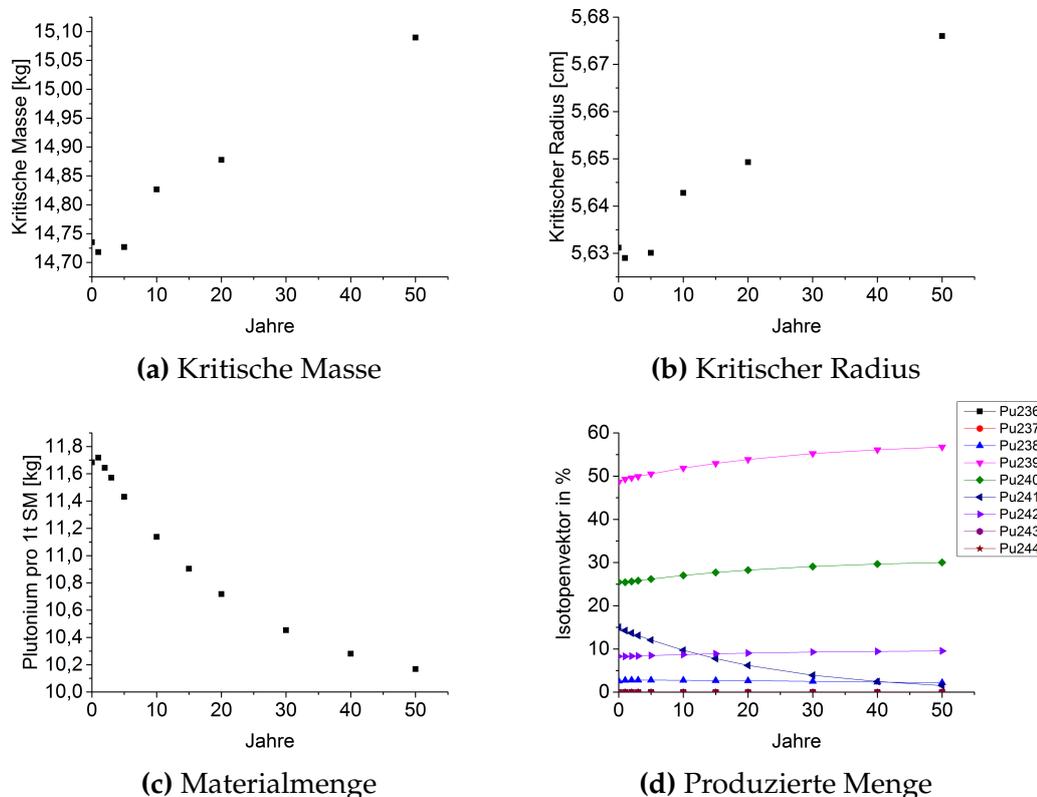


Abbildung 3.2: Ergebnisse für Plutonium in Abhängigkeit verschiedener Lagerungszeiten.

ist, liegen die Wirkungsquerschnitte von Pu-239 und Pu-241 in einem sehr ähnlichen Bereich. Trotz des leicht zunehmenden Anteils an Pu-239 steigt die Kritische Masse gering. Durch den Zerfall von Pu-241 sinkt außerdem die gesamte Plutoniummenge pro Tonne Schwermetall leicht auf 10,2 kg nach 50 Jahren (Abbildung 3.2c).

Allgemein bleibt Plutonium durch die hohe im Reaktor produzierte Materialmenge, den geringen Zerfall im Laufe der Zeit und einer verhältnismäßig kleinen Kritischen Masse lange proliferationsrelevant. Bereits in 1,5 Tonnen Schwermetall wird genug Plutonium für eine Kritische Masse und damit für den Bau einer Kernwaffe erbrütet. Die Plutoniummenge in den einleitend erwähnten prognostizierten 10.500 Tonnen endzulagernden Brennelementen genügt bei Entladung für 8357 Kritische Massen und nach 50 Jahren für 7102 Kritische Massen. Es ist daher unabdingbar, dass die Plutoniumbestände durch die IAEO überwacht werden.

3.2.2 Neptunium

Neptunium wurde als erstes Transuran 1940 am Zyklotron in Berkeley, Kalifornien durch den Neutronenbeschuss von Uran hergestellt. Bisher wurden drei verschiedene Allotrope entdeckt. In den folgenden Berechnungen wird von dem α -Allotrop mit einer Dichte von $20,2 \text{ g/cm}^3$ ausgegangen (Lide, 2004).

Im November 1998 hat das Energieministerium der Vereinigten Staaten von Amerika öffentlich bekannt gegeben, dass es möglich ist, aus dem Isotop Np-237 eine Kernwaffe zu bauen. Bisher ist nicht bekannt, ob bereits eine solche Waffe getestet wurde (Albright und Kramer, 2005).

Abbrand

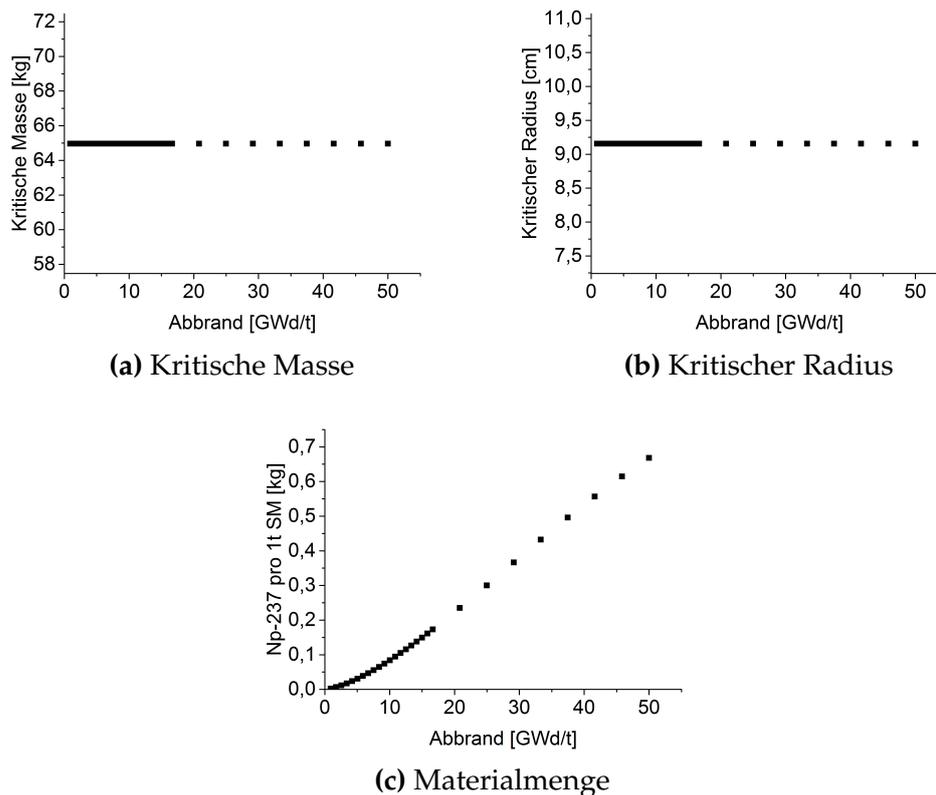


Abbildung 3.3: Ergebnisse für Np-237 in Abhängigkeit verschiedener Abbrände.

Die Ergebnisse für Neptunium werden in Abbildung 3.3 präsentiert. Da die meisten Neptuniumisotope sehr schnell zerfallen (Np-235, Np-238,

Np-239) oder nur in Spuren produziert werden (Np-236), wird einzig das Neptuniumisotop Np-237 betrachtet, das mit einer Halbwertszeit von 2,14 Millionen Jahren sehr langlebig ist. Da nur ein einzelnes Isotop simuliert wurde, verändern sich die Kritische Masse und der Kritische Radius in Abbildung 3.3a und Abbildung 3.3b nicht. Der Kritische Radius liegt konstant bei 9,2 cm, die Kritische Masse bei 65,0 kg. Insgesamt steigt der Anteil an Np-237 pro Tonne Schwermetall auf 680 g bei Entladung.

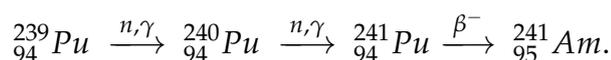
Die vorhandene Menge Neptunium ist im Vergleich zu Plutonium sehr gering und die Kritische Masse ist wesentlich höher. Wenn man die Kritische Masse mit der Menge an Uran, die in der *Little Boy*-Bombe verwendet wurde, vergleicht, relativiert sich diese: In jener Waffe wurden ca. 64 kg Uran verwendet (Reed, 2015). Es ist daher davon auszugehen, dass Neptunium sich für eine militärische Anwendung nutzen lässt. Gleichzeitig ist zu beachten, dass die in Deutschland prognostizierten 10.500 Tonnen endzulagernder Brennelemente für 109 Kritische Massen aus Np-237 reichen. Das Material kann daher definitiv als proliferationsrelevant eingeschätzt werden.

Zerfall

Abbildung 3.4 zeigt die Ergebnisse für Np-237 in Abhängigkeit verschiedener Lagerungszeiten. Aufgrund der langen Halbwertszeit von Np-237 zerfällt es in dem betrachteten Zeitraum kaum. Im Gegenteil, in Abbildung 3.4c ist abzulesen, dass die Materialmenge auf 770 g pro Tonne Schwermetall zunimmt. Diese leichte Steigerung entstammt dem Zerfall von Am-241, welches mit 430 Jahren eine verhältnismäßig geringe Halbwertszeit hat, und sorgt dafür, dass Np-237 lange proliferationsrelevant bleibt. Dadurch reicht die Neptuniummenge nach 50 Jahren für die Bestückung von 124 Kernwaffen aus dem prognostizierten Bestand endzulagernder Brennelemente aus.

3.2.3 Americium

Americium wurde als viertes Transuran 1944 am metallurgischen Kriegslabor der *University of Chicago* entdeckt. Es wurde in einem Kernreaktor durch wiederholte Neutroneneinfänge aus Plutonium erbrütet:



Es sind zwei Americiumallotrope bekannt. Im Folgenden wird vom α -Allotrop mit einer doppelt-hexagonalen Kristallstruktur und einer Dichte von 12,0 g/cm³ ausgegangen (Lide, 2004).

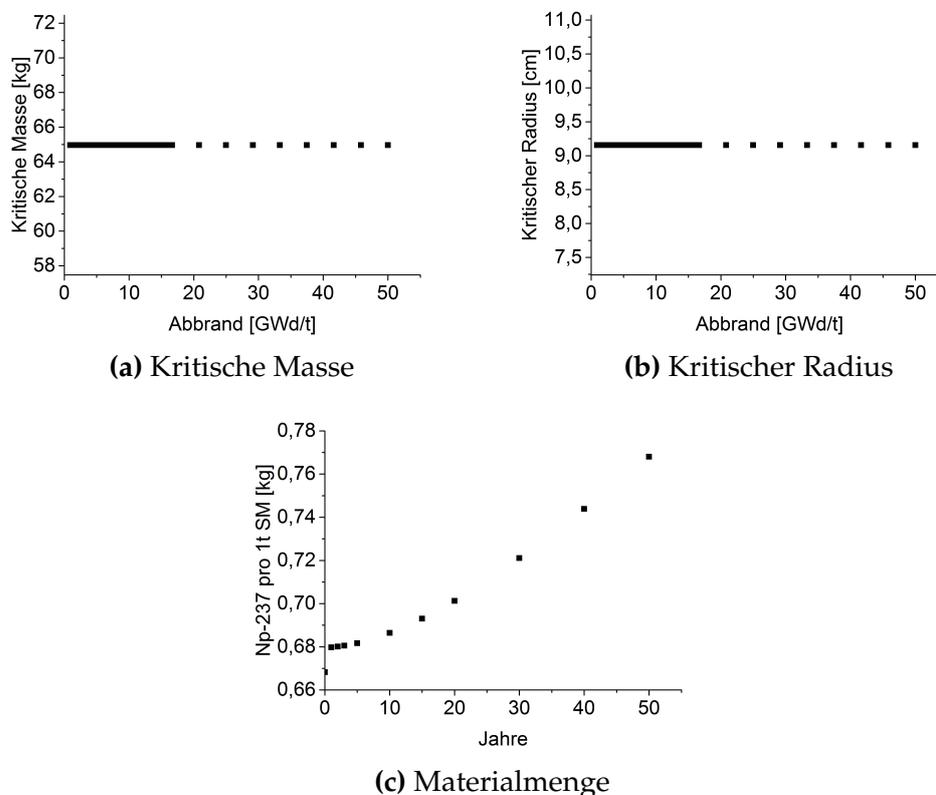


Abbildung 3.4: Ergebnisse für Np-237 in Abhängigkeit verschiedener Lagerungszeiten.

Wie bei Neptunium haben die Vereinigten Staaten von Amerika im November 1998 öffentlich bekannt gegeben, dass es möglich ist, aus Americium eine Kernwaffe herzustellen (Albright und Kramer, 2005).

Abbrand

In Abbildung 3.5 sind die Ergebnisse für verschiedene Abbrände dargestellt. Die wesentlichen Beiträge im Element sind die Isotope Am-241 und Am-243. Deren Verhältnis verändert sich stark im Laufe der Standzeit. Während der Anteil an Am-241 stark abfällt, steigt der Anteil an Am-243. Beide Beiträge sind bei einem Abbrand von 20,8 GWd/t annähernd identisch. Durch diese starke Veränderung des Isotopenvektors steigt die Kritische Masse von 96,8 kg auf 225,3 kg bei Entladung an. Diese Zunahme der Kritischen Masse kommt durch den durchschnittlich höheren Spaltungswirkungsquerschnitt von Am-241 im Gegensatz zu Am-243 zustande.

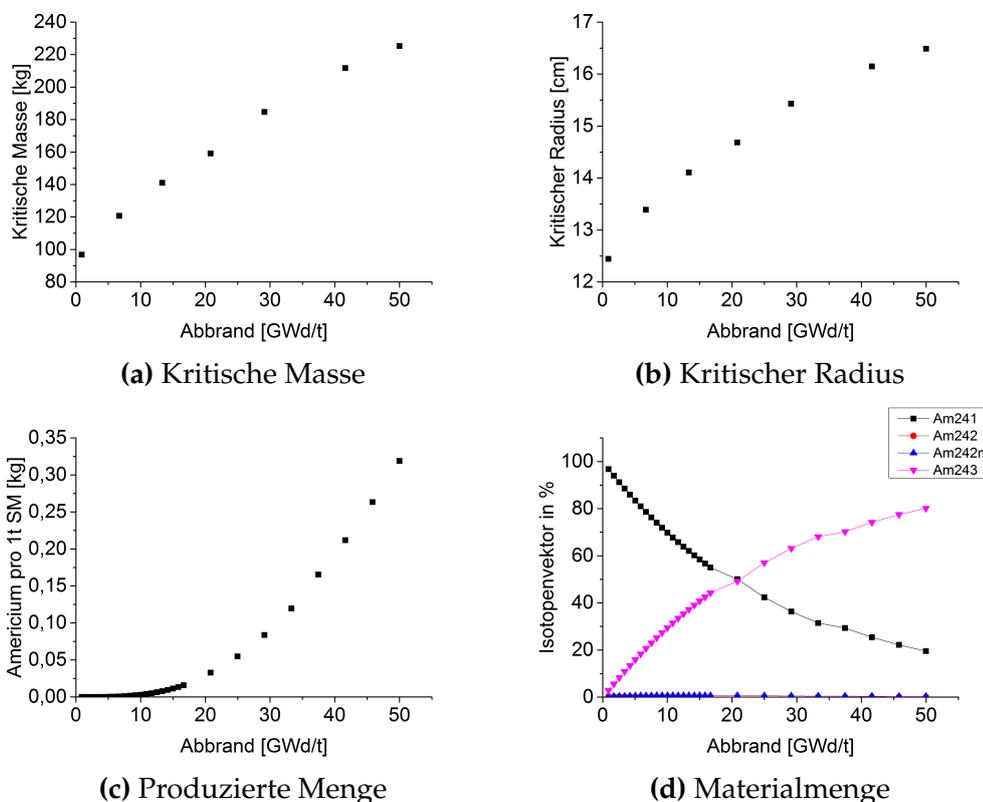


Abbildung 3.5: Ergebnisse für Americium in Abhängigkeit verschiedener Abbrände.

Insgesamt liegt der Americiumanteil bei Entladung bei 320 g pro Tonne Schwermetall. Dies entspricht ungefähr der Hälfte des Neptuniumanteils und ist wesentlich weniger als der Plutoniumanteil im Brennstoff.

Zerfall

Die Ergebnisse für Americium bei verschiedenen Lagerungszeiten sind in den Abbildungen 3.6 dargestellt. Der Anteil an Am-243 fällt im Laufe der Zeit stark, während der Anteil an Am-241 steigt. Bei Entladung liegt der Am-241 Anteil noch bei 19,5 % und der Am-243 Anteil bei 80,1 %. Nach 20 Jahren liegen diese Anteile bereits bei 81,5 % respektive bei 18,4 %. Diese große Veränderung des Isotopenvektors resultiert weniger aus der Halbwertszeit von Am-243 mit 7.400 Jahren, sondern vielmehr aus dem Zerfall von Pu-241. Unter Betazerfall zerfällt Pu-241 in Am-241. Dies sorgt zudem dafür, dass der Anteil an Americium im Brennstoff stark auf 1,8 kg pro

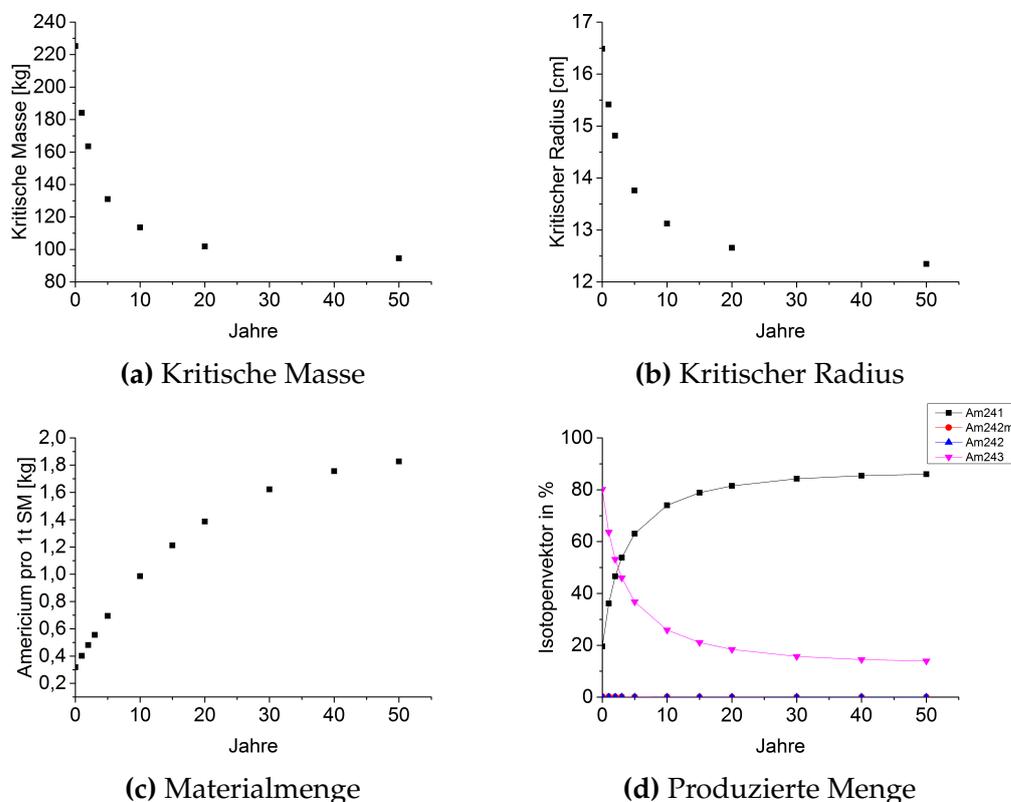


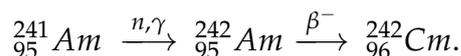
Abbildung 3.6: Ergebnisse für Americium in Abhängigkeit verschiedener Lagerungszeiten.

Tonne Schwermetall nach 50 Jahren ansteigt. Dadurch sinkt die Kritische Masse auf 101,9 kg nach 20 Jahren und auf 94,6 kg nach 50 Jahren.

Durch den Zerfall von Pu-241 wird das Americium im Laufe der Lagerungszeit proliferationsrelevanter. Während die in Deutschland prognostizierten 10.500 Tonnen endzulagernder Brennelemente bei Entladung für 14 Kritischen Masse aus Americium genügen, könnten nach 50 Jahren bereits 199 Kernwaffen mit diesem Bestand bestückt werden. Da die Kritische Masse nach langer Lagerung in einen militärisch akzeptablen Bereich fällt und gleichzeitig die vorhandene Materialmenge zunimmt, steigt die militärische Nutzbarkeit von Americium je länger die Brennelemente vor der Plutoniumabtrennung gelagert werden.

3.2.4 Curium

Als drittes Transuran wurde Curium ebenfalls 1944 am metallurgischen Kriegslabor der *University of Chicago* entdeckt. Es entstand durch den Beschuss von Pu-239 mit Alphateilchen. Mittlerweile sind 16 verschiedene Isotope bekannt. Im Kernreaktor wird Curium aus Americium erbrütet:



Bei den folgenden Berechnungen wird von einer Dichte von $13,51 \text{ g/cm}^3$ ausgegangen (Lide, 2004).

Abbrand

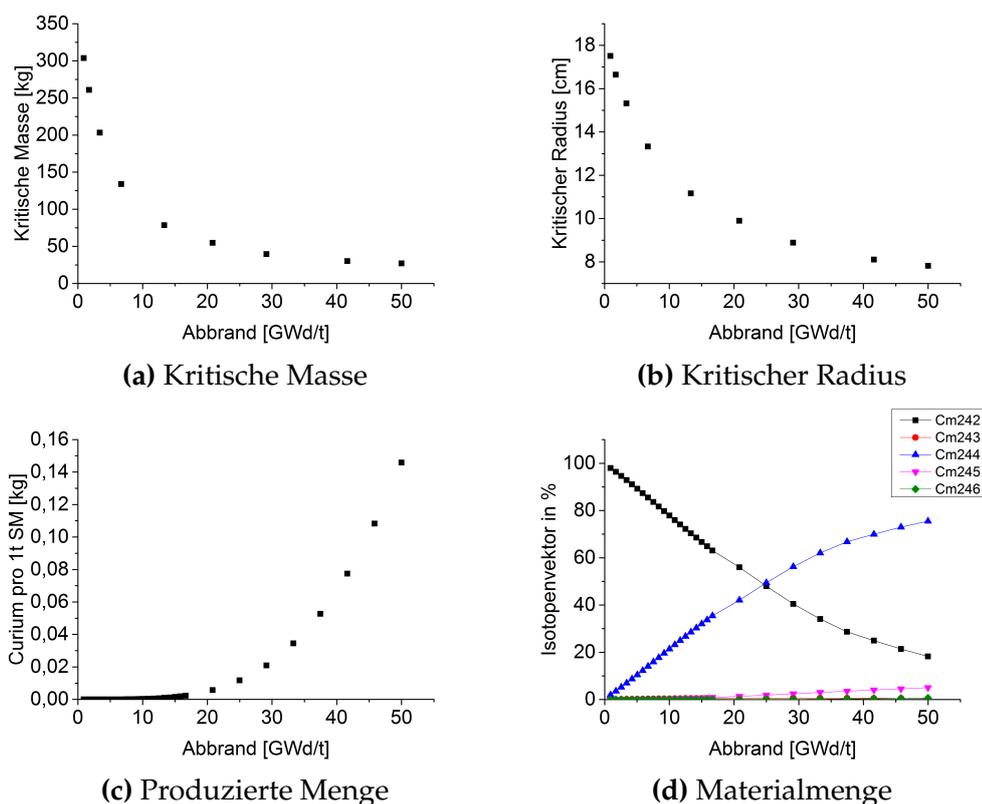


Abbildung 3.7: Ergebnisse für Curium in Abhängigkeit verschiedener Abbrände.

In Abbildung 3.7 ist zu erkennen, dass der Isotopenvektor im Laufe der Standzeit ein ähnliches Verhalten zeigt wie bei Americium. Hier verändert

sich die Konzentration von Cm-242 und Cm-244 stark. Durch den oberhalb von 10 eV im Mittel höheren Spaltungswirkungsquerschnitt von Cm-244 gegenüber Cm-242 sinkt die Kritische Masse im Laufe der Standzeit stark (vgl. Abbildung C.4). Zu Beginn der Standzeit liegt sie bei über 300 kg, um auf 27,1 kg bei Entladung abzufallen. Die im Reaktor produzierte Menge Curium ist mit bis zu 150 g pro Tonne Schwermetall vergleichsweise gering.

Obwohl wenig Material existiert, reicht die prognostizierte in Deutschland endzulagernde Menge an Brennelementen für 58 Kritische Massen aus. Ohne Betrachtung der Spontanspaltungsrate könnte daher Reaktor-Curium als proliferationsrelevant eingeschätzt werden.

Zerfall

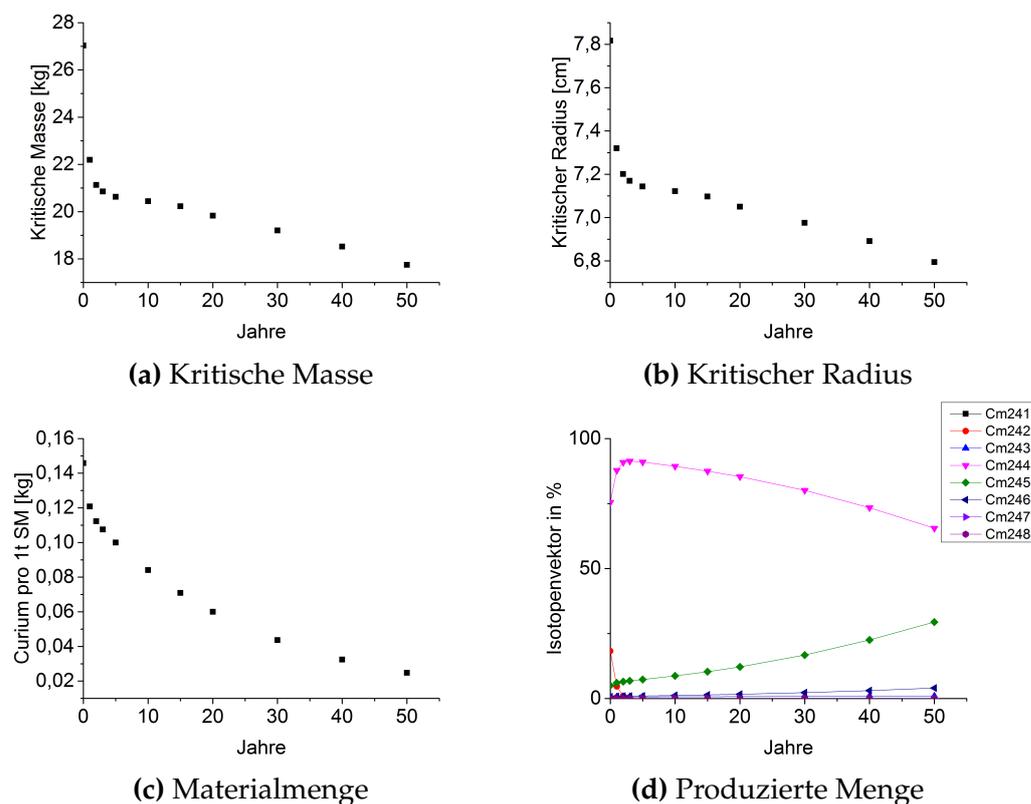


Abbildung 3.8: Ergebnisse für Curium in Abhängigkeit verschiedener Lagerungszeiten.

Abgebildet sind die Ergebnisse für den Zerfall von Curium in Abbildung 3.8. Aufgrund der geringen Halbwertszeit von maximal einigen

tausend Jahren (vgl. Tabelle D.1) sinkt die gesamte Curiummenge nach 50 Jahren auf 25 g pro Tonne Schwermetall. Beispielsweise hat Cm-244 eine Halbwertszeit von 18,1 Jahren. Die längste Halbwertszeit der betrachteten Curiumisotope hat Cm-245 mit 8.500 Jahren. Gleichzeitig weist Cm-245 unterhalb von 1 MeV einen wesentlich höheren Spaltungswirkungsquerschnitt als Cm-244 auf (vgl. Abbildung C.4). Der sinkende Cm-244 und der steigende Cm-245 Anteil im Curium sorgen für eine weiter abfallende Kritische Masse im Laufe der Lagerungszeit auf 17,8 kg nach 50 Jahren.

Die Kritischen Massen liegen in einer ähnlichen Größenordnung wie jene von Plutonium. Allerdings sorgt die geringe Halbwertszeit von Curium dafür, dass nach einiger Zeit nur noch wenig Material für eine militärische Nutzung vorhanden ist. Nach 50 Jahren müsste Curium aus ursprünglichen 712 Tonnen Schwermetall abgetrennt werden, um eine Kritische Masse zu erreichen. Das bedeutet, dass die Neptuniummenge in den 10.500 Tonnen endzulagernder Brennelemente für 14 Kritische Massen ausreicht. Ein Missbrauch von Curium für den Bau einer Kernwaffe ist demnach mit großen Schwierigkeiten verbunden.

3.2.5 Americium & Curium

Americium und Curium wurden als Gemisch in Metallform simuliert. Dabei wurde die Dichte anhand der Elementverhältnisse berechnet, ausgehend von einer Americiumdichte von 12 g/cm^3 und einer Curiumdichte von $13,51 \text{ g/cm}^3$.

Abbrand

In Abbildung 3.9 sind die Ergebnisse für verschiedene Abbrände dargestellt. Bei geringer Standzeit ist der Anteil an Americium wesentlich höher als der Curiumanteil. Dies verändert sich im Laufe der Standzeit: Der Anteil an Americium im Gemisch fällt und der Curiumbeitrag steigt. Insbesondere sinkt der Anteil an Am-241, während der Beitrag an Am-243 und Cm-244 zunimmt. Dies hat zur Folge, dass die Kritische Masse ein Maximum bei 136,6 kg und einem Abbrand von 16,7 GWd/t erreicht. Bei einem Abbrand von 50 GWd/t liegt die Kritische Masse bei 85,0 kg; es wurden 460 g Americium und Curium erbrütet, weniger als die Menge an Neptunium beim gleichen Abbrand.

Insgesamt befindet sich die Kritische Masse bei Entladung damit in einem für militärische Zwecke akzeptablen Bereich, da die prognostizierte Menge an endzulagernden Brennelementen in Deutschland bereits für 56 Kritische Massen genügt.

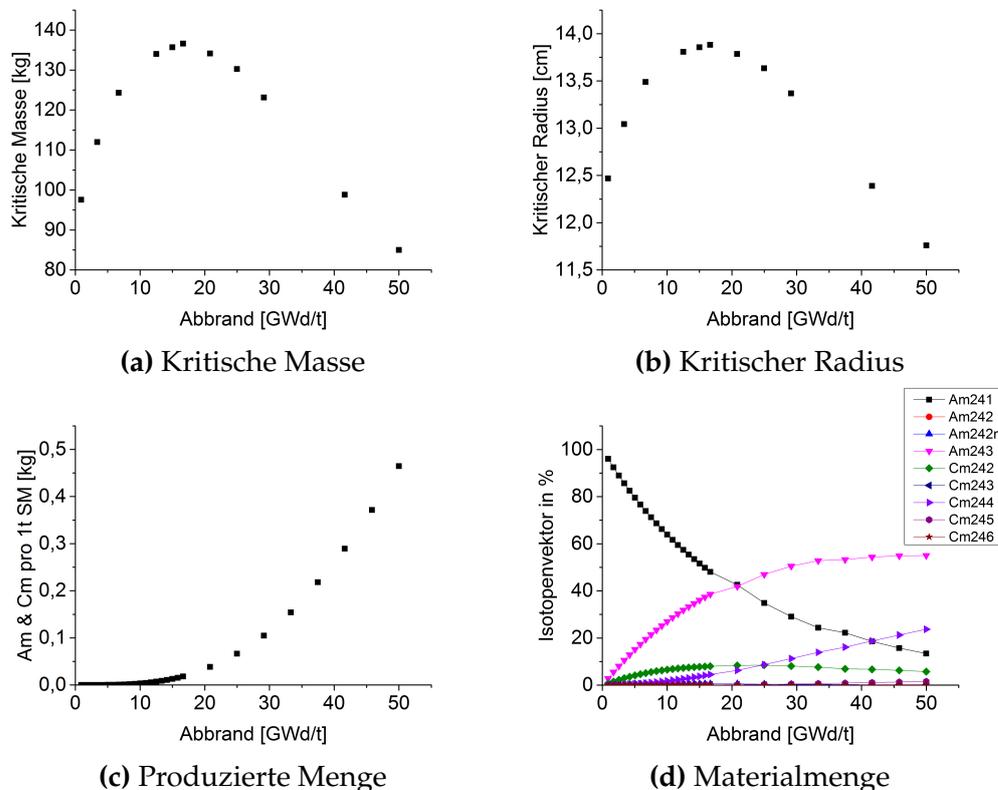


Abbildung 3.9: Ergebnisse für Americium und Curium in Abhängigkeit verschiedener Abbrände.

Zerfall

Die Ergebnisse für den Zerfall werden in Abbildung 3.10 präsentiert. Die Abbildung 3.10d zeigt, wie der Anteil der Isotope Am-243 und Cm-244 sinkt und gleichzeitig der Anteil an Am-241 stark steigt. Dieses Verhalten folgt aus der mit 18,1 Jahren kurzen Halbwertszeit von Cm-244 und aus dem Zerfall von Pu-241 in Am-241. Durch den im Verhältnis sinkenden Curiumanteil im Laufe der Jahre steigt die Kritische Masse leicht auf 88 kg nach 30 Jahren an. Gleichzeitig sorgt der Pu-241 Zerfall für einen starken Zuwachs der vorhandenen Materialmenge, wie sie auch bei Americium zu beobachten ist (vgl. Kapitel 3.2.3). Nach 50 Jahren ist die Materialmenge auf 1,85 kg pro Tonne Schwermetall angewachsen.

Allgemein liegt die Kritische Masse im gesamten Verlauf der Lagerungszeit in einem militärisch akzeptablen Bereich. Im Vergleich zu Americium fällt auf, dass die Kritische Masse beim Zerfall von Americium erst nach

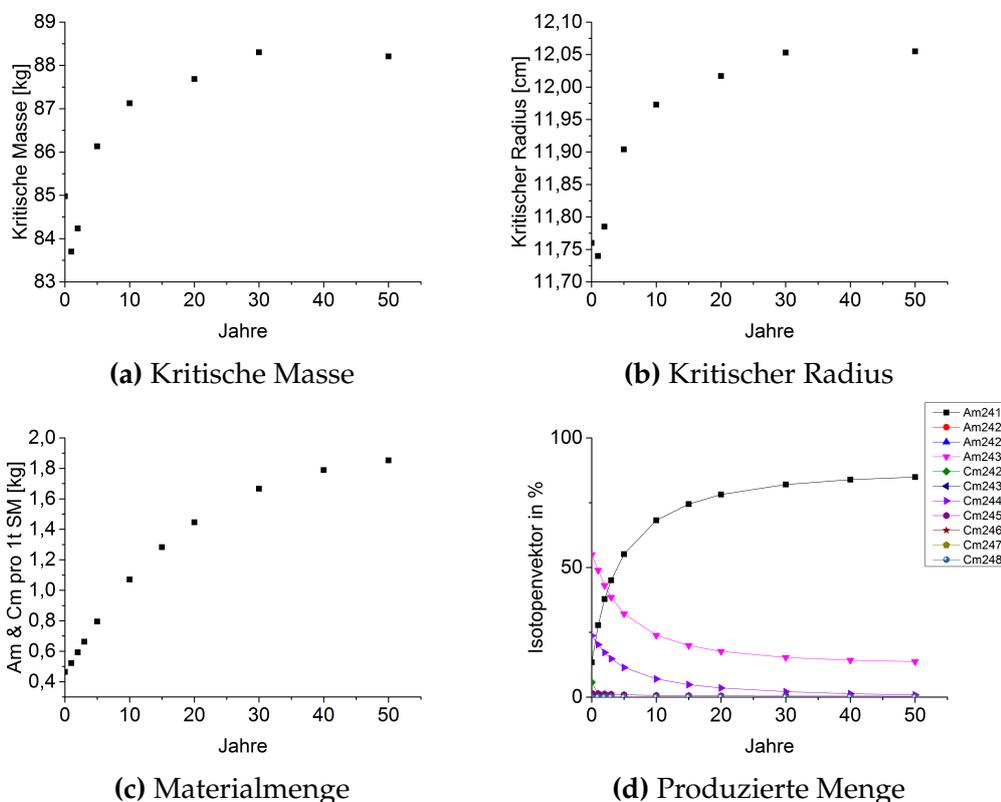


Abbildung 3.10: Ergebnisse für Americium und Curium in Abhängigkeit verschiedener Lagerungszeiten.

über 20 Jahren auf unter 100 kg fällt. Gleichzeitig steigt die insgesamt vorhandene Materialmenge wie bei Americium im Laufe der Zeit stark an. Nach 50 Jahren wird die heute in Deutschland endzulagernde Menge an Brennelementen für die Konstruktion von 220 Kernwaffen ausreichen.

3.3 Einfluss eines Neutronen-Reflektors

Durch die Nutzung eines Neutronenreflektors kann die Kritische Masse verringert werden. Der Reflektor wird um das spaltbare Material herum angeordnet. Dabei besteht er bestenfalls aus einem Material mit hohem elastischen Streuungswirkungsquerschnitt, geringem inelastischen Streuungswirkungsquerschnitt und geringem Absorptionswirkungsquerschnitt. Daher kommen beispielsweise Uran oder Beryllium in Frage. Durch den Reflektor kommt es zu einem geringeren Neutronenausfluss. Viele Neuro-

nen, welche das Spaltmaterial verlassen, werden im Reflektor gestreut und können zurück in das Spaltmaterial gelangen, um weitere Kernspaltungen zu induzieren (Reed, 2015).

Für diesen Abschnitt wurde der Einfluss eines Neutronenreflektors aus Beryllium auf die Kritische Masse qualitativ mit KENO berechnet. Dabei wurde die Geometrie einer Kugel aus spaltbarem Material mit einer 10 cm dicken Berylliumummantelung simuliert. Für das spaltbare Material wurden die vier in dieser Arbeit betrachteten Elemente und das Gemisch verwendet. Dabei wurde jeweils von dem Isotopenvektor bei einem Abbrand von 50 GWd/t und nach einer Lagerungsdauer von 10 Jahren ausgegangen. In Tabelle 3.5 sind die simulierten Werte der Kritischen Masse mit und ohne Berylliumreflektor und ihre Differenz voneinander bei einem Abbrand von 50 GWd/t dargestellt. In Tabelle 3.6 werden diese Werte für eine Lagerungsdauer von 10 Jahren nach der Entladung präsentiert.

Tabelle 3.5: Kritische Massen von Vollkugeln und von Kugeln umgeben von einem Reflektor aus Beryllium von 10 cm Dicke für Isotopenvektoren bei Entladung nach einem Abbrand von 50 GWd/t.

Element	$M_{c,Vollkugel}$ [kg]	$M_{c,mit\ Be-Reflektor}$ [kg]	Differenz [%]
Np-237	65,9	46,2	-29,9
Plutonium	14,7	5,5	-62,6
Americium	225,3	155,2	-31,1
Curium	27,0	10,2	-62,2
Americium & Curium	85,0	49,5	-41,8

Tabelle 3.6: Kritische Massen von Vollkugeln und von Kugeln umgeben von einem Reflektor aus Beryllium von 10 cm Dicke für Isotopenvektoren nach einer Lagerungsdauer von 10 Jahren.

Element	$M_{c,Vollkugel}$ [kg]	$M_{c,mit\ Be-Reflektor}$ [kg]	Differenz [%]
Np-237	65,9	46,2	-29,9
Plutonium	14,8	5,6	-62,1
Americium	113,6	77,2	-32,0
Curium	20,4	7,4	-63,7
Americium & Curium	87,1	55,8	-35,9

Anhand der Differenz ist zu erkennen, dass die Abnahme der Kritischen Masse durch den Reflektor bei den Elementen in beiden Fällen vergleichbar

ist. Lediglich bei dem Gemisch aus Americium und Curium lässt sich ein leichter Unterschied erkennen: Nach dem Abbrand sinkt die Kritische Masse durch den Reflektor um 41,8 %, nach 10 Jahren Lagerung nur noch um 35,9 %.

Es zeigt sich, dass insbesondere bei Plutonium und Curium ein Reflektor einen großen Einfluss auf die Kritische Masse hat. Hier verringert der Reflektor die Kritische Masse um über 60 %. Dies liegt daran, dass diese Elemente einen besonders hohen Spaltwirkungsquerschnitt im schnellen Energiebereich aufweisen (vgl. Anhang C). Bei den anderen Spaltmaterialien sorgt der Reflektor für eine Verringerung der Kritischen Masse im Bereich von 30 bis 40 %.

Dies ist zwar nur eine qualitative Analyse mit ausgewählten Werten, doch es zeigt, wie durch den Einsatz eines Neutronenreflektors die benötigte Menge für den Bau einer Kernwaffe stark gesenkt werden kann. Sogar mit einer Menge an Spaltmaterial, die geringer ist als die Kritische Masse einer Vollkugel, kann das Material einer militärischen Anwendung zugeführt werden. Eine weitere Minderung der benötigten Materialmenge kann durch die Anwendung des *Implosionsdesigns* erreicht werden (Reed, 2015). Gleichzeitig wird mit diesem Design eine höhere Sprengkraft erzeugt.

3.4 Einfluss der Spontanspaltungsrate

Um die Nutzbarkeit eines Materials für eine Kernwaffe zu bewerten, ist die Spontanspaltungsrate (siehe Kapitel 2.2.1) ein wichtiger Faktor. Für eine simple Kernwaffe nach dem Kanonenrohr-Design, welches bei der *Little Boy*-Bombe genutzt wurde, wird das spaltbare Material zunächst in zwei unterkritischen Hälften gelagert. Bei der Zündung werden diese unterkritischen Hälften mittels einer Sprengladung zu einer kritischen Geometrie zusammengepresst. Sollte das Material jedoch eine sehr hohe Spontanspaltungsrate haben, entstehen bereits viele Neutronen bevor die Geometrie vollständig vereinigt ist. Durch diese spontanen Neutronen setzt die Kettenreaktion unter Umständen zu früh ein, wodurch insgesamt weniger Material gespalten wird, was wiederum zu einer geringeren Sprengkraft führt.

Die Spontanspaltungsrate wird mit Formel 2.7 berechnet. Die Werte der verschiedenen Isotope für die Halbwertszeit $T_{1/2}$, das Spontanspaltungsverzweigungsverhältnis Ω_{SF} und das Atomgewicht M_{Atom} sind der ENDF/B-VI.8 Datenbank entnommen. Beide Werte, für die Halbwertszeit und das Verzweigungsverhältnis, sind mit einer Unsicherheit in der Datenbank angegeben. Für die Rechnung mit diesen Werten wurde die

Tabelle 3.7: Übersicht der Spontanspaltungsraten N_{SF} für verschiedene Isotope berechnet aus der Halbwertszeit $T_{1/2}$ und der Spontanspaltungswahrscheinlichkeit Ω_{SF} . Die Daten stammen aus der ENDF/B-VI.8 Datenbank.

Isotop	$T_{1/2}$ [s]	Ω_{SF} [%]	N_{SF} [g ⁻¹ s ⁻¹]
Np-237	$(6,75 \pm 0,03) \times 10^{13}$	-	-
Pu-236	$(9,15 \pm 0,31) \times 10^7$	$(8,50 \pm 1,50) \times 10^{-8}$	$(1,64 \pm 0,30) \times 10^4$
Pu-238	$(2,77 \pm 0,01) \times 10^9$	$(1,90 \pm 0,10) \times 10^{-7}$	$(1,20 \pm 0,06) \times 10^3$
Pu-239	$(7,61 \pm 0,01) \times 10^{11}$	4,40 $\times 10^{-10}$	$(1,01 \pm 0,01) \times 10^{-2}$
Pu-240	$(2,07 \pm 0,01) \times 10^{11}$	$(5,70 \pm 0,10) \times 10^{-6}$	$(4,79 \pm 0,08) \times 10^2$
Pu-241	$(4,53 \pm 0,03) \times 10^8$	-	-
Pu-242	$(1,18 \pm 0,01) \times 10^{13}$	$(5,49 \pm 0,08) \times 10^{-4}$	$(8,03 \pm 0,12) \times 10^2$
Am-241	$(1,37 \pm 0,01) \times 10^{10}$	$(3,77 \pm 0,08) \times 10^{-10}$	$(4,78 \pm 0,10) \times 10^{-1}$
Am-242	$(5,77 \pm 0,01) \times 10^4$	-	-
Am-242m	$(4,45 \pm 0,06) \times 10^9$	$(1,60 \pm 0,60) \times 10^{-8}$	$(6,20 \pm 2,33) \times 10^1$
Am-243	$(2,33 \pm 0,01) \times 10^{11}$	$(3,70 \pm 0,90) \times 10^{-9}$	$(2,73 \pm 0,66) \times 10^{-1}$
Cm-242	$(1,40 \pm 0,01) \times 10^7$	$(6,33 \pm 0,13) \times 10^{-6}$	$(7,76 \pm 0,16) \times 10^6$
Cm-243	$(8,99 \pm 0,06) \times 10^8$	-	-
Cm-244	$(5,71 \pm 0,01) \times 10^8$	$(1,35 \pm 0,01) \times 10^{-4}$	$(4,03 \pm 0,02) \times 10^6$
Cm-245	$(2,68 \pm 0,06) \times 10^{11}$	-	-
Cm-246	$(1,49 \pm 0,03) \times 10^{11}$	$(2,61 \pm 0,01) \times 10^{-2}$	$(2,97 \pm 0,06) \times 10^6$

Formel

$$N_{SF} = N_a \cdot \frac{\ln(2) \cdot \Omega_{SF}}{T_{1/2}} \quad (3.1)$$

genutzt. Der Fehler der Spontanspaltungsrate ΔN_{SF} kann mittels Fehlerfortpflanzung bestimmt werden. Es ergibt sich die Formel

$$\Delta N_{SF} = \sqrt{\left(\frac{\ln(2) \cdot N_a}{T_{1/2}} \Delta \Omega_{SF}\right)^2 + \left(\frac{\ln(2) \cdot N_a \cdot \Omega_{SF}}{T_{1/2}^2} \Delta T_{1/2}\right)^2}. \quad (3.2)$$

Eine Übersicht der berechneten Spontanspaltungsraten für alle betrachteten Isotope findet sich in Tabelle 3.7.

Um die Spontanspaltungsrate für die unterschiedlichen Elemente während der Standzeit und des Zerfalls zu bestimmen, kann die Spontanspaltungsrate der einzelnen Isotope mit dem Isotopenmischungsverhältnis im Reaktor gewichtet werden. Auf diese Weise kann gezeigt werden, wie sich die Spontanspaltungsrate der Elemente während des Abbrands und

Tabelle 3.8: Spontanspaltungsraten N_{SF} von Elementen nach einem Abbrand von 50 GWd/t. Zum Vergleich ist die Spontanspaltungsrate von waffenfähigem Plutonium (WPG Pu) mit 95 % Anteil von Pu-239 angegeben.

Element	N_{SF} [g ⁻¹ s ⁻¹]
Neptunium	0
Plutonium	$(2,19 \pm 0,02) \times 10^2$
Americium	$(4,68 \pm 0,79) \times 10^1$
Curium	$(4,48 \pm 0,03) \times 10^6$
Americium & Curium	$(1,41 \pm 0,01) \times 10^6$
WPG Pu (95% Pu-239)	$(2,39 \pm 0,04) \times 10^1$

des Zerfalls verändert. In Tabelle 3.8 sind die Spontanspaltungsraten nach einem Abbrand von 50 GWd/t gezeigt.

Bekannt ist, dass sich zur Zeit des Manhattan Projektes keine simple Atombombe nach dem Kanonenrohr-Prinzip aus Plutonium bauen ließ. Die Spontanspaltungsrate von waffenfähigem Plutonium mit sehr geringer Verunreinigung durch Pu-240, welches eine sehr hohe Spontanspaltungsrate aufweist, ist zu hoch. Daher griff man für die *Trinity*- und *Fat Man*-Bombe auf das *Implosionsdesign* zurück. Heute ist zudem bekannt, dass sich Reaktorplutonium, d. h. Plutonium aus abgebrannten Brennelementen, prinzipiell für Atomwaffen nutzen lässt (Mark, 1993).

Daraus lässt sich schließen, dass für eine Waffe nach dem Implosionsdesign Elemente genutzt werden können, welche eine Spontanspaltungsrate von weniger als einigen Hundert Spaltungen pro g⁻¹ s⁻¹ aufweisen. Wie aus Tabelle 3.8 zu entnehmen ist, trifft dies auf Neptunium, Plutonium und Americium zu. Hier herrscht nach einem Abbrand von 50 GWd/t ein Proliferationsrisiko. Auf der anderen Seite kommen Curium und ein Gemisch aus Americium und Curium nicht in Frage. Aus diesen Stoffen wäre es vermutlich technisch sehr aufwendig oder unmöglich, eine Kernwaffe zu bauen.

Kapitel 4

Zusammenfassung & Ausblick

Das Risiko, Elemente aus Leichtwasserreaktor-Brennelementen für den Bau von Kernwaffen zu missbrauchen, kann auf Basis der Kritischen Masse beurteilt werden. Zu deren Berechnung wurden die Neutronentransporttheorie und der Monte-Carlo-Code KENO verwendet. Hierfür wurden die für die Monte-Carlo-Simulation benötigten Parameter bestimmt und implementiert. Erstmals wurden die Kritischen Massen der verschiedenen Minoren Actinoide aus LWR-Brennelementen zu unterschiedlichen Zeitpunkten des Abbrands und der konsekutiven Lagerung bestimmt. Es erfolgte ein Abgleich mit ausgewählten Literaturwerten und aus historischem Interesse ein Vergleich mit der Neutronendiffusionstheorie.

Mit den berechneten Werten wurde das Proliferationsrisiko eines durch Partitionierung und Transmutation veränderten Brennstoffkreislaufs bewertet. Dazu wurden einzelne Transurane mit Isotopenvektoren bei verschiedenen Abbränden und zu unterschiedlichen Zeitpunkten nach der Entladung betrachtet. Auf diese Weise konnte erstmals das Proliferationsrisiko der einzelnen Reaktor-Transurane zu verschiedenen Zeitpunkten im Brennstoffkreislauf bestimmt werden. Berücksichtigung fand dabei die Spontanspaltungsrate und das damit einhergehende Risiko der Prädetonation. Die Proliferationsrisikobewertung kann für die einzelnen Transurane wie folgt zusammengefasst werden:

- Bei **Plutonium** herrscht ein sehr hohes Proliferationsrisiko. Durch eine sehr kleine Kritische Masse, eine hohe Produktionsrate und eine lange Halbwertszeit bleibt es lange proliferationsrelevant. IAEO Safeguards Maßnahmen sind unabdingbar.
- Das Proliferationsrisiko von **Neptunium** kann aufgrund der mit 65 kg im militärisch akzeptablen Bereich liegenden Kritischen Masse ebenfalls als hoch eingeschätzt werden. Die mit 2,1 Millionen Jahren

sehr lange Halbwertszeit und die damit einhergehende kaum vorhandene Spontanspaltungsrate führen dazu, dass Neptunium ebenfalls durch die IAEA überwacht werden muss.

- Kurz nach Entladung liegt die Kritische Masse von **Americium** bei über 200 kg, fällt allerdings stark auf ca. 100 kg nach 20 Jahren ab. Daher ist das Proliferationsrisiko von Americium zunächst geringer als jenes von Neptunium, steigt jedoch im Lauf der Lagerungszeit an. Die Spontanspaltungsrate liegt in einem für militärische Zwecke akzeptablen Bereich, weshalb die Americiumbestände überwacht werden müssen.
- Trotz der sehr kleinen Kritischen Masse liegt bei **Curium** durch die hohe Spontanspaltungsrate ein geringes Proliferationsrisiko vor. Auch eine Mischung aus **Americium und Curium** verändert die Spontanspaltungsrate kaum. In beiden Fällen wird es kaum möglich sein, eine Kernwaffe zu konstruieren.

Die Ergebnisse dieser Bewertungen sind in Tabelle 4.1 anschaulich zusammengefasst.

Tabelle 4.1: Übersicht der Bewertung des Proliferationsrisikos der verschiedenen Transurane. Die Bewertungsskala reicht von einem geringen (-) bis zu einem sehr hohen Proliferationsrisiko (+++).

Element	Proliferationsrisiko bei Entladung	Proliferationsrisiko bei Lagerung
Pu	+++	+++
Np	++	++
Am	+	++
Cm	-	-
Am + Cm	-	-

Es konnte damit eindeutig gezeigt werden, dass sich Neptunium und Americium aus Leichtwasserreaktoren für den Bau von Kernwaffen eignen. Spätestens wenn Partitionierung und Transmutation einen industriellen Maßstab erreicht haben, müssen diese Bestände durch die IAEA überwacht werden. Safeguards Maßnahmen wie bei Plutonium sind notwendig. Damit können die Ergebnisse anderer Studien bestätigt werden. Insbesondere ein Zitat aus dem 2004 veröffentlichten IAEA-Report *Implications Of Partitioning And Transmutation In Radioactive Waste Management* muss betont werden:

„The long term impact of P&T on nuclear non-proliferation could become significant and extensive when the application of a P&T cycle reaches

the industrial scale. It would involve institutional arrangements (political, legal and commercial) and IAEA safeguards“ (IAEO, 2004).

Nachdem das Proliferationsrisiko der Transurane aus Leichtwasserreaktor-Brennelementen eingeschätzt wurde, sollten in Zukunft weitere Berechnungen für schnelle Reaktoren angestrengt werden. Diese sind von großem Interesse, da sie essentiell bei der industriellen Nutzung von P&T sein werden.

Bei zukünftigen Berechnungen könnten zudem weitere Kombinationen Minorer Actinoide simuliert werden. In dieser Arbeit wurde bereits das besonders leicht anfallende Gemisch aus Americium und Curium betrachtet, allerdings sind bei der Partitionierung auch weitere Zusammensetzungen Minorer Actinoide denkbar. Hierfür wird eine intensive Auseinandersetzung mit der Partitionierung und den chemischen Eigenschaften der entsprechenden Elemente notwendig.

Der in dieser Arbeit ausgeklammerte Aspekt des effektiven Nutzens von P&T wird zukünftig im Mittelpunkt vieler Veröffentlichungen stehen. Die Umweltverträglichkeit dieser Technik im Hinblick auf die Endlagerungsproblematik bedarf einer umfassenden Bewertung. Hierfür sind präzise Langzeit-Sicherheitsanalysen und -maßstäbe notwendig.

Literaturverzeichnis

- Albright, D. und K. Kramer (2005): Neptunium 237 and Americium: World Inventories and Proliferation Concerns. *Institute For Science and International Security (ISIS), Washington, USA*. http://www.isis-online.org/uploads/isis-reports/documents/np_237_and_americium.pdf (aufgerufen am 01.12.2015).
- Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz, Bau und Reaktorsicherheit (2015): Programm für eine verantwortungsvolle und sichere Entsorgung bestrahlter Brennelemente und radioaktiver Abfälle (Nationales Entsorgungsprogramm). http://www.bmub.bund.de/fileadmin/Daten_BMU/Download_PDF/Nukleare_Sicherheit/nationales_entsorgungsprogramm_aug_bf.pdf (aufgerufen am 01.12.2015).
- Clayton, E. D. (1973): Fissionability and Criticality: From Protactinium to Californium and Beyond. *Nuclear Science and Engineering*, 52:417–420.
- Die Welt (2009): Jährlich anfallende Menge an Atommüll nach ausgewählten Ländern weltweit im Jahr 2009 (in Tonnen). <http://de.statista.com/statistik/daten/studie/167241/umfrage/jaehrlich-produzierte-menge-an-atommuell-in-ausgewaehlten-discretionary-laendern> (aufgerufen am 18.11.2015).
- Emendörfer, D. und K. H. Höcker (1969): *Theorie der Kernreaktoren*. Bibliographisches Institut AG, Mannheim, 1. Aufl.
- Glasstone, S. und L. M. Redman (1972): An Introduction To Nuclear Weapons. *U.S. Atomic Energy Commission*. <https://nige.files.wordpress.com/2009/10/glasstone-introduction-to-nuclear-weapons-72b.pdf> (aufgerufen am 01.12.2015).
- Goluoglu, S.; L. M. Petrie; M. E. Dunn; D. F. Hollenbach und B. T. Rearden (2011): Monte Carlo Criticality Methods And Analysis Capabilities in SCALE. *Nuclear Technology*, 174:214–235.

- Hafner, P. und W. Winkelmann (2002): Kernsprengstoffe aus nuklearem Abfall? *Fraunhofer INT Jahresbericht 2001/2*, S. 56–63.
- Hahn, O. und F. Straßmann (1939): Über den Nachweis und das Verhalten der bei der Bestrahlung des Urans mittels Neutronen entstehenden Erdalkalimetalle. *Die Naturwissenschaften*, 27(1):11–15.
- Hansen, W. (2006): Skript zur Vorlesung Grundlagen der Reaktorphysik. Technische Universität Dresden.
- IAEO (2004): *Implications of Partitioning and Transmutation in Radioactive Waste Management*. Technischer Bericht Nr. 435, International Atomic Energy Agency (IAEA).
- Kang, J. und F. von Hippel (2005): Limited Proliferation-Resistance Benefits from Recycling Unseparated Transuranics and Lanthanides from Light-Water Reactor Spent Fuel. *Science and Global Security*, 13:169–181.
- Kirchner, G. (2015): persönliche Mitteilung. *Universität Hamburg*.
- Lamarsh, J. R. und A. J. Baratta (2001): *Introduction to Nuclear Engineering*. Prentice-Hall, Upper Saddle River, New Jersey, USA, 3. Aufl.
- Lide, D. R. (2004): *Handbook of Chemistry and Physics*. CRC Press, Boca Raton, Florida, USA, 84. Aufl.
- Magill, J. und P. Perrani (1999): (Non-) Proliferation Aspects of Accelerator Driven Systems. *Journal de Physique IV*, 9(7):167–181.
- Mark, J. C. (1993): Explosive Properties of Reactor-Grade Plutonium. *Science and Global Security*, 4:111–128.
- Mueller, A. C. und H. A. Abderrahim (2010): Transmutation von radioaktivem Abfall. *Physik Journal*, 9(11):33–38.
- NPT (1977): Treaty on the Non-Proliferation of Nuclear Weapons (NPT). <http://www.un.org/disarmament/WMD/Nuclear/NPT.shtml> (aufgerufen am 19.11.2015).
- Oldekop, W. (1975): *Einführung in die Kernreaktor- und Kernkraftwerkstechnik - Teil I- Kernphysikalische Grundlagen - Reaktorphysik - Reaktordynamik*. Verlag Karl Thiernig, München, 1. Aufl.
- Reed, B. C. (2015): *The Physics of the Manhattan Project*. Springer Verlag, Berlin, 3. Aufl.

- Scale (2011): *Scale: A Comprehensive Modeling and Simulation Suite for Nuclear Safety Analysis and Design*. ORNL/TM-2005/39, Version 6.1, Juni 2011. Verfügbar beim Radiation Safety Information Computational Center am Oak Ridge National Laboratory als CCC-785.
- Schmidt, G.; G. Kirchner und C. Pistner (2013): Endlagerproblematik - Können Partitionierung und Transmutation helfen? *Technikfolgenabschätzung - Theorie und Praxis*, 22(3):52–58.
- Serber, R. (1992): *The Los Alamos Primer - The First Lectures on How To Build An Atomic Bomb*. University of California Press, Berkeley, USA.
- Thomas, W.; W. Weber und W. Heinicke (1970 - 1973): *Handbuch zur Kritikalität*. Laboratorium für Reaktorregelung und Anlagensicherung, Garching bei München.
- Tipler, P. A. und G. Mosca (2015): *Physik für Wissenschaftler und Ingenieure*. Springer Spektrum, Heidelberg, 7. Aufl.

Anhang A

Kritische Gleichung aus der Diffusionstheorie

Ausgehend von Kapitel 2.3.3 wird im Folgenden die monoenergetische Diffusionstheorie betrachtet. Dabei wird nur eine einzige Neutronenenergie berücksichtigt, und es werden alle benötigten Werte für diese Energie gemittelt. Präziser wäre eine Theorie, bei der die Neutronenenergie in mehrere Energiebereiche eingeteilt wird, allerdings ist diese wesentlich schwieriger analytisch zu lösen. Außerdem ist bei der Kernspaltung vor allem das schnelle Spaltspektrum von Interesse und in diesem Bereich sind die Wirkungsquerschnitte relativ konstant. Daher wird von einer Neutronenenergie von 2 MeV ausgegangen, der mittleren Energie eines durch Spaltung freigesetzten Neutrons (vgl. Abbildung 2.2).

Die hier gemachten Berechnungen gehen von einer isotropen Streuung der Neutronen an den Kernen aus. Es lässt sich allerdings beobachten, dass bei hohen Energien eine Streuung der Neutronen in kleinen Winkeln zur Flugrichtung bevorzugt wird (Reed, 2015). Dies kann in diesem Fall vernachlässigt werden, da dieser Effekt bei schweren Kernen sehr gering ist (Oldekop, 1975). Daraus ergibt sich, dass der Transportwirkungsquerschnitt, welcher den totalen vermindert um den elastischen Streuungswirkungsquerschnitt beschreibt, gleich dem totalen Wirkungsquerschnitt für Neutronen gesetzt wird ($\sigma_{Transport} = \sigma_{total}$).

Im Folgenden wird von einer Kugel aus reinem Spaltmaterial im unendlichen homogenen Medium als Geometrie ausgegangen. Die Herleitung folgt (Reed, 2015).

Mit Hilfe der Diffusionstheorie ergibt sich für die zeitabhängige Neu-

tronendichte n_n in einer Kugel die Beziehung

$$\frac{\partial n_n}{\partial t} = \underbrace{\frac{v_n}{\mu_f}(\nu - 1)n_n(r, t)}_{\text{Erzeugte Neutronen}} + \underbrace{\frac{\mu_t v_n}{3}(\nabla^2 n_n(r, t))}_{\text{Neutronenausfluss}}. \quad (\text{A.1})$$

Diese Gleichung wird im Anhang G von Reed (2015) erklärt, wobei die Herleitung dort von Serber (1992) inspiriert wurde. Hier bezeichnet v_n die mittlere Geschwindigkeit der Neutronen, ν die im Mittel pro Spaltprozess emittierten Neutronen, μ_t die totale und μ_f die mittlere freie Spaltungsweglänge. Der erste Term der Gleichung gibt die im Medium erzeugten Neutronen an, der zweite Term beschreibt den Neutronenausfluss aus der Kugel. Aufgrund der Kugelsymmetrie reduziert sich der Laplace-Operator auf die radiale Komponente in Kugelkoordinaten:

$$\nabla_r^2 = \frac{1}{r^2} \frac{\partial}{\partial r} \left(r^2 \frac{\partial}{\partial r} \right). \quad (\text{A.2})$$

Mit der Annahme, dass die Lösung für die raum- und zeitabhängige Neutronendichte in der Form $n_n(r, t) = n_{n,r}(r)n_{n,t}(t)$ darstellbar ist, kann die Gleichung A.1 als

$$\frac{1}{n_{n,t}} \left(\frac{\partial n_{n,t}}{\partial t} \right) = \left(\frac{\nu - 1}{\tau} \right) + \frac{D}{n_{n,r}} \left[\frac{1}{r^2} \frac{\partial}{\partial r} \left(r^2 \frac{\partial n_{n,r}}{\partial r} \right) \right] \quad (\text{A.3})$$

geschrieben werden. Hier wurde der Diffusionskoeffizient

$$D = \frac{\mu_t v_n}{3} \quad (\text{A.4})$$

und die mittlere Zeit, in welcher ein Neutron ein Atom spaltet,

$$\tau = \frac{\mu_f}{v_n} \quad (\text{A.5})$$

eingefügt. Die Lösung der Differentialgleichung A.3 lässt sich durch Trennung der Variablen mithilfe der Trennungvariable a/τ als

$$n_{n,t}(t) = n_{n,0} e^{(a/\tau)t} \quad (\text{A.6})$$

bestimmen. Dabei ist $n_{n,0}$ die Neutronendichte im Kern der Vollkugel zum Zeitpunkt $t = 0$. Indem der rechte Teil der Gleichung A.3 gleich der Trennungvariable a/τ gesetzt wird, lässt sich diese Gleichung als

$$\frac{1}{d^2} + \frac{1}{n_{n,r}} \left[\frac{1}{r^2} \frac{\partial}{\partial r} \left(r^2 \frac{\partial n_{n,r}}{\partial r} \right) \right] = 0 \quad (\text{A.7})$$

mit der charakteristischen Länge

$$d = \sqrt{\frac{\mu_f \mu_t}{3(-a + \nu - 1)}} \quad (\text{A.8})$$

schreiben. Es kann nun eine dimensionslose Größe x als

$$x = \frac{r}{d} \quad (\text{A.9})$$

definiert werden. Damit lässt sich zeigen, dass die Lösung der Differentialgleichung A.7 mit

$$n_{n,r}(r) = \left(\frac{\sin(x)}{x} \right) \quad (\text{A.10})$$

gegeben ist. Diese Lösung kann für die Neutronendichte in die Gleichung A.7 eingesetzt werden. Weiterhin bedarf es einer Randbedingung, um den kritischen Radius R_c bestimmen zu können. Diese Randbedingung ist nach Serber (1992) mit

$$n_n(R_c) = -\frac{2\mu_t}{3} \left(\frac{\partial n_n}{\partial r} \right)_{R_c} = -\frac{2\mu_t}{3d} \left(\frac{\partial n_n}{\partial x} \right)_{R_c} \quad (\text{A.11})$$

gegeben. Diese Beziehung beschreibt den Neutronenfluss an der Oberfläche der Kugel. Mithilfe dieser Randbedingung, der Substitution A.9 und der Neutronendichte A.10 lässt sich die Gleichung A.7 in der Form

$$x \cot(x) + \epsilon x - 1 = 0 \quad (\text{A.12})$$

mit

$$\epsilon = \frac{3d}{2\mu_t} \quad (\text{A.13})$$

darstellen. Die Gleichung A.12 wird im Folgenden als *Cotangens-Gleichung* bezeichnet. Diese muss nach $r = R_c$ aufgelöst werden, um den kritischen Radius mit $k = 1$ zu bestimmen. Dies ist analytisch nicht möglich. Wenn man die Variable a null setzt, lässt sich numerisch eine Lösung finden. Dafür wird x so gewählt, dass die Cotangens-Gleichung gegen Null läuft, wobei $x = 0$ keine sinnvolle Lösung darstellt.

Anhang B

KENO Eingabedatei

Code B.1: Beispiel für eine KENO-V.a Eingabedatei. Diese wurde für die Suche mittels CSAS5S nach dem Kritischen Radius einer Plutoniumkugel genutzt.

```
=csas5s
vollkugel simulationen fuer kritischen radius
v6-238
read composition
wtptPu      1  19.7  6
              94236  5.04698e-08
              94238  0.00297
              94239  98.20636
              94240  1.71454
              94241  0.0757
              94242  0.0004299495
              1  293  end
end composition
read parameter
npg=30000
htm=yes
end parameter
read geometry
global unit 1
com="vollkugel"
sphere 1 1      4
end geometry
end data
read search
critical dimension
```

```
more
alter
    +con=0.5
    -con=-0.5
    unit=1
    region=1
    radius=1
end search
end
```

Anhang C

Mikroskopische Wirkungsquerschnitte

Die folgenden Grafiken wurden mit dem Programm *Javapeno* erstellt. *Javapeno* (Java Plots Especially Nice Output) ist Teil der SCALE 6.1 Umgebung und greift auf die Wirkungsquerschnitte der ENDF/B-VI und ENDF/B-VII Datenbanken für einen kontinuierlichen Energiebereich zurück. In den folgenden Abbildungen ist der mikroskopische Spaltungswirkungsquerschnitt verschiedener Isotope dargestellt.

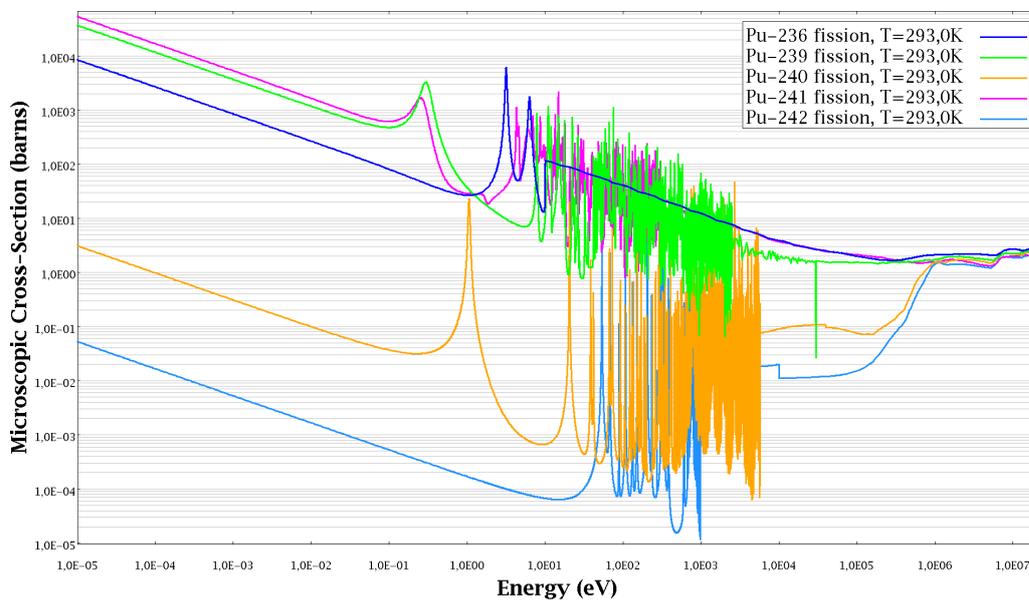


Abbildung C.1: Übersicht der mikroskopischen Wirkungsquerschnitte für verschiedene Plutoniumisotope. Die Daten sind der ENDF/B-VII Datenbank entnommen.

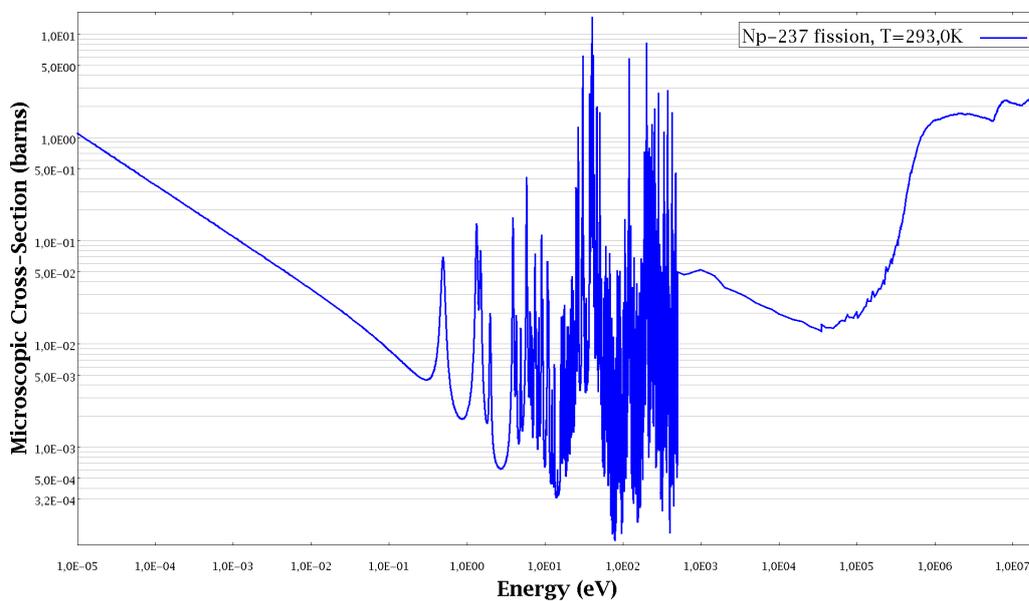


Abbildung C.2: Übersicht der mikroskopischen Wirkungsquerschnitte für Neptunium-237. Die Daten sind der ENDF/B-VII Datenbank entnommen.

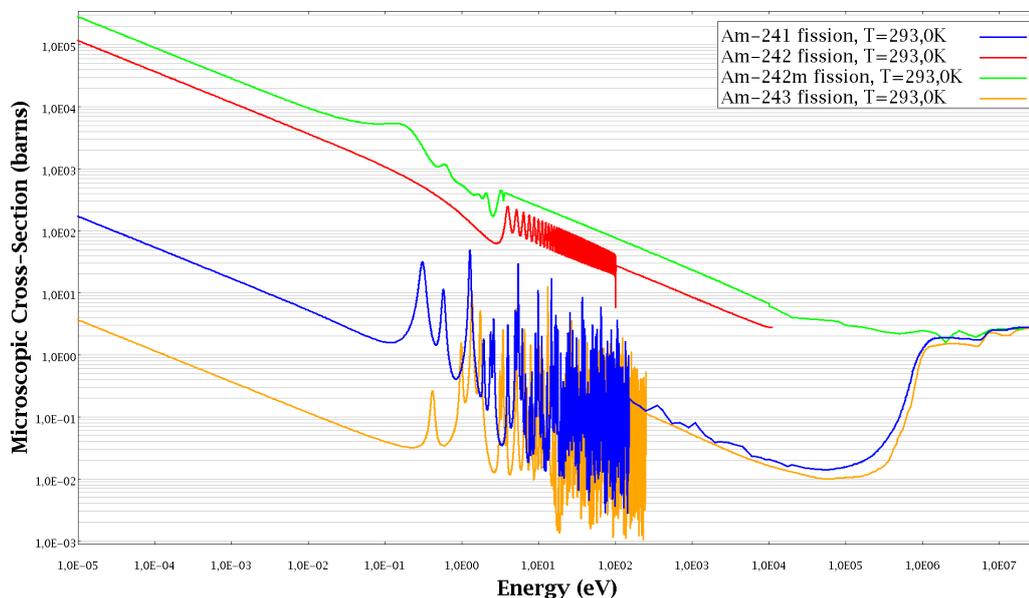


Abbildung C.3: Übersicht der mikroskopischen Wirkungsquerschnitte für verschiedene Americiumisotope. Die Daten sind der ENDF/B-VI Datenbank entnommen.

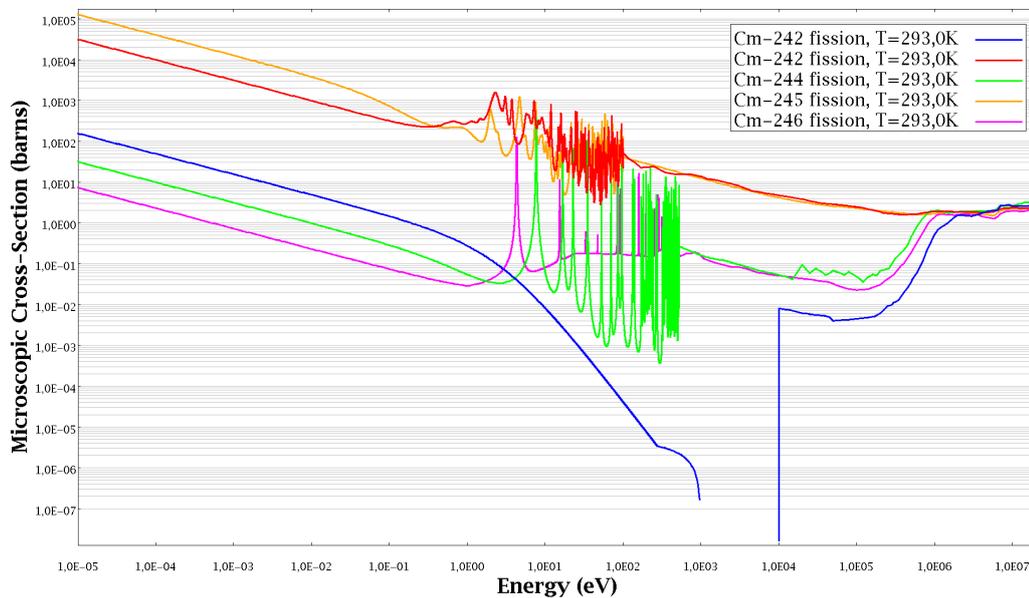


Abbildung C.4: Übersicht der mikroskopischen Wirkungsquerschnitte für verschiedene Curiumisotope. Die Daten sind der ENDF/B-VI Datenbank entnommen.

Anhang D

Halbwertszeiten einiger Isotope

Tabelle D.1: Übersicht der Halbwertszeiten verschiedener Isotope. Die Daten stammen aus der ENDF/B-VI.8 Datenbank.

Isotop	$T_{1/2}$ [a]
Np-237	$(2,14 \pm 0,01) \times 10^6$
Pu-236	$(2,90 \pm 0,10)$
Pu-238	$(8,77 \pm 0,03) \times 10^1$
Pu-239	$(2,41 \pm 0,01) \times 10^4$
Pu-240	$(6,56 \pm 0,01) \times 10^3$
Pu-241	$(1,44 \pm 0,01) \times 10^3$
Pu-242	$(3,73 \pm 0,01) \times 10^5$
Am-241	$(4,33 \pm 0,01) \times 10^2$
Am-242	$(1,83 \pm 0,01) \times 10^{-3}$
Am-242m	$(1,41 \pm 0,02) \times 10^2$
Am-243	$(7,37 \pm 0,01) \times 10^3$
Cm-242	$(4,46 \pm 0,01) \times 10^{-1}$
Cm-243	$(2,85 \pm 0,02) \times 10^1$
Cm-244	$(1,81 \pm 0,01) \times 10^1$
Cm-245	$(8,50 \pm 0,20) \times 10^3$
Cm-246	$(4,73 \pm 0,10) \times 10^3$

Danksagung

Ich möchte mich bei Gerald Kirchner für seine exzellente Betreuung dieser Arbeit bedanken. Er hat sich fortwährend viel und oftmals kurzfristig Zeit für meine kleinen und großen Anliegen genommen. Von ihm habe ich viel über Neutronen- und Reaktorphysik gelernt. Durch ihn und das Zentrum für Naturwissenschaft und Friedensforschung (ZNF) hatte ich seit Studienbeginn Gelegenheit mich mit naturwissenschaftlicher Friedensforschung zu beschäftigen. Dies hat mir eine Welt eröffnet, von deren Existenz ich ansonsten nicht einmal gewusst hätte.

Meine Dank gilt Markus Kohler für seine hilfreichen Anmerkungen zu verschiedenen Teilen meiner Arbeit und für seine Zeit, sich mit speziellen kernphysikalischen Themen auseinander zu setzen.

Weiterhin danke ich Frederik Postelt. Von ihm habe ich bereits vor Beginn der Bachelorarbeit im Rahmen meiner Tätigkeit als studentische Hilfskraft viel über Kernphysik gelernt.

Anna Heise und Carsten Sieveke möchte ich für das kritische Lesen meiner Arbeit und die resultierende hilfreiche Resonanz danken.

Ich bedanke mich außerdem bei Simon Hebel, Marlen Kruse und Robert Steinbeck für nicht immer relevante, aber stets fröhliche Unterhaltungen.

Liane und meiner Mutter möchte ich für Unterstützung im Umgang mit der deutschen Rechtschreibung herzlich danken.

Abschließend gilt mein Dank allen weiteren Mitarbeitern des ZNF für ihre Unterstützung und für schöne gemeinsame Momente.

Vielen Dank!