



Universität Hamburg

DER FORSCHUNG | DER LEHRE | DER BILDUNG



Neutronenphysikalische Simulation des Radioxenonaufbaus in Druckwasserreaktoren in Abhängigkeit von den verwendeten Brennstoffen

Diplomarbeit

Universität Hamburg

Fachbereich Physik

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

von

Thomas Gniffke

Matrikelnummer: 5805892

Hamburg, 3. November 2016

Referenten

Referent: Prof. Dr. Gerald Kirchner

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

Korreferent: Prof. Dr. Götz Neuneck

Institut für Friedensforschung und Sicherheitspolitik
an der Universität Hamburg (IFSH)

Erklärung

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

Mit einer Veröffentlichung dieser Arbeit erkläre ich mich einverstanden.

Thomas Gniffke
3. November 2016

Abstract

The ratification of the Comprehensive Nuclear Test Ban Treaty (CTBT) remains challenged by doubts about the ability to detect underground nuclear testing. In this case the radioactive particles indicating a nuclear explosion remain contained underground. Possible verification of a nuclear explosion is thus dependend on radioactive noble gases produced during fission, which can migrate to the atmosphere due to their high volatility. The same process occurs in civilian nuclear power plants as well, therefore an applicative discrimination method is required to distinguish between the origins of those gases. For that purpose Kalinowski und Pistner in 2006 proposed the comparison of radioxenon activity ratios [MBK06], a method currently adopted by the CTBTO. The recommended screening line is based on calculations for radioxenon buildup in pressurized water reactors (PWRs) using uranium-based fuel assemblies, compared to the expected emissions of nuclear testing.

The aim of this thesis is to complement those calculations by simulating the radioxenon buildup in PWRs using mixed oxide fuel (MOX), utilizing the SAS2 driver from the SCALE 5.1 software package developed at the Oak Ridge National Laboratory (US). In a first step suitable input parameters are determined by burnup calculations for uranium based fuel assemblies. Based on those paramteres simulations of radioxenon buildup within MOX assemblies for various enrichments and isotopic compositions have been performed.

The comparison of those simulations with the calculations for uranium based fuel shows a significantly higher activity ratio of Xenon 135 to Xenon 133. This effect is caused by the hardened neutron spectrum, whereby the strong thermal neutron absorber Xenon 135 is depleted in a lesser amount. This effect is ruled unproblematic for the validity of the verification method, because the values to be measured for verification of the CTBT are not moved closer to the discrimination line.

Zusammenfassung

Ein politisches Hindernis für die Ratifikation des Comprehensive Nuclear Test Ban Treaty (CTBT) sind Zweifel an der Detektierbarkeit unterirdischer Atomtests, da in diesem Fall die für den Nachweis einer nuklearen Explosion notwendigen radioaktiven Partikel unterirdisch gebunden bleiben. Zur Verifikation ist man daher auf radioaktive Edelgase angewiesen, die als Spaltprodukte auftreten und wegen ihrer hohen Flüchtigkeit in die Atmosphäre migrieren. Da diese auch bei der Kernspaltung in zivilen Reaktoren erzeugt werden, ist ein geeigneter Unterscheidungsmechanismus zu finden, um die Produktionsquellen der Edelgase zu unterscheiden. Zu diesem Zweck wurde von Kalinowski und Pistner 2006 der Vergleich der Verhältnisse von Radioxenonisotopen vorgeschlagen [MBK06], eine Methode die inzwischen von der CTBTO implementiert wurde. Die vorgestellte Diskriminationslinie beruht dabei auf Berechnungen für die Produktion von Radioxenon bei der Verwendung von Uranbrennelementen in Druckwasserreaktoren (DWRs), die mit den zu erwartenden Emissionen von nuklearen Tests verglichen wurden.

Das Ziel der vorliegenden Arbeit ist die Ergänzung der Simulationen für den Radioxenonaufbau bei der Verwendung von Plutoniummischoxid(MOX)-Brennelementen in DWRs. Unter Verwendung der Programmroutine SAS2 aus dem Softwarepaket SCALE 5.1 des Oak Ridge National Laboratory (USA) werden dafür zunächst geeignete Eingabeparameter anhand von Abbrandrechnungen für Uranbrennelemente identifiziert. Anschließend wird der Radioxenonaufbau innerhalb von MOX-Brennelementen unter Verwendung verschiedener Anfangsanreicherungen und Isotopenvektoren bestimmt.

Der Vergleich mit den Berechnungen für Uranbrennstoff zeigt dabei ein signifikant erhöhtes Verhältnis der Aktivitätsraten von Xenon 135 zu Xenon 133 an. Ursache ist das durch die Verwendung von MOX gehärtete Neutronenspektrum, wodurch weniger thermische Neutronen für den Abbau des starken Neutronenabsorbers Xenon 135 zur Verfügung stehen. Dieser Effekt erweist sich jedoch als unproblematisch hinsichtlich die Verifikationsmethode, da er die zu erwartenden Messwerte nicht in Richtung der Diskriminierungslinie verschiebt.

Inhaltsverzeichnis

1. Einführung	1
2. Physikalische Grundlagen der Kernenergieerzeugung	7
3. Vorstellung der Berechnungsmethodik und der Programmroutine SAS2	15
3.1. Vorstellung der Näherungsmethoden	15
3.2. Vorstellung der Arbeitsweise der verwendeten SAS2-Routine aus dem Paket SCALE 5.1	20
4. Vorstellung der Simulationen und ihrer Ergebnisse	23
4.1. Vorüberlegungen	23
4.2. Geometrie des Brennelements	26
4.3. Abbrandrechnungen für Uranbrennelemente	27
4.3.1. Variation der Zeitintervalle pro Reaktorzyklus	27
4.3.2. Vergleich des Einflusses von Strukturmaterialien bei verschie- denen Anreicherungen	29
4.3.3. Variationen der Moderatorordichte	30
4.3.4. Übersicht der Folgerungen	31
4.4. Radionuclidinventare aus MOX-Brennelementen	31
4.4.1. Eingabedaten	31
4.4.2. Vergleich mit Ergebnissen bei Uranbrennstoff	32
4.4.3. Vergleich mit Daten von Kalinowski/Pistner	40
5. Zusammenfassung und Ausblick	43
A. Anhänge	45
A.1. Zusammensetzung Strukturmaterialien	45
A.2. Eingabedateien für SAS2	46
A.2.1. Eingabedatei Uranbrennelement	46
A.2.2. Eingabedatei MOX-Brennelement	48

Abbildungsverzeichnis

1.1.	Standorte des IMS-Netzwerkes	3
1.2.	Kalinowski-Pistner Graph	4
2.1.	Bindungsenergie pro Nukleon in Abhängigkeit von der Massezahl	7
2.2.	Patentzeichnung für ein DWR-Brennelement	10
2.3.	Schema für ein 17x17 Brennelement	11
2.4.	Schema eines Druckwasserreaktors	12
3.1.	Energieabhängiger Wirkungsquerschnitt von Uran235	15
3.2.	Brennstabgitter mit Einheitszelle	17
3.3.	Flussdiagramm des Programmablaufs der SAS2-Routine	21
3.4.	Erzeugung der zeitabhängigen Wirkungsquerschnittsbibliotheken	22
4.1.	Näherung für den Borsäuregehalt über einen Reaktorzyklus	24
4.2.	U237 in Abhängigkeit von der Bibliothekenzahl	28
4.3.	Pu240 in Abhängigkeit von der Bibliothekenzahl	28
4.4.	Pu237 in Abhängigkeit der Bibliothekenzahl	28
4.5.	Cs134 Moderatordichtevariation	30
4.6.	U235 Moderatordichtevariation	30
4.7.	U238 Moderatordichtevariation	30
4.8.	Pu239 Moderatordichtevariation	30
4.9.	MOX-Isotopenvektoren	33
4.10.	Neutronenfluss für MOX Vergleich zu Uran	34
4.11.	Vergleich der Spaltwirkungsquerschnitte für verschiedene Isotope	35
4.12.	Wirkungsquerschnitte Plutonium	36
4.13.	Neutronenfluss für MOX	36
4.14.	Verhältnis Konzentrationen Xe133m/Xe131m	37
4.15.	Verhältnis Konzentrationen Xe133m/Xe131m Ausschnittvergrößerung	38
4.16.	Verhältnis Konzentrationen Xe135/Xe133	39
4.17.	Vergleich mit Simulationsergebnissen Kalinowski/Pistner	40
4.18.	Vergrößerung Gleichgewichtszustand Vektoren (1),(3),(5)	41
4.19.	Vergrößerung Gleichgewichtszustand Vektoren (2),(4)	42

Tabellenverzeichnis

1.1.	Verifikationsstand CTBT	1
1.2.	Status International Monitoring System IMS	2
4.1.	Geometriedaten Brennelement BE 18-24	26
4.2.	Reaktorkonditionen für Uranabbrandrechnungen	27
4.3.	Variation Pu237	29
4.4.	Einfluss Strukturmaterialien (LE)	29
4.5.	Verwendete Isotopenvektoren für Plutonium in MOX-Brennelementen	33
4.6.	Herkunft des Plutoniums für MOX-Abbrandrechnungen	33
4.7.	Kumulative Spaltausbeuten von U235 und Pu239	37
A.1.	Eingabedaten leichte Elemente aus Strukturmaterialien	45

1. Einführung

Tests von Nuklearwaffen spielen eine entscheidende Rolle sowohl bei der horizontalen (Neuentwicklung) als auch vertikalen (Weiterentwicklung) Proliferation von atomaren Arsenalen. Beginnend mit dem Trinity-Test der Vereinigten Staaten am 16. Juli 1945 wurden bis zum Jahre 2000 insgesamt 2419 Nuklearwaffentests durchgeführt, von denen 1876 unterirdisch stattfanden [UN00]. Nordkorea hat bekannt gegeben, 2006, 2009, 2013 und 2016 insgesamt fünf weitere Tests unternommen zu haben. Die meisten Test fallen in die Phase des Rüstungswettlaufs während des Kalten Krieges. Nach dem Höhepunkt der Testaktivitäten im Jahr 1962 wurde im Folgejahr der erste Vertrag zur Begrenzung von Nukleartests abgeschlossen, um sowohl den Rüstungswettlauf zu bremsen als auch die Strahlenbelastung für die Umwelt zu reduzieren. In diesem „Partial Test Ban Treaty“ verpflichteten sich die USA, die UdSSR und Großbritannien dazu, keine überirdischen Kernwaffentests durchzuführen. Einen wesentlich umfassenderen Ansatz verfolgt der „Comprehensive Test Ban Treaty“ von 1996, der sämtliche nuklearen Explosionen verbietet (auch solche, die als zivil deklariert werden). Der Vertrag ist noch nicht in Kraft, da bis heute nicht alle im Annex 2 des Vertragswerkes aufgeführten Staaten (die 47 Staaten, die zum Zeitpunkt der Vertragsformulierung über entwickelte nukleare Kapazitäten verfügten) das Abkommen ratifiziert¹ haben, darunter Atomkräfte wie die USA, Russland und China. Der aktuelle Stand ist in Tabelle 1.1 zusammengefasst.

Anzahl Mitgliedsstaaten	183
Anzahl Ratifikationen	166
Ratifizierungen durch Annex2-Staaten	36
Neuester Unterzeichnerstaat	Niue
Neueste Ratifizierung	Myanmar

Tabelle 1.1.: Verifikationsstand CTBT [CTB16]

Zur Verifikation des Vertrages ist ein umfangreiches, weltweites Netzwerk an Messstationen für verschiedene Detektionstechnologien (*International Monitoring System, IMS*) vorgesehen, das von einer für die Überwachung des Vertrags bei den Vereinten Nationen einzurichtende „Comprehensive Test Ban Treaty Organization“ CTBTO betrieben werden soll. Da der Vertrag noch nicht in Kraft ist, werden Aufbau und Wartung des Netzwerkes sowie die Datensammlung und -auswertung derzeit

¹ Während die Unterzeichnung eines internationalen Vertrages durch die Regierung (Exekutive) stattfindet und für die Nennung als „Mitgliedsstaat“ ausreicht, müssen die Verträge in Staaten mit Gewaltenteilung zusätzlich durch die nationalen Parlamente (Legislative) ratifiziert werden, bevor sie rechtsgültig werden.

von einer „CTBTO Preparatory Commission“ durchgeführt. De facto ist das Verifikationsnetzwerk inzwischen praktisch fertiggestellt, wie Tabelle 1.2 und Abbildung 1.1 zeigen.

Zertifizierte Stationen	283
Fertiggestellt, noch nicht zertifiziert	19
In Konstruktion	17
Noch in Planung	18

Tabelle 1.2.: Status International Monitoring System IMS [CTB16]

Ich möchte nun im Folgenden die Verifikationstechniken kurz vorstellen, um zu verdeutlichen, aus welchem Teilbereich die Motivation für diese Arbeit stammt, und die Fragestellung entsprechend einzuordnen.

Die Technologien lassen sich grob in zwei Gruppen einteilen:

1. Die sogenannten „waveform technologies“ dienen der Lokalisierung eines möglichen Tests. Dafür werden die Schockwellen der Explosion gemessen, die diese in der Luft, dem Erdboden und im Ozean erzeugen. Für jedes Transportmedium gibt es eigene Messstationen, doch da diese Technologien nicht Gegenstand dieser Arbeit sind, werden sie hier nicht näher vorgestellt. Eine gute Übersicht bietet die Internetpräsenz der CTBTO unter <https://www.ctbto.org/>.
2. Die Radionuklidmesstechniken sind notwendig, um den nuklearen Charakter einer Explosion nachweisen zu können. Ihre Rolle wird zuweilen mit der Methode verglichen, die Schmauchspuren einer rauchenden Pistole aufzufinden. Dafür sammeln 80 über den Globus verteilte Stationen mit Luftfiltern radioaktive Partikel. Die Filter werden alle 24 Stunden gewechselt und zur Analyse in das „International Data Centre“ der CTBTO in Wien geschickt. 40 dieser Stationen sind zusätzlich mit Detektoren für das Edelgas Xenon ausgerüstet, die getrennt von den Filteranlagen arbeiten und ihre Daten stündlich übermitteln.

Die Detektion von Radioxenon ist von besonderer Bedeutung für das Aufdecken unterirdischer Tests. Diese waren auch deshalb nicht im „Partial Test Ban Treaty“ enthalten, weil es Zweifel an der Verifikationsfähigkeit eines Verbots unterirdischer Tests gab (und gibt), bleiben doch die während der Durchführung anderer Testarten freigesetzten Partikel bei diesen Tests eingeschlossen. Edelgase hingegen sind chemisch inert und kondensieren erst bei sehr niedrigen Temperaturen, weshalb sie äußerst flüchtig sind. Daher diffundieren nach unterirdischen atomaren Explosionen die als Spaltprodukte auftretenden Edelgasisotope an die Oberfläche und gelangen über die Atmosphäre zu den Messstationen.

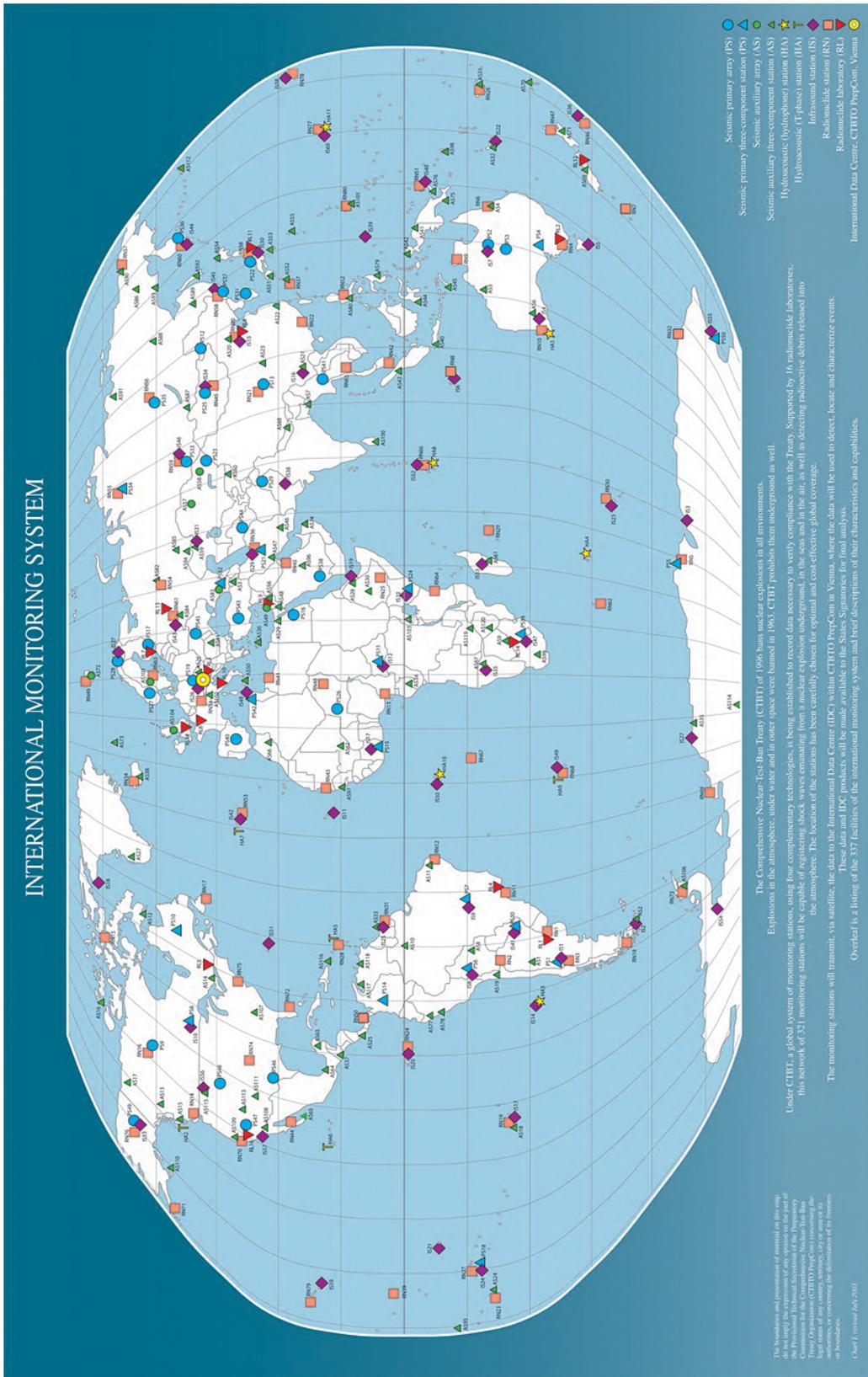


Abbildung 1.1.: Standorte des IMS-Netzwerkes, Radionuklidstationen sind durch orangene Quadrate repräsentiert [CTB16]

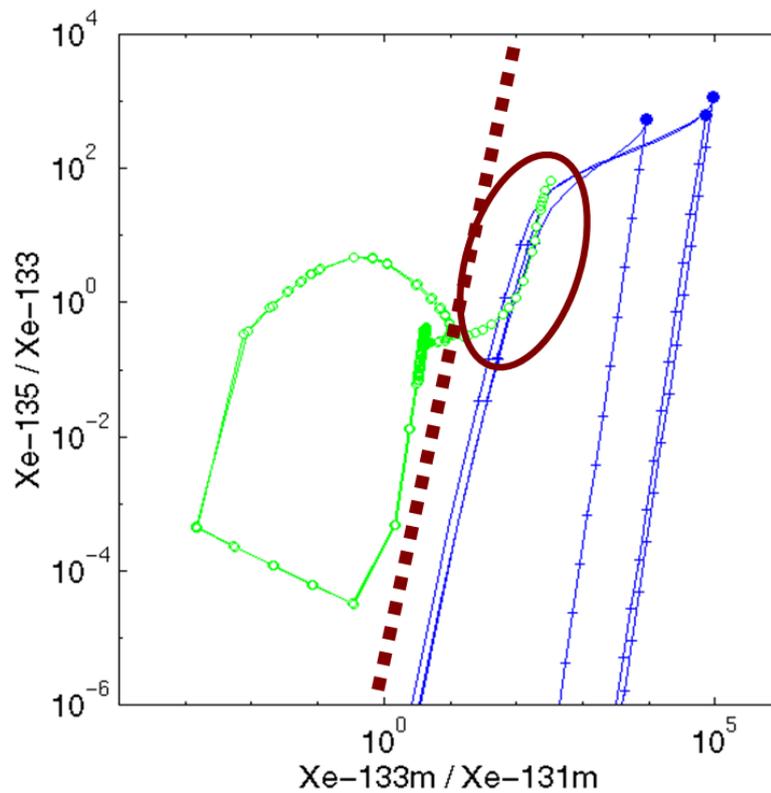


Abbildung 1.2.: Verhältnisse der simulierten Aktivitätsraten von Xe_{135}/Xe_{133} zu Xe_{133m}/Xe_{131m} für AKWs (grün) und atomare Tests (blau) mit vorgeschlagener Diskriminierungslinie [MBK06]

Radioxenonisotope entstehen bei jeder Kernspaltung von Uran oder Plutonium, bei einer atomaren Explosion ebenso wie in einem Kernkraftwerk. Damit die Emission eines Atomkraftwerks nicht als Anzeichen für einen Nukleartest gedeutet werden kann oder umgekehrt, muss untersucht werden, wie sich die zu erwartenden Isotopenkonzentrationen unterscheiden. Da die absoluten Werte von der Menge des verwendeten Spaltmaterials, dem Grad der Verdünnung bis zur Detektion und der vergangenen Zerfallszeit abhängig sind, wird das Verhältnis der Isotope untereinander über die Zeit betrachtet.

Wie Pistner und Kalinowski [MBK06] zeigen konnten, lässt sich für Druckwasserreaktoren mit Uranbrennstoff eine Trennlinie zwischen den zu erwartenden Radioxenonemissionen und denen eines atomaren Tests ziehen (siehe Grafik 1.2), wenn man den Quotienten von Xe_{135}/Xe_{133} zu dem aus Xe_{133m}/Xe_{131m} ins Verhältnis setzt. Die betreffenden Isotope kommen deshalb für die Detektion in Frage, weil sie mit Halbwertszeiten zwischen 9,1 Stunden und 11,8 Tagen langlebig genug sind, um nach der Dispersion durch Wind in einem entfernten Detektor messbar zu sein, und auch eine ausreichend hohe Spaltausbeute besitzen. Zugleich ist die Halbwertszeit aber auch kurz genug, um keine nennenswerten Konzentrationen in der natürlichen Luft erwarten zu lassen.

In Abbildung 1.2 repräsentieren die grünen Punkte die simulierte Entwicklung der Radioxenonverhältnisse über drei Reaktorzyklen, die blauen die Entwicklung für drei unterschiedliche Atomtests. Die linken Äste stehen dabei für die zu erwartende Entwicklung bei sofortiger Abtrennung der Edelgase von den übrigen Spaltprodukten. Nur in dem hervorgehobenen Bereich überschneiden sich die berechneten Linien. Die hier aufgetragenen Werte aus der Reaktorsimulation sind allerdings nur unmittelbar nach Inbetriebnahme eines Reaktors mit seinem Erstkern zu erwarten, im späteren Betrieb wird nach je einem Zyklus immer nur ein Teil der Brennelemente ausgewechselt. Diese zeitlich stark eingegrenzte Problematik wird im Folgenden daher ausgeklammert.

Als noch zu bearbeitende Fragestellung ist in der Arbeit von Pistner und Kalinowski unter anderem die Berechnung der zu erwartenden Radioxenonemissionen bei der Verwendung von Plutonium-Mischoxid-(kurz: MOX-)Brennelementen genannt. Diese Brennelemente verwenden das in Kernreaktoren während des Betriebs unweigerlich erzeugte Plutonium als Brennstoff, genauer: Das Plutonium ersetzt Uran235 als primäres Spaltmaterial. Entsprechend besteht auch ein MOX-Brennelement zu überwiegendem Teil aus Natururan oder abgereichertem Uran und nur zu wenigen Prozent² aus Plutonium.

In der vorliegenden Arbeit werden Berechnungen zur Bestimmung der Radioxenonkonzentrationen in MOX-Brennelementen in einem kommerziellen Druckwasserreaktor vorgestellt. Anlagen dieses Reaktortyps stellen derzeit 65 % der in Betrieb befindlichen Kernkraftwerke und produzieren knapp 70 % der genutzten Kernenergie [IAE16b]. Insofern wird trotz dieser Beschränkung ein Großteil der zu erwartenden Emissionen abgedeckt. Obwohl die Verwendung von Uranbrennstoff weiterhin die Regel darstellt, besteht die Möglichkeit, dass mit zunehmendem Abbau der leicht zugänglichen Uranvorkommen die Verwendung von Brennstoff aus der Wiederaufarbeitung zukünftig an Bedeutung gewinnt. Die weltweiten Herstellungskapazitäten für MOX betragen bereits zum jetzigen Zeitpunkt etwa 250 Tonnen (Schwermetall) pro Jahr. Die Fertigstellung der J-MOX Anlage in Japan mit einer jährlichen Kapazität von 130 Tonnen ist für 2019 vorgesehen [DG16]. In Anbetracht der hohen politischen Sensibilität der Verifikation nuklearer Tests ist eine Überprüfung des verwendeten Verfahrens zur Unterscheidung ziviler und nuklearer Radioxenonemissionen hinsichtlich der Verwendung von MOX-Brennstoffen daher von hohem Interesse.

In Kapitel 2 wird zunächst knapp in die physikalischen Grundlagen der Kernenergieerzeugung eingeführt, um die physikalische Aufgabenstellung zu erläutern. Daran schließt sich in Kapitel 3 die Vorstellung der zur Lösung der Abbrandgleichung not-

² Etwa 2,8 Prozent bis 4,5 Prozent. Der genaue Wert hängt davon ab, wie hoch der Anteil leicht spaltbarer Plutoniumisotope (Pu239, Pu241) ist und wie hoch der verbliebene Uran235-Anteil im Trägermaterial ausfällt. Da MOX-Brennelemente gemeinsam mit Uranbrennelementen (typischerweise bis zu 30 Prozent des Reaktorinventars) eingesetzt werden, darf sich die Gesamtleistung des Brennelements aus Plutonium- und U235-Spaltung nicht wesentlich von der eines reinen Uranbrennelements unterscheiden. Je niedriger der verbliebene U235-Anteil im Trägermaterial ist, desto mehr Spaltplutonium kann beigemischt werden. Wird Natururan als Trägermaterial verwendet, bleibt der anfängliche Pu-Gehalt des MOX-Brennelements daher deutlich unter der 4 Prozent Marke.

wendigen Näherungen und ihrer Umsetzung innerhalb des verwendeten Programmsystems SCALE 5.1 an. Ausgehend von einer Motivation der gewählten Eingabedaten zur Modellierung werden in Kapitel 4 die Ergebnisse vorgestellt. Dabei dienen Berechnungen für Uranbrennelemente zur Abschätzung des Einflusses verschiedener Eingabeparameter, diese bilden die Grundlage für die im Anschluss vorgestellten Ergebnisse für MOX. Die errechneten Radioxenonverhältnisse werden den erwarteten Werten für Uran gegenübergestellt und bewertet. Die Schlussfolgerungen für das CTBTO-Verifikationsregime und weitergehende Fragestellungen werden zum Abschluss in Kapitel 5 zusammengefasst.

2. Physikalische Grundlagen der Kernenergieerzeugung

In diesem Abschnitt werden die physikalischen Vorgänge erläutert, auf denen die Energieerzeugung durch Kernspaltung in kommerziellen Reaktoren beruht und die daher für die Beantwortung der Fragestellung dieser Arbeit simuliert wurden. Wegen der hohen Komplexität des Themas erfolgt hier eine Einschränkung auf die Grundprinzipien und Mechanismen, die zur Veränderung der Brennstoffzusammensetzung führen und daher im Kontext der Aufgabenstellung unmittelbar relevant sind.

Die Erzeugung von Energie aus Kernspaltung beruht auf dem Erkenntnis der Äquivalenz von Energie und Masse (Einstein) und der Beobachtung, dass die Masse von Atomkernen nicht einfach der Summe der Einzelmassen der ihn bildenden Nukleonen darstellt. Stattdessen geht auch die Bindungsenergie der Nukleonen in die Masse ein, die sich mit der Anzahl der Nukleonen ändert. Die maximale Bindungsenergie pro Nukleon liegt für Eisen vor. Bei leichteren Elementen wird daher durch Kernfusion Energie freigesetzt, bei schwereren Elementen durch Spaltung (siehe Abbildung 2.1).

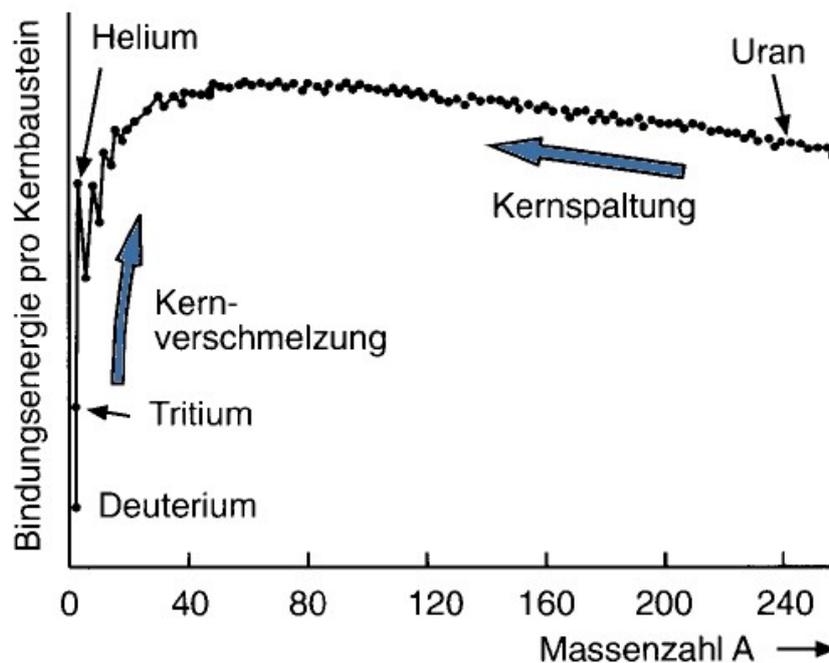


Abbildung 2.1.: Bindungsenergie pro Nukleon in Abhängigkeit von der Massenzahl [Jen13]

Durch die Spaltung von Uran235 beispielsweise werden insgesamt ca. 210 MeV freigesetzt:

- kinetische Energie der Spaltprodukte: 175 MeV,
- kinetische Energie der bei der Spaltung erzeugten Neutronen: 5 MeV,
- Energie der unmittelbar bei der Spaltung auftretenden Gamma-Strahlung: 7 MeV,
- Energie der Beta- und Gamma-Strahlung beim Zerfall der radioaktiven Spaltprodukte: 13 MeV,
- Energie der Neutrinos: 10 MeV.

Bei der Spaltung eines Kerns können erneut Neutronen freigesetzt werden, im Falle von Uran235 beträgt die durchschnittliche Ausbeute pro Spaltung $\nu = 2,43$. Im allgemeinen stehen aber nicht alle Spaltneutronen für eine erneute Kernspaltung zur Verfügung. Der Anteil von Neutronen k_∞ , der für die nächste Generation von Spaltungen zur Verfügung steht, lässt sich vereinfacht durch die sogenannte Vierfaktorformel (vgl. [Old75] und [Zie13]) ausdrücken:

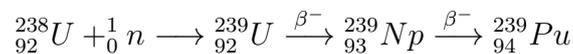
$$k_\infty = \eta \epsilon p f$$

- η : Anzahl Spaltneutronen pro absorbiertem Neutron („Generationenfaktor“). Da nicht alle Absorptionen eine Spaltung auslösen, ergibt sich der Faktor aus dem Verhältnis von Spalt- und Absorptionsquerschnitten der Brennstoffisotope sowie dem Anreicherungsgrad. Daher ist dieser Faktor kleiner als ν und bewegt sich im Bereich zwischen 2,07 für reines Uran235 und 1,33 für Natururan.
- ϵ : Schnellspaltfaktor. Der Wirkungsquerschnitt für neutroneninduzierte Spaltung ist zwar im thermischen Energiebereich (weniger als 100meV) am größten, doch können auch Neutronen mit höherer kinetischer Energie, die „schnellen Neutronen“, Spaltungen auslösen. Der Korrekturfaktor beträgt typischerweise ca. 1,03.
- p : Resonanzdurchlasswahrscheinlichkeit. Die bei der Spaltung erzeugten Neutronen haben Energien im MeV-Bereich, weshalb sie im Reaktor durch Kollision mit geeigneten Moderatoren (in Leichtwasserreaktoren Wasser) abgebremst („gekühlt“) werden. Bei diesem Prozess können auch Neutronen absorbiert werden, insbesondere wird ein Anteil in den Resonanzen des den Großteil des Kernbrennstoffs ausmachenden Uran238 absorbiert, bevor die Neutronen thermische Energie erreichen. Ein beispielhafter Wert hier wäre 0,89.
- f : Thermischer Nutzungsfaktor. Auch von den auf thermische Energie abgekühlten Neutronen können einige von nicht spaltbarem Material absorbiert werden, so dass nicht alle eine erneute Kernspaltung auslösen. Ein typischer Wert für diesen Faktor beträgt 0,88.

Nicht berücksichtigt sind Leckageverluste (der Reaktor wird als „unendlich“ angenommen) und die nicht homogene Verteilung der Materialien im Reaktor. Der effektive Multiplikationsfaktor k_{eff} lässt sich nur unter Einbeziehung der Reaktor-

geometrie bestimmen. Ein Reaktor ist genau dann kritisch, wenn sich die Kernreaktion gerade selbst erhält ($k = 1$). Entsprechend gilt er für $k < 1$ als unter-, für $k > 1$ als überkritisch. Zur Regulierung dieses Faktors dienen die Beigabe von Neutronenabsorbieren im Moderator (Bor), Steuerstäbe mit hochabsorbierendem Material und bei Leichtwasserreaktoren in einem gewissen Ausmaß auch die Temperatur des Moderators.

Für eine überkritische Anordnung wie eine Atombombe ist ein hoher Wert für η günstig und daher ein hoher Anteil an Isotopen mit hoher Energie- und Spaltausbeute. Für Kernwaffen wird deshalb *hochangereichertes* Uran (HEU) mit einem U235-Anteil von bis zu 95% verwendet. Die Anreicherungsgrade von Brennelementen in Kernreaktoren liegen dagegen üblicherweise im Bereich von 3-5% U235, in Natururan liegen nur ca. 0,7% Uran235 vor. Der überwiegende Großteil von Natururan wird durch das nicht thermisch spaltbare Isotop Uran 238 gebildet. Durch Neutroneneinfang und anschließenden zweifachen β -Zerfall wird in Kernreaktoren allerdings aus U238 das leicht spaltbare Isotop Pu239 *erbrütet*:



Dieser Brutprozess findet wegen des hohen U238-Gehalts von Uranbrennelementen permanent während des Reaktorbetriebs statt, erbrütetes Plutonium dient also auch bei der Verwendung von ursprünglich reinen Uranbrennelementen mit zunehmender Verweildauer des Elements im Reaktor in wachsendem Ausmaß als Brennstoff. Das erbrütete Plutonium kann aus abgebrannten Brennelementen separiert und neuen Brennelementen als Spaltmaterial beigegeben werden: den sogenannten Mischoxid(MOX)-Brennelementen.

Das Design der Brennelemente kann je nach Reaktortyp sehr unterschiedlich sein. Für die in dieser Arbeit betrachteten kommerziellen Druckwasserreaktoren hat sich allerdings ein weitgehend einheitlicher Aufbau durchgesetzt: Das als Brennstoff dienende Uran bzw. Plutonium wird als Oxid (UO_2 bzw. PuO_2) zu Tabletten mit ca. 9 cm Durchmesser verarbeitet, die in Brennstäbe aus einer Zirkoniumlegierung gefüllt werden. Die Brennstäbe werden zu Elementen aus 14x14 bis 18x18 Stäben zusammengefasst, in die Führungsrohre etwa für Steuerstäbe eingelassen sind (siehe Abbildungen 2.2 und 2.3). Die Elemente werden innerhalb des Reaktorkerns wiederum in einem Gittermuster angeordnet. Der gesamte Kern befindet sich in einem mit Wasser gefüllten Druckbehälter, wobei das Wasser sowohl als Moderator als auch als Kühlmittel dient. Über einen Wärmetauscher wird die Abwärme an einen sekundären Wasserkreislauf mit Dampfturbinen weitergegeben, die den elektrischen Strom erzeugen (vgl. Abbildung 2.4).

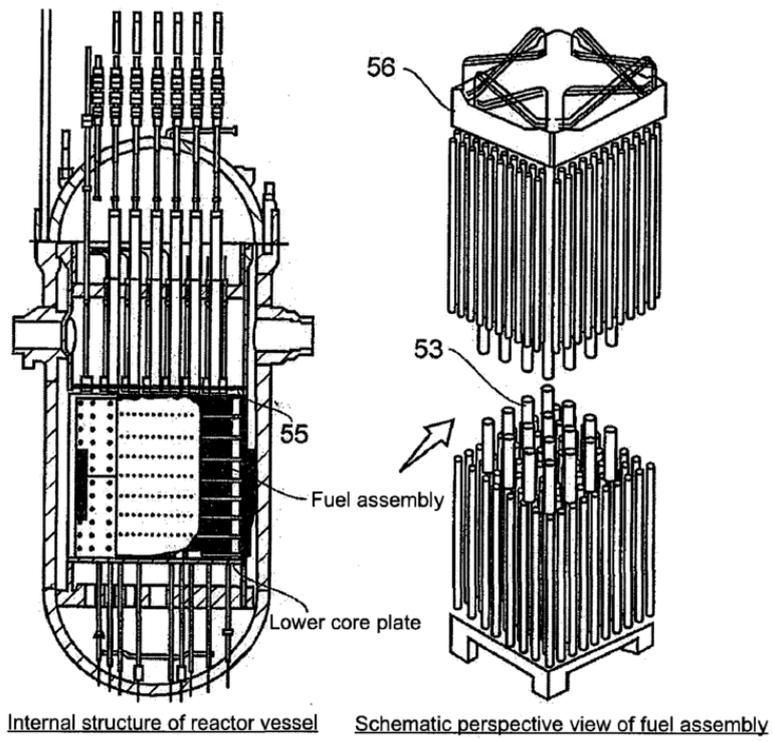


Abbildung 2.2.: Patentzeichnung für ein DWR-Brennelement [HS09]

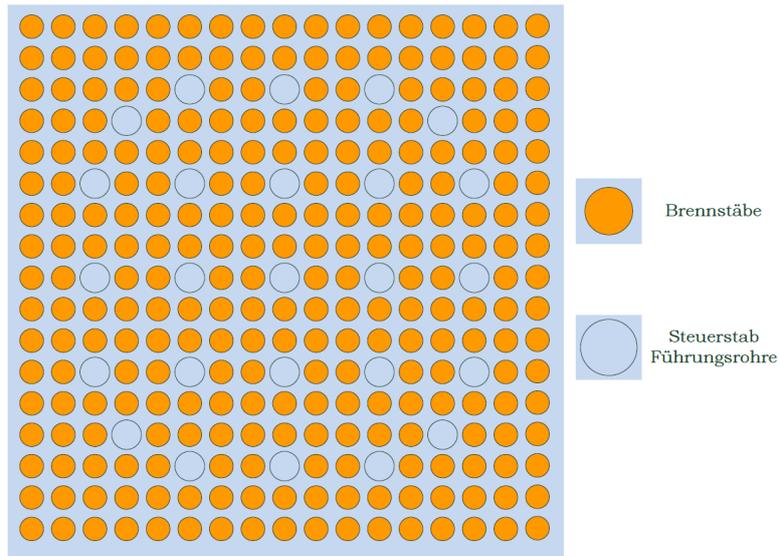


Abbildung 2.3.: Schema für ein 17x17 Brennelement

Um die zeitliche Änderung der Isotopenkonzentrationen während des Reaktorbetriebs ausrechnen zu können, müssen sämtliche Effekte, die zu einer Änderung der Konzentrationen führen können, berücksichtigt werden. Für die Änderung der Konzentration einer beliebigen Nuklidsorte i am Ort \vec{r} führt dies zu folgender Gleichung (vgl. [Kir85]):

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t} N_i(\vec{r}, t) = & \sum_j \left\{ \int_E \left[\sigma_{j \rightarrow i}^a(E) + Y_{j \rightarrow i}(E) \sigma_j^s(E) \right] \Phi(\vec{r}, E, t) N_j(\vec{r}, t) dE + \lambda_{j \rightarrow i} N_j(\vec{r}, t) \right\} \\ & - \int_E \sigma_i^e(E) \Phi(\vec{r}, E, t) N_i(E, t) dE - \lambda_i N_i(\vec{r}, t) \end{aligned} \quad (2.1)$$

mit N_i : Zahl der Atome der Nuklidsorte i zur Zeit t am Ort \vec{r}

E : Neutronenenergie

Φ : Neutronenflussdichte

$Y_{j \rightarrow i}$: Spaltausbeute der Nuklidsorte i aus Spaltprozessen der Nuklidsorte j

$\lambda_{j \rightarrow i}$: Zerfallskonstante für den Zerfall von Nuklidsorte j nach i

λ_i : Zerfallskonstante für Zerfall des Nuklids i

$\sigma_{j \rightarrow i}^a$: Wirkungsquerschnitt für Neutronenabsorption der Nuklidsorte j , die ein Nuklid der Sorte i erzeugt

σ_j^s : Wirkungsquerschnitt für Spaltungen der Nuklidsorte j

σ_i^e : Wirkungsquerschnitt für alle Neutroneneinfangprozesse (Absorption und Spaltung) der Nuklidsorte i

Die Gleichung setzt sich aus drei Termen zusammen:

1. Der erste Term beschreibt den Zuwachs an Nukliden des Typs i sowohl als Spaltprodukt sämtlicher möglichen Ausgangsnuklide j als auch als Ergebnis des Neutroneneinfangs an ein entsprechendes Ausgangsnuklid. Dieser hängt sowohl von der Konzentration der Ausgangsnuklide am Ort \vec{r} ab, als auch von der zum jeweiligen Zeitpunkt und Ort vorliegenden Neutronenflussdichte und dem (energieabhängigen) Wechselwirkungsquerschnitt des entsprechenden Nuklids für den jeweiligen Vorgang. Um die vollständige Änderungsrate zu ermitteln, muss über sämtliche mögliche Ausgangsnuklide und das vollständige Energiespektrum der Neutronen integriert werden. Zugleich ist ein Zuwachs durch radioaktiven Zerfall anderer Nuklide nach i zu berücksichtigen, der nur von den Zerfallskonstanten $\lambda_{i \rightarrow j}$ abhängt.
2. Die für den Zuwachs verantwortlichen Prozesse können ebenfalls zu einem Verlust führen, wenn das betrachtete Nuklid selbst gespalten wird oder ein Neutron anlagert. Auch hier muss über die gesamte Energie integriert werden.
3. Schließlich muss der Verlust durch radioaktiven Zerfall berücksichtigt werden. Da dieser nicht durch Neutroneneinfang induziert wird, sind nur die nuklid-spezifischen Zerfallskonstanten λ_i relevant.

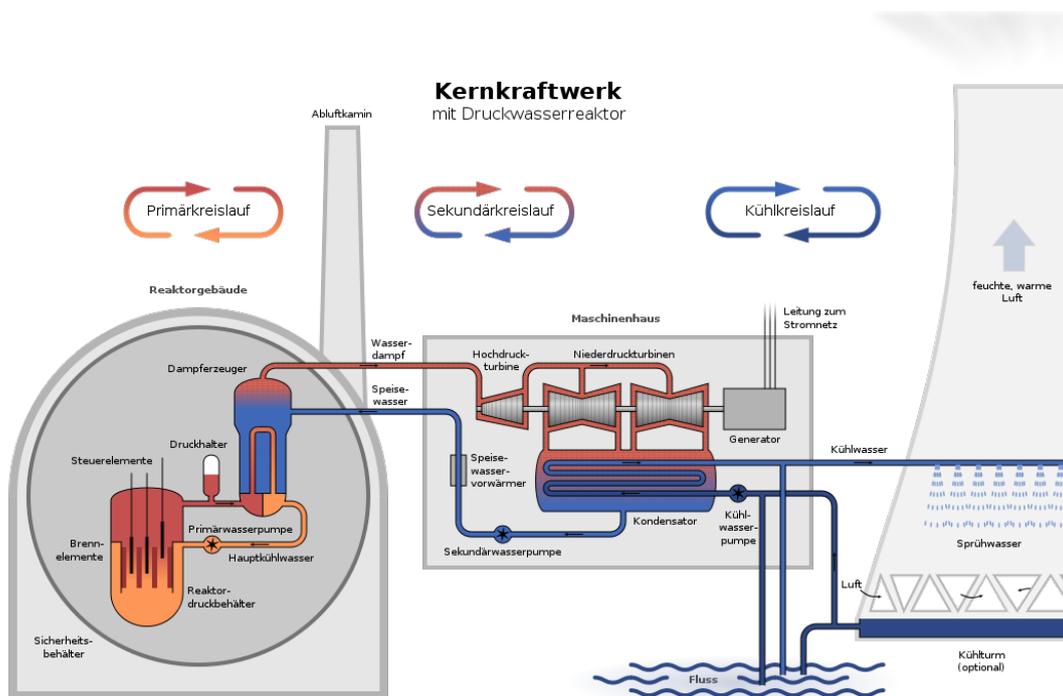


Abbildung 2.4.: Schema eines Druckwasserreaktors [SJ09]

Die Neutronenflussdichte lässt sich ihrerseits durch eine Transportgleichung beschreiben, die sich aus einem Ansatz analog zur Boltzmann-Gleichung ergibt (vgl. [Kir85]):

$$\begin{aligned} & \left[\frac{1}{v} \frac{\partial}{\partial t} + \vec{\Omega} \cdot \nabla + \sum_i \sigma_i^t N_i(\vec{r}, t) \right] \Phi(\vec{r}, E, \vec{\Omega}, t) = \\ & \sum_i \int_{E'} \int_{\vec{\Omega}'} \left[\sigma_i^{st}(E' \rightarrow E, \vec{\Omega}' \rightarrow \vec{\Omega}) + \frac{1}{4\pi} \chi_p(E) \nu_i(E') \sigma_i^f(E') \right] \\ & \cdot N_i(\vec{r}, t) \Phi(\vec{r}, E, \vec{\Omega}, t) dE' d\vec{\Omega}' + \sum_j \frac{1}{4\pi} \chi_v(E) \lambda_j N_j(\vec{r}, t) \end{aligned} \quad (2.2)$$

mit v : Neutronengeschwindigkeit

$\vec{\Omega}$: Raumwinkel der Bewegungsrichtung der Neutronen

χ_p : Energieverteilung der prompten Neutronen bei Spaltung

χ_v : Energieverteilung der bei Zerfall von j nach i erzeugten Neutronen

ν_i : Neutronenausbeute bei Spaltung von N_i

σ_i^t : totaler Wirkungsquerschnitt für Spaltung, Streuung und Absorption

$\sigma_i^{st}(E' \rightarrow E, \vec{\Omega}' \rightarrow \vec{\Omega})$: Wirkungsquerschnitt für die Streuung eines Neutrons mit Energie E' und Raumwinkel $\vec{\Omega}'$ nach Energie E und Raumwinkel $\vec{\Omega}$ an einem Nuklid der Sorte i

Die linke Seite der Gleichung entspricht dabei dem allgemeinen Ansatz für eine Boltzmann-Transportgleichung, der sich aus je einem Term für die zeitliche Änderungsrate, für die räumliche Diffusion und für Streuprozesse zusammensetzt. Diese entsprechen, bei vollständiger Betrachtung aller Nuklide, gerade der Summe der Integrale über Raumwinkel und Neutronenenergie der folgenden Prozesse:

1. Der Streuung eines Neutrons der Energie E' und Bewegungsrichtung $\vec{\Omega}$ zur neuen Energie E' und in Richtung $\vec{\Omega}'$.
2. Der Spaltung eines Nuklids i und der Freisetzung der Spaltneutronen der Anzahl i und der Energieverteilung i .
3. Dem Zuwachs durch verzögerte Neutronen, die durch den Zerfall instabiler Nuklide freigesetzt werden. Analog zur Gleichung für die Nuklidkonzentration sind Energie und Richtung der bereits vorhandenen Neutronen hierfür nicht relevant. Summiert werden muss über die Zerfallskette von j nach i .

Die ersten beiden Terme müssen dabei mit der Anzahl der vorhandenen Nuklide N_i des Typs i und der vorhandenen Neutronenflussdichte Φ gewichtet werden.

Die Konstante, um welche die Lösung der Differentialgleichung unbestimmt bleibt, wird durch die thermische Leistung des Reaktors festgelegt³. Bei Betrachtung eines Teilvolumens (etwa eines Brennelements) muss ein entsprechender Bruchteil der Leistung zur Normierung verwendet werden.

$$P = \int_V \int_{\vec{\Omega}} \int_E \sum_i p_i \sigma_j^f(E) N_i(\vec{r}, t) \Phi(\vec{r}, E, \vec{\Omega}, t) dV d\vec{\Omega} dE \quad (2.3)$$

mit P : Thermische Reaktorleistung
 p_i : Energiefreisetzung pro Spaltung eines Kerns vom Typ i
 V : Volumen der gesamten Spaltzone

Durch die Gleichungen (2.1) bis (2.3) sind die Vorgänge im Reaktor vollständig beschrieben. Sie bilden ein in den Variablen N_i und Φ nichtlinear gekoppeltes Gleichungssystem. Wegen der Vielzahl der während des Reaktorbetriebs auftretenden Isotope enthält das System etwa 1600 Gleichungen; der zu berücksichtigende Bereich von Neutronenenergien reicht mit $10^{-2} eV < E < 10^7 eV$ über neun Größenordnungen. Die nuklidspezifischen Daten wie Zerfallskonstanten und Wirkungsquerschnitte stehen in Form von empirisch gestützten Datenbanken zur Verfügung. Die anfängliche Brennstoffzusammensetzung, Leistungsdichte und Reaktorgeometrie müssen für den jeweiligen Reaktor bekannt sein oder gehen in die Modellannahmen ein.

Die Arbeitsweise des für die (Näherungs-)Lösung des beschriebenen Gleichungssystems verwendeten Programmpaketes SCALE 5.1 wird im folgenden Abschnitt erläutert.

³ Die sich daraus ergebende elektrische Leistung hängt vom Wirkungsgrad des Reaktors ab, er liegt typischerweise bei etwa 0,33)

3. Vorstellung der Berechnungsmethodik und der Programmroutine SAS2

3.1. Vorstellung der Näherungsmethoden

Wie im vorherigen Abschnitt dargestellt, ist zur Bestimmung der Nuklidkonzentrationen während des Reaktorbetriebs die Lösung eines zweifach nichtlinear gekoppelten Gleichungssystems aus 1600 Gleichungen über einen großen Energiebereich und für ein inhomogen zusammengesetztes Gebiet erforderlich. Dieses lässt sich nur computergestützt realisieren und erfordert einige vereinfachende Annahmen, um die Gleichungen handhabbar zu machen. Insbesondere werden die verschiedenen Variablen wie Energie, Zeit und örtliche Verteilung für geeignete Intervalle als konstant angenommen. Im Folgenden werden daher die verwendeten Näherungen vorgestellt, orientiert an der Darstellung in [Kir85].

1. Intervallbildung für das Neutronenenergiespektrum und Erzeugung von Gruppenwirkungsquerschnitten

Die Wirkungsquerschnitte der Nuklide für Neutroneneinfang sind von der Neutronenenergie abhängig. Als Beispiel ist in Abbildung 3.1 der Spaltquerschnitt von U235 dargestellt.

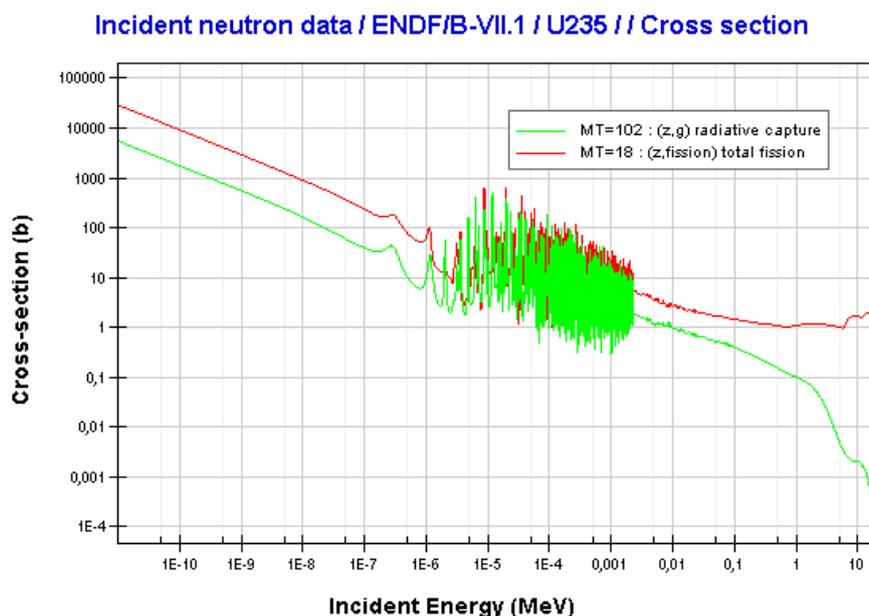


Abbildung 3.1.: Energieabhängiger Wirkungsquerschnitt von Uran235 [Np16]

Im Resonanzbereich von Energien von wenigen eV bis einigen keV variiert der Wert sehr stark, während sich insbesondere für sehr hohe und niedrige Neutronenenergien einfache Näherungen bilden lassen. Abhängig von der grundsätzlichen Brennstoffzusammensetzung und dem Reaktortyp (im Falle dieser Arbeit: Druckwasserreaktoren mit Uran- und MOX-Brennstoff) können für geeignete Energieintervalle $E_g < E \leq E_{g+1}$ sogenannte Gruppenwirkungsquerschnitte nach Formel (3.1) gebildet werden. Als Wichtungsneutronenspektrum wird dabei ein für den Reaktor typisches Spektrum verwendet⁴.

$$\sigma_{i,g}^w = \frac{\int_{E_g}^{E_{g+1}} \sigma_i^w(E) \Phi'(E) dE}{\int_{E_g}^{E_{g+1}} \Phi'(E) dE} \quad (3.1)$$

- mit $\sigma_{i,g}^w$: Wirkungsquerschnitt für die Wechselwirkung vom Typ w
(Absorption, Streuung oder Spaltung) eines Neutrons
der Energie $E_g < E \leq E_{g+1}$ mit einem Nuklid
der Sorte i
- $\sigma_i^w(E)$: differentieller Wirkungsquerschnitt der Wechsel-
wirkung eines Neutrons der Energie E
mit einem Nuklid der Sorte i
- Φ' : charakteristisches Wichtungsspektrum

Bibliotheken solcher Gruppenwirkungsquerschnitte enthalten noch nicht die genaue Reaktorgeometrie oder Leistungsparameter und sind insofern problemunabhängig. Innerhalb des SCALE Programmpakets liegt eine Auswahl von Bibliotheken mit einer unterschiedlichen Anzahl von Energiegruppen vor. Die Anzahl der Gruppen stellt einen Kompromiss zwischen Genauigkeit und benötigtem Rechenaufwand dar.

2. Zeitliche Intervallbildung

Um die Gleichungen für Nuklidkonzentrationen (Abbrandgleichung) (2.1) und Neutronenflussdichte (2.2) zu entkoppeln, werden zeitliche Intervalle gebildet, innerhalb derer die Neutronenflussdichte als konstant angenommen werden kann. Dies ermöglicht eine Extrapolation der Nuklidzusammensetzung für die Intervallmitte. Mit Hilfe des neu errechneten Inventars lässt sich wiederum eine aktualisierte Neutronenflussdichte bestimmen. Die Anzahl der Intervalle ist abermals ein Kompromiss zwischen Rechenaufwand und Genauigkeit und gleichfalls Teil der Eingabeparameter.

3. Definition von Einheitszellen

Nachdem durch die vorherigen Schritte Näherungen zur Energie- und Zeitabhängigkeit zur Lösung der Neutronenflussgleichung durchgeführt wurden, werden des Weiteren Vereinfachungen bezüglich der Ortsabhängigkeit vorgenommen. Innerhalb ei-

⁴ Die in dieser Arbeit verwendete Gruppenwirkungsbibliothek 44GROUPNDF5 ist für Druckwasserreaktoren optimiert.

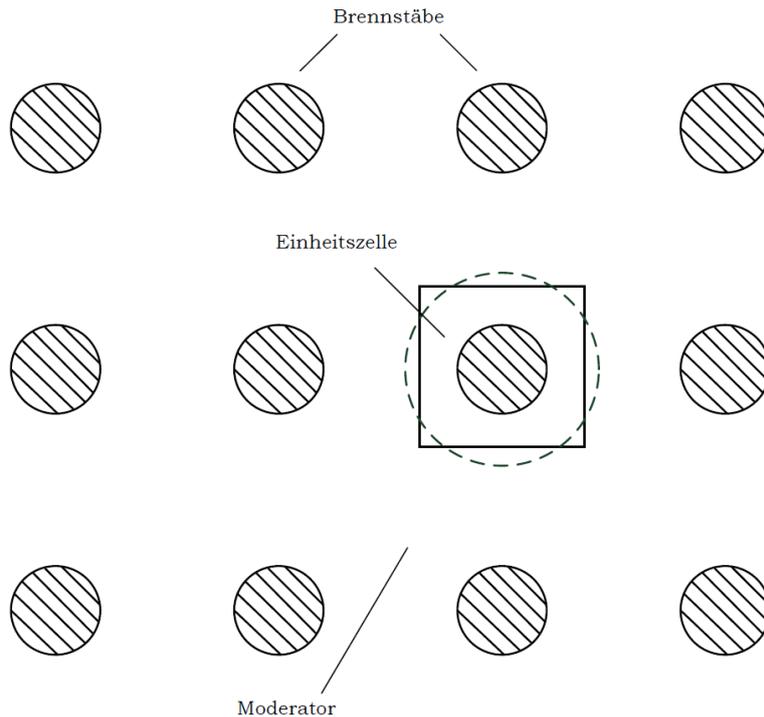


Abbildung 3.2.: Brennstabgitter mit Einheitszelle

nes Brennelements bilden die einzelnen Brennstäbe ein regelmäßiges Gitter, innerhalb des Reaktors wiederum die Brennelemente. Dieser Umstand wird ausgenutzt, um Einheitszellen zu definieren. Diese werden unter Erhaltung des Volumens und Materials zusätzlich zylindrisiert (vgl. Abb. 3.2), um die radiale Symmetrie ausnutzen zu können.

4. Aktualisierung der Wirkungsquerschnitte unter Einbeziehung der Resonanzselbstabschirmung

Bei der Berechnung der örtlichen Neutronenflussdichte müssen Resonanzen bezüglich des Neutroneneinfangs, wie sie in Abbildung 3.1 exemplarisch für Uran235 zu sehen sind, berücksichtigt werden. Für die zylindrischen Brennstäbe haben sie die Konsequenz, dass die Neutronenflussdichte zur Mitte hin abnimmt, da ein überproportionaler Anteil im Randbereich durch Resonanzen eingefangen wird. Die realen Gruppenwirkungsquerschnitte, verstanden als Wahrscheinlichkeit eines Neutroneneinfangs durch ein konkretes Nuklid i , weichen im Mittel über das Brennstabvolumen somit von den theoretischen ab. Die notwendigen Korrekturen werden mit Hilfe zweier Näherungsmethoden durchgeführt: Dem Bondarenko-Verfahren (ausgeführt durch das Modul BONAMI) und der Nordheimschen Integralmethode (ausgeführt durch das Modul NITAWL). Beide Module liefern jeweils problemabhängige aktualisierte Gruppenwirkungsquerschnitte für die Lösung der Neutronenflussgleichung.

5. Abschnittsweise Lösung der Neutronenflussgleichung

Die Einheitszelle wird in Z Zylinderzonen aufgeteilt, innerhalb derer die Nuklidkonzentrationen und die Neutronenflussdichte als ortsunabhängig konstant angesehen werden können, unter Berücksichtigung der durch die Resonanzselbstabschirmung geringeren Flussdichte und dadurch veränderten Nuklidkonzentration im inneren

Bereich des Spaltmaterials gegenüber der Randzone. Für die einzelnen Zonen wird durch das Modul XSDRNPM durch Lösung der Neutronentransportgleichung die jeweilige Neutronenflussdichte innerhalb der festgelegten Energiegruppen berechnet. Diese wird während der festgelegten Zeitintervalle (siehe 2.) als konstant angenommen. Die notwendigen Nuklidkonzentrationen ergeben sich für das erste Zeitintervall unmittelbar aus den Eingabedaten, für die weiteren Schritte werden sie für die Mitte des Zeitintervalls t_M extrapoliert.

$$\Phi_g^z(t_M) = \int_{E_g}^{E_{g+1}} \Phi^z(E, t_M) dE \quad (3.2)$$

mit $\Phi_g^z(t_M)$: Gruppenflussdichte für die Zylinderzone Z zum Zeitpunkt t_M

$\Phi^z(E, t_M)$: Neutronenflussdichte für die Zylinderzone Z zum Zeitpunkt t_M

6. Bildung homogener Werte für die Einheitszellen

Unter Verwendung der für die Zylinderzonen errechneten Neutronenflussdichten lässt sich mit den Randbedingungen, dass Reaktionsrate und Teilchenzahlen innerhalb der gesamten Einheitszelle konstant bleiben müssen, eine Homogenisierung der Einheitszelle durchführen, die auf konstante Mittelwerte über die gesamte Einheitszelle für Gruppenwirkungsquerschnitte und -neutronenflussdichten führt. Zunächst wird die mittlere Teilchenzahl \bar{N}_i der Nuklide i innerhalb der Volumina der einzelnen Zonen V_Z bestimmt durch

$$\bar{N}_i = \frac{\sum_{z=1}^Z V^z N_i^z}{\sum_{z=1}^Z V^z} \quad (3.3)$$

Die mittleren Gruppenwirkungsquerschnitte ergeben sich dann aus

$$\bar{\sigma}_{i,g}^w(t_M) = \frac{\sum_{z=1}^Z \sigma_{i,g}^w N_i^z \Phi_g^z(t_M)}{\bar{N}_i \sum_{z=1}^Z \Phi_g^z(t_M)} \quad (3.4)$$

mit $\bar{\sigma}_{i,g}^w$: mittlerer Gruppenwirkungsquerschnitt der Wechselwirkung vom Typ w

N_i^Z : Anzahl Atome des Typs i in der Zone Z

und die mittleren Gruppenflussdichten gemäß

$$\bar{\Phi}_g(t_M) = \frac{\sum_{z=1}^Z V^z \Phi_g^z(t_M)}{\sum_{z=1}^Z V^z} \quad (3.5)$$

7. Erzeugen einer problemspezifischen Bibliothek effektiver Wirkungsquerschnitte für jeden Zeitabschnitt

Aus der Summe der Gruppenflussdichten lässt sich die Gesamtflussdichte bestimmen:

$$\Phi(t_M) = \sum_{g=1}^G \bar{\Phi}_g(t_M) \quad (3.6)$$

Durch Wichtung der Gruppenwirkungsquerschnitte mit den Gruppenflussdichten lassen sich effektive Werte für die Wirkungsquerschnitte bilden:

$$\sigma_{i,eff}^w(t_M) = \frac{\sum_{g=1}^G \bar{\sigma}_{i,g}^w(t_M) \bar{\Phi}_g(t_M)}{\Phi(t_M)} \quad (3.7)$$

Auf die gleiche Weise können für die Spaltausbeuten Y und Neutronenausbeuten χ effektive Werte durch Wichtung mit Flussdichte und Wirkungsquerschnitten berechnet werden. Diese Werte können insofern als effektiv bezeichnet werden, als in sie alle physikalischen Effekte eingegangen sind, die sich aus der problemspezifischen Reaktorgeometrie (\vec{r} -Abhängigkeit) und der vorliegenden Energieverteilung des Neutronenflussspektrums (E -Abhängigkeit) ergeben. Je höher die Qualität der gebildeten problemspezifischen Bibliotheken, d.h. je besser das analysierte Problem durch die Eingabedaten wiedergegeben wird, desto zuverlässigere Ergebnisse liefert die nun vereinfachte Abbrandgleichung:

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt} N_i(t) = & \\ & \sum_j \left\{ \left[\sigma_{j \rightarrow i, eff}^a + Y_{j \rightarrow i, eff} \sigma_{j, eff}^s \right] \Phi(t_M) N_j(t) + \lambda_{j \rightarrow i} N_j(t) \right\} - \\ & - \sigma_{i, eff}^e \Phi(t_M) N_i(t) - \lambda_i N_i(t) \end{aligned} \quad (3.8)$$

Die Abbrandgleichung (2.1) reduziert sich so auf ein lineares, gekoppeltes Gleichungssystem mit konstanten Koeffizienten, welches numerisch mit hoher Genauigkeit gelöst werden kann. Dies leistet das Modul ORIGEN-S innerhalb der SAS2-Programmroutine unter Verwendung der zuvor durch spezialisierte weitere Module erzeugten problemspezifischen Bibliotheken. Programmablauf und Arbeitsweise werden im nächsten Abschnitt erläutert.

3.2. Vorstellung der Arbeitsweise der verwendeten SAS2-Routine aus dem Paket SCALE 5.1

Für die computergestützte Umsetzung der zuvor beschriebenen Berechnungen wurde die SAS2-Routine des Programmpakets SCALE 5.1 verwendet.

SCALE steht für „Standardized Computer Analyses for Licensing Evaluation“ und ist ein modulares Codesystem, welches am Oak Ridge National Laboratory (ORNL) in den USA entwickelt wurde und in Zusammenarbeit mit der U.S. Nuclear Regulatory Commission und dem U.S. Department of Energy fortwährend weiterentwickelt wird. Innerhalb des Systems stehen mehrere Routinen zur Verfügung, die für unterschiedliche Aufgabenstellungen standardisierte Sequenzen spezialisierter Programmmodule abrufen, um Berechnungen u.A. zur Reaktorkritikalität, zur Abschirmung oder zum Abbrand und Zerfall radioaktiven Brennstoffs durchzuführen. Die Routinen bzw. Kontrollmodule erfordern die Eingabe der benötigten Daten in einem geeigneten Format, rufen automatisiert die benötigten Module auf und sorgen für eine Übergabe der Daten zwischen den Modulen in der jeweils benötigten Formatierung.

Die SAS2-Routine ist dafür optimiert, Abbrand- und Zerfallsrechnungen für Brennelemente kommerzieller Reaktoren durchzuführen und auf dieser Basis die Strahlungsdosen für die Oberflächen eines Transportbehälters (wie Castor-Behältern) zu berechnen. Auch wenn die Strahlungsbelastung durch radioaktiven Abfall nicht zur Fragestellung der vorliegenden Arbeit gehört, wurde diese Programmroutine gewählt, da sie in der Lage ist, die erforderlichen problemspezifischen Gruppenwirkungsquerschnitte zu errechnen und die Abbrandrechnungen, in denen die Konzentrationen der relevanten Xenonisotope enthalten ist, mit hoher Genauigkeit durchzuführen [JT95] [JH97].

SAS2 verwendet dafür sechs unterschiedliche Programmmodule:

- BONAMI: nutzt das Bondarenko-Verfahren, um die Resonanzselbstabschirmung für alle Nuklide zu berechnen, für die entsprechende Daten vorliegen
- NITAWL: nutzt die Nordheimsche Integralnäherung um die Resonanzselbstabschirmung für alle Nuklide zu berechnen, für die entsprechende Daten vorliegen
- XSDRNPM: löst die Neutronenflussgleichung für die definierten Einheitszellen unter Ausnutzung der Symmetrie für eine Dimension und erzeugt entsprechende effektive Wirkungsquerschnitte
- COUPLE: überträgt die gewonnenen effektiven Werte in eine ORIGEN-S Wirkungsquerschnittsbibliothek
- ORIGEN-S: löst die Abbrandgleichung (3.8) unter Verwendung der effektiven Werte

Das sechste Modul XSDOSE bestimmt Strahlendosen innerhalb eines Transportbehälters und ist für die Aufgabenstellung nicht relevant.

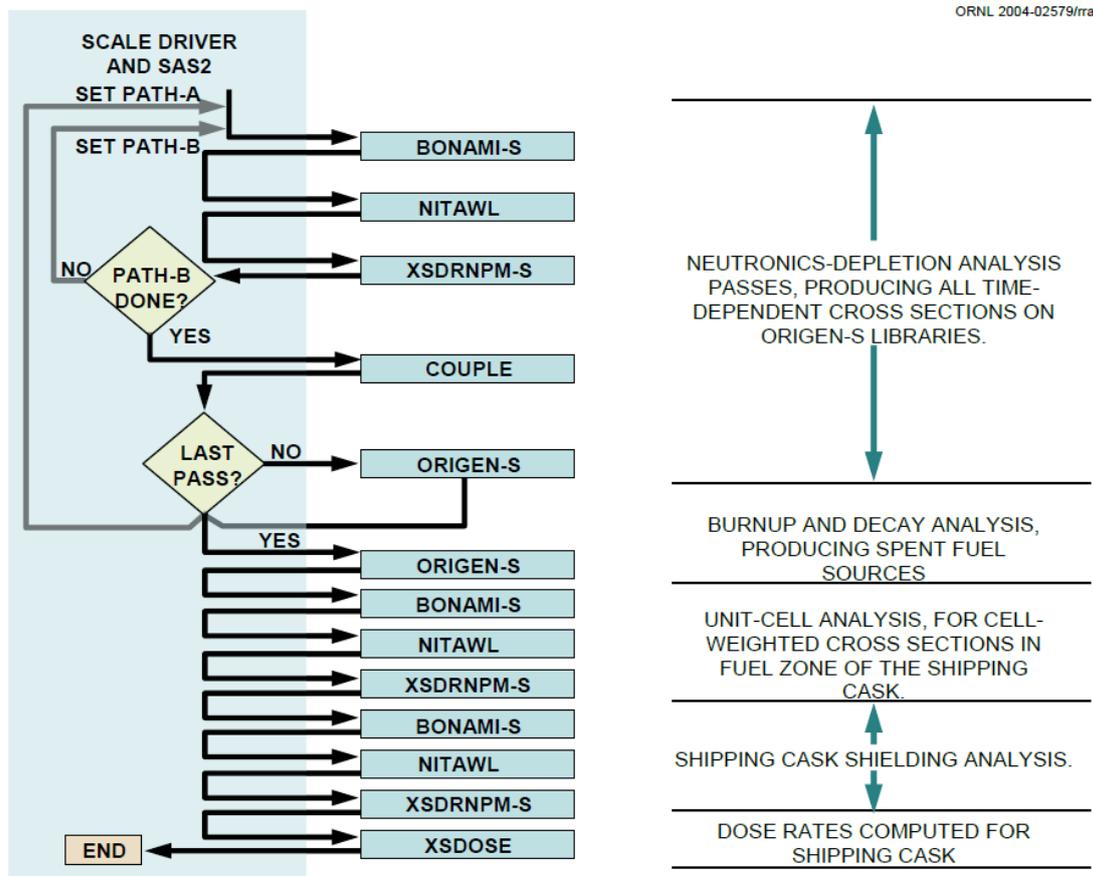


Abbildung 3.3.: Flussdiagramm des Programmablaufs der SAS2-Routine [IG06]

Der Programmablaufplan ist in Abbildung 3.3 dargestellt. Ausgangspunkt sind die in einer Eingabedatei spezifizierten Daten zur Beschreibung eines Brennelements vor Abbrandbeginn. Zu den benötigten Eingabedaten gehören die Brennstoffzusammensetzung, Strukturmaterialien, Moderatoreigenschaften, Geometrie, Temperaturen und thermische Leistung.

Unter Verwendung der Eingabedaten werden für den ersten definierten Zeitabschnitt in einem zweistufigen Verfahren effektive Wirkungsquerschnitte berechnet. Im ersten Schritt („Path-A“) werden durch die Module BONAMI und NITAWL die Korrekturen für Resonanzselbstabschirmung vorgenommen und die Neutronenflussgleichung durch XSDRNPM für einen einzelnen Brennstab gelöst. Im zweiten Schritt („Path-B“) werden die Schritte für ein Gitter aus entsprechenden Einheitszellen, die ein Brennelement repräsentieren, wiederholt, was die Einbeziehung von Steuerstabführungsrohren und Ähnlichem ermöglicht. COUPLE erzeugt aus den gewonnenen Werten eine bezüglich dieses Zeitintervalls aktualisierte Wirkungsquerschnittsbibliothek für ORIGEN-S, welches das Nuklidinventar aktualisiert. Das neue Inventar bildet den Ausgangspunkt des nächsten Rechenschritts. Mit Ausnahme des ersten Rechenschrittes werden die Wirkungsquerschnittsbibliotheken und zugehörigen Inventare dabei als Mittelwert des jeweilige Intervalls bestimmt.

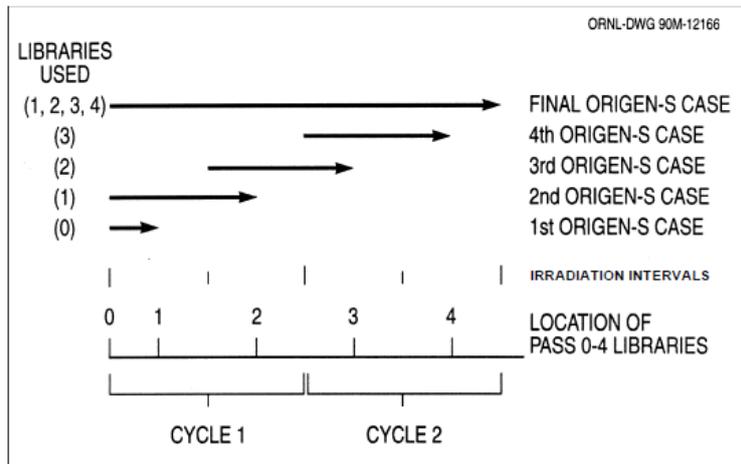


Abbildung 3.4.: Erzeugung der zeitabhängigen Wirkungsquerschnittsbibliotheken [IG06]

Nach Abschluss dieser Schritte für alle definierten Zeitintervalle steht damit eine Gruppe zeitabhängiger Bibliotheken effektiver Wirkungsquerschnitte für die gesamte betrachtete Verweildauer des Brennelementes im Reaktor zur Verfügung. Um die Berechnung des Endinventars durchzuführen, werden in einer letzten ORIGEN-S Berechnung alle erzeugten Bibliotheken sukzessive verwendet. Wie in Abbildung 3.4 anhand des einfachen Beispiels eines Abbrandes über 2 Reaktorzyklen mit jeweils zwei Zeitintervallen gezeigt wird, dienen also die ORIGEN-S Abbrandrechnungen während der Iterationen in erster Linie der Aktualisierung des Inventars für die Erzeugung der zeitabhängigen Wirkungsquerschnittsbibliotheken, die bei der finalen Berechnung des Nuklidinventars zum Zeitpunkt der Entnahme des Brennelementes benötigt werden.

Die Ausgangsbibliotheken der Gruppenwirkungsquerschnitte basieren auf ENDF/B-V Daten. ENDF steht für „Evaluated Nuclear Data File“, eine kontinuierlich durch die IAEA aktualisierte und zur Verfügung gestellte Datenbank empirisch gewonnener Nuklidaten. In dieser Arbeit verwendet wurde die für Leichtwasserreaktoren optimierte Bibliothek mit 44 Energiegruppen, die im Codesystem als 44GROUPNDF5 referenziert wird.

4. Vorstellung der Simulationen und ihrer Ergebnisse

In diesem Kapitel werden die durchgeführten Simulationen und ihre Ergebnisse vorgestellt. Ausgehend von einigen Vorüberlegungen werden zunächst die Ergebnisse von Abbrandrechnungen für Uranbrennstoff anhand ausgewählter Nuklide erläutert und die Auswirkungen von Variationen der Reaktorparameter abgeschätzt. Auf dieser Grundlage werden die errechneten Konzentrationen der vertragsrelevanten Xenonisotope aus MOX-Brennelementen mit unterschiedlichen Isotopenvektoren und Abbränden bewertet und diskutiert.

4.1. Vorüberlegungen

Mit Hilfe der vorgestellten Rechenprogramme lassen sich Reaktorinventare mit sehr hoher Präzision bestimmen. Die genauen Reaktorparameter variieren trotz den Bemühungen um Standardisierung allerdings zwischen den verschiedenen Anlagen, ebenso wie die Konditionen innerhalb des Reaktors betriebsbedingt Änderungen unterworfen sind. Um eine qualifizierte qualitative Abschätzung der Auswirkungen der Verwendung von MOX-Brennelementen für das derzeit verwendete Verfahren zur Verifikation des CTBT zu machen, wurden daher ein möglichst typisches Reaktordesign und übliche Leistungsdaten verwendet.

Als Beispielreaktor dient der Reaktor Neckarwestheim II (GKN II), ein Druckwasserreaktor der 4. Generation aus der sogenannten Konvoi Baulinie 80. Mit einer thermischen Leistung von 3850 MW_t und einer elektrischen Netzleistung von 1310 MW_e [IAE16b] entspricht dieser Reaktor den Leistungsdaten moderner Kraftwerke, die noch für einen längeren Zeitraum in Betrieb sein können (siehe dazu auch [IAE09] und [EDF12]). Zudem ist der Reaktor für die Verwendung von MOX-Brennelementen geeignet und wurde auch bereits mit solchen beladen [Bun10]. Daten zur Reaktorkonditionen und Brennelementgeometrie wurden [AG80] entnommen.

Wie in der Einleitung erläutert, werden zur Unterscheidung der Xenonemissionen atomarer Tests von denen ziviler Reaktoren die Verhältnisse der Reaktionsraten ausgewählter Isotope verwendet, genauer: Das Verhältnis des Quotienten $\text{Xe}135/\text{Xe}133$ zu dem aus $\text{Xe}133m/\text{Xe}131m$. Die tatsächlich vorhandene absolute Teilchenzahl spielt dafür theoretisch keine Rolle, auch wenn sie für die Detektierbarkeit am Ort der Messung relevant ist. Insofern ist es ausreichend, die Isotopenproduktion eines einzelnen Brennelementes zu betrachten. Die Menge des produzierten Materials hat zwar auf die Signalstärke, nicht aber auf die Art des Signals Auswirkungen. Aus

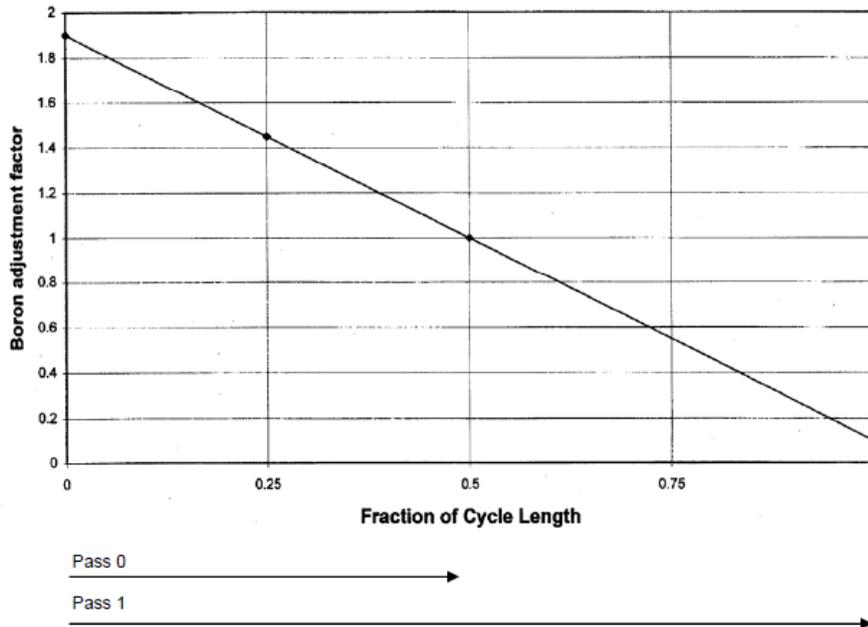


Abbildung 4.1.: Näherung für den Borsäuregehalt über einen Reaktorzyklus [IG06]

diesem Grund konnte auch die Masse des Brennelements auf eine Tonne renormiert werden, um eine leichtere Vergleichbarkeit mit Referenzdaten, die üblicherweise in Einheiten pro Tonne Schwermetall angegeben sind, zu gewährleisten.

Grundsätzlich werden MOX-Brennelemente zusammen mit Uranbrennelementen im Reaktorkern eingesetzt, um die neutronenphysikalischen Veränderungen, die sich durch ihren Einsatz ergeben, zu dämpfen. Der Anteil an MOX-Brennelementen in deutschen Atomkraftwerken etwa darf im Durchschnitt ungefähr ein Drittel betragen [Bun10]. Die Betrachtung der Emissionen eines MOX-Brennelements überschätzt insofern die zu erwartenden Effekte deutlich und gibt ein Maß für die größte anzunehmende Abweichung an. Da das emittierte Radioxenon im Allgemeinen aus undicht gewordenen einzelnen Brennstäben austritt, sind entsprechende Messwerte dennoch im Bereich des theoretisch Möglichen.

Der Anteil an Spaltmaterial eines Brennelements liegt zu Beginn seiner Verwendung naturgemäß höher als am Ende. Um die Überschussreaktivität zu Verwendungsbeginn zu kompensieren, wird in DWRs dem Moderator Wasser zusätzliche Borsäure als Neutronenabsorber zugegeben; zusätzlich können auch abbrennbare Absorber in Form von Gadoliniumstäben verwendet werden, die in das Brennelement integriert sind. Der Effekt dieser Steuerungsmethoden zur Feinabstimmung der Betriebsbedingungen auf die ermittelten Inventardaten ist allerdings gering [Wag03]. SAS2 extrapoliert den Borsäuregehalt linear von einem für die Mitte des Betriebszyklus angegebenen Wert (siehe dazu Abbildung 4.1). Für die vorgestellten Rechnungen wurde ein Mittelwert von 500 ppm als typische Konzentration angenommen.

Der Einsatz von Brennelementen in einem Kernreaktor erfolgt in der Regel über mehrere Reaktorzyklen. Um möglichst konstante Betriebsbedingungen im Reaktor zu erhalten, werden im Reaktorkern Brennelemente unterschiedlichen Abbrands verwendet. Am Ende eines Zyklus wird der Teil der Brennelemente, die ihren Zielabbrand erreicht haben, durch neue Brennelemente ersetzt und der Betrieb dafür unterbrochen. Für eine genaue Bestimmung des Inventars eines spezifischen Brennelements muss daher die genaue Betriebsgeschichte des Reaktors im Einsatzzeitraum des Elementes bekannt sein. Für die Aufgabenstellung dieser Arbeit hingegen ist eine idealisierte Näherung üblicher Betriebszyklen mit jährlichem Brennelementwechsel und 30 Tagen Stillstandzeit ausreichend. Als Verweildauer wurden 4 Zyklen angenommen, was bei einem Zielabbrand von 50 GWd/t einer thermischen Leistung von 37,31 MW/t entspricht. Da laut [AG80] die Gesamtmasse des Schwermetalls im Kern etwa 103 Tonnen beträgt, ergibt sich für den gesamten Reaktor eine thermische Leistung von 3843 MW_t, was in guter Übereinstimmung mit der thermischen Nennleistung des GKN II von 3850 MW_t ist.

Für die Elementkonzentrationen der Strukturmaterialien, die nicht durch Brennstoffzusammensetzung und Hüllrohre bereits in der Berechnung enthalten sind, also etwa Abstandhalter und Aufhängung, wurden Referenzwerte aus dem SCALE-Handbuch übernommen (genaue Angabe in A.1), die eine gute Übereinstimmung mit denen für die betrachteten Brennelemente aus [AG80] angegebenen Materialien Inconel 718 (Zusammensetzung nach [SM07]) und Edelstahl vom Typ 1.4541 (Zusammensetzung nach [Ede15]) aufweisen. Da diese Materialien qua Design möglichst wenig Wechselwirkung mit dem Reaktorbetrieb haben sollen und je nach Hersteller des Brennelementes auch gleichwertige andere Materialien zum Einsatz kommen können, wurde dies als ausreichend erachtet. Der Einfluss der Strukturmaterialien auf den zu erwartenden Abbrand wird unter 4.3.2 entsprechend quantifiziert.

4.2. Geometrie des Brennelements

Als Grundlage für die Modellierung dienten Angaben aus dem Sicherheitsbericht der Kraftwerk-Union AG für das geplante Kraftwerk Biblis C [AG80], welches ebenso wie Neckarwestheim II (GKN II) als Konvoi-Reaktor konzipiert, aber nie in Betrieb genommen wurde. Die dort aufgeführten Spezifikationen für ein Brennelement des Typs 18-24 (18x18 Brennstäbe, 24 Führungsrohre für Steuerelemente) können daher analog für den GKN II übernommen werden. Dieser Brennelementtyp empfiehlt sich insbesondere dadurch, dass als möglicher Brennstoff explizit sowohl Urandioxid als auch Mischoxid (MOX) angegeben sind. Insofern sind diese Eingabedaten bei allen vorgestellten Rechnungen identisch.

Als aktive Säulenlänge wird der Abschnitt des Brennelementes bezeichnet, auf den sich der Brennstoff in vertikaler Richtung verteilt. Wie in Abbildung 2.2 befinden sich ober- und unterhalb der Brennstäbe zusätzlich Aufhängung und Halterung. Hinsichtlich der Bestimmung des Brennstoffvolumens sind sie allerdings irrelevant, zumal die eindimensionale Lösung der Neutronenflussgleichung durch das Modul XSDRNPM orthogonal zur z-Achse vorgenommen wird.

Art des Brennstabgitters	quadratisch
Mittelpunktabstand der Brennstäbe	1,27 cm
Durchmesser Brennstoffpellets	0,805 cm
Durchmesser Hüllrohr (außen)	0,950 cm
Durchmesser Hüllrohr (innen)	0,822 cm
Aktive Säulenlänge	390 cm

Tabelle 4.1.: Geometriedaten Brennelement BE 18-24

4.3. Abbrandrechnungen für Uranbrennelemente

Im Folgenden werden die durchgeführten Abbrandrechnungen für Uranbrennelemente vorgestellt. Anhand dieser Rechnungen wird die Wahl der Parameter für die im Anschluss vorgestellten Berechnungen für MOX-Brennelemente plausibilisiert. Außerdem lassen sich die aus der Unkenntnis der jeweils realen Betriebsbedingungen der Kernkraftwerke resultierenden Fehler abschätzen. In einem ersten Schritt erfolgt eine Variation der Anzahl der pro Reaktorzyklus erstellten Wirkungsquerschnittsbibliotheken, um einen geeigneten Kompromiss zwischen Rechenaufwand und Genauigkeit zur Verwendung bei allen weiteren Folgerechnungen zu finden. Der zweite Schritt besteht in der Variation der Anreicherungsgrade und dem Vergleich der Ergebnisse unter Einbeziehung und Auslassung von Strukturmaterialien in die Abbrandrechnung. Der dritte Schritt gilt der Untersuchung des Einflusses der Moderatorordichte auf die Ergebnisse.

Dichte UO_2	10,4 g/cm ³
Temperatur UO_2	833°C
Hüllrohrmaterial	Zircalloy 4
Hüllrohrtemperatur	376°C (mittel)
Kühlmitteldruck	157 bar
Kühlmitteltemperatur	319°C (mittel)
Kühlmitteldichte	0,687 g/cm ³

Tabelle 4.2.: Reaktorkonditionen für Uranabbrandrechnungen

4.3.1. Variation der Zeitintervalle pro Reaktorzyklus

Wie in Abschnitt 3.1 erläutert, müssen zur Entkoppelung von Nuklidkonzentrationen und Neutronenflussdichte geeignete Zeitintervalle definiert werden, in denen diese Größen als zeitlich konstant angenommen werden können. Für jedes Zeitintervall wird entsprechend von SAS2 eine aktualisierte Bibliothek von Gruppenwirkungsquerschnitten erstellt (vgl. Abschnitt 3.2). Die Anzahl der Zeitintervalle bzw. Bibliotheken pro Reaktorzyklus wurde daher schrittweise von eins bis zehn erhöht und die Auswirkung auf die Abbrandkonzentrationen der Isotope Cs134, Cs137 und U233-U238 sowie Pu238-Pu242 untersucht⁵. Der Anteil der jeweiligen Isotope in

⁵ Diese Isotope wurden gewählt, da ihre Einfangresonanzen (bzw. die ihrer Elternnuklide) im thermischen Bereich besonders groß sind und daher die pro Zeitintervall vorgenommenen Korrekturen für die Resonanzselbstabschirmung auf ihre Konzentrationen den größten Effekt erwarten lassen.

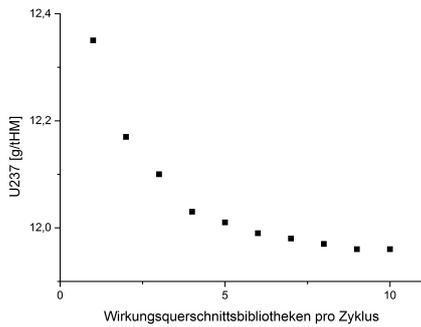


Abbildung 4.2.: U237 in Abhängigkeit von den Bibliotheken pro Zyklus

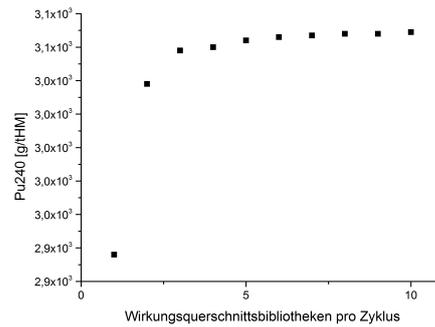


Abbildung 4.3.: Pu240 in Abhängigkeit von den Bibliotheken pro Zyklus

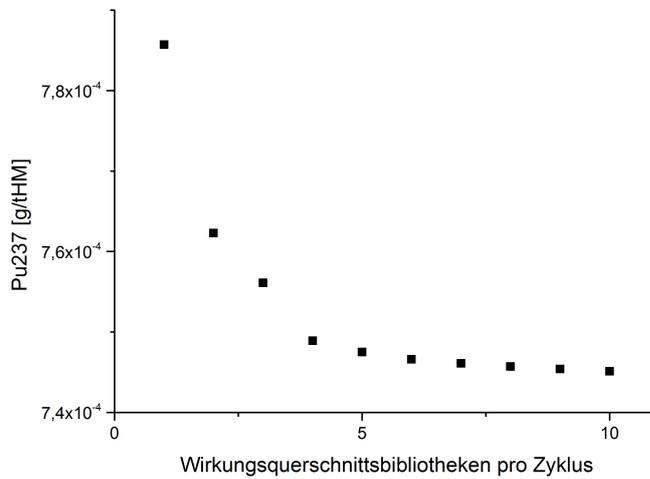


Abbildung 4.4.: Abbrandkonzentration Pu237 pro Tonne Schwermetall in Abhängigkeit von den Bibliotheken pro Zyklus

Gramm pro Tonne Schwermetall (g/tHM) ist in den Abbildungen 4.2-4.4 für U237, Pu237 und Pu240 exemplarisch gegen die Anzahl der pro Zyklus erstellten Bibliotheken aufgetragen. Bei der gewählten Anzahl von 4 Reaktorzyklen ergibt sich für die endgültige Abbrandrechnung die jeweils vierfache Gesamtzahl an Bibliotheken, die von ORIGEN-S zur Lösung der Abbrandgleichung 3.8 verwendet werden.

Die prozentual größten Veränderungen traten bei den Konzentrationen des Isotops Pu237 auf (siehe Tabelle 4.3). Unter der Maßgabe, dass die Veränderung der Konzentration durch Erhöhung der Anzahl der Zeitintervalle geringer als 0,2% sein sollen, wurde daher für alle weiteren Rechnungen der entsprechende Eingabeparameter *nlib/cyc* auf den Wert 5 gesetzt. Der für eine noch größere Genauigkeit benötigte Rechenaufwand wurde in Anbetracht der notwendigen Schätzungen anderer Eingabeparameter als unverhältnismäßig beurteilt.

Anzahl Zeitintervalle	Konzentration Pu237	Anteil vorheriger Wert
$[nlib/cyc]$	$[g/tHM]$	$[\%]$
1	$7,857 \cdot 10^{-4}$	—
2	$7,623 \cdot 10^{-4}$	97,02
3	$7,561 \cdot 10^{-4}$	99,19
4	$7,489 \cdot 10^{-4}$	99,05
5	$7,475 \cdot 10^{-4}$	99,81
6	$7,466 \cdot 10^{-4}$	99,88
7	$7,461 \cdot 10^{-4}$	99,93
8	$7,457 \cdot 10^{-4}$	99,94
9	$7,454 \cdot 10^{-4}$	99,96
10	$7,451 \cdot 10^{-4}$	99,96

Tabelle 4.3.: Variation Pu237

4.3.2. Vergleich des Einflusses von Strukturmaterialien bei verschiedenen Anreicherungen

Um den Einfluss der Strukturmaterialien auf die Ergebnisse der Abbrandrechnungen im Vergleich zum Einfluss der Brennstoffzusammensetzung abzuschätzen, wurden für die Anreicherungsgrade mit Uran235 von 3,2%, 4% und 5% jeweils Simulationen mit (MLE) und ohne (OLE) Einbeziehung der Referenzdaten aus dem SCALE 5.1 Handbuch durchgeführt. Die Ergebnisse sind bezüglich ausgewählter Isotope in Tabelle 4.4 zusammengefasst. Da der Einfluss der Brennstoffzusammensetzung deutlich überwiegt und die sich aus der Einbeziehung der Strukturmaterialien ergebende Änderung maximal 0,5% des Gesamtergebnisses ausmachen, wurden die Referenzdaten auch in alle weiteren Berechnungen übernommen.

Anreicherung U235		Cs134		U235		Pu237		Pu239	
OLE und MLE		$[g/tHM]$	$\Delta[\%]$	$[g/tHM]$	$\Delta[\%]$	$[g/tHM]$	$\Delta[\%]$	$[g/tHM]$	$\Delta[\%]$
3,2%	OLE	$2,180 \cdot 10^2$	/	$3,839 \cdot 10^3$	/	$7,506 \cdot 10^{-4}$	/	$5,593 \cdot 10^3$	/
	MLE	$2,174 \cdot 10^2$	0,28	$3,855 \cdot 10^3$	0,42	$7,475 \cdot 10^{-4}$	0,41	$5,594 \cdot 10^3$	0,02
4,0%	OLE	$2,055 \cdot 10^2$	/	$6,820 \cdot 10^3$	/	$7,354 \cdot 10^{-4}$	/	$6,022 \cdot 10^3$	/
	MLE	$2,050 \cdot 10^2$	0,24	$6,841 \cdot 10^3$	0,31	$7,324 \cdot 10^{-4}$	0,41	$6,023 \cdot 10^3$	0,02
5,0%	OLE	$1,912 \cdot 10^2$	/	$1,179 \cdot 10^4$	/	$6,914 \cdot 10^{-4}$	/	$6,589 \cdot 10^3$	/
	MLE	$1,908 \cdot 10^2$	0,21	$1,181 \cdot 10^4$	0,17	$6,887 \cdot 10^{-4}$	0,39	$6,578 \cdot 10^3$	0,17

Tabelle 4.4.: Einfluss Strukturmaterialien (LE)

4.3.3. Variationen der Moderatorordichte

Die Dichte des Moderators, im behandelten Fall von Druckwasserreaktoren H_2O , hat unmittelbare Auswirkungen auf die Anzahl der für die Kernspaltung zur Verfügung stehenden thermischen Neutronen. Sie hängt von Temperatur und Druck im Reaktorbehälter ab, doch insbesondere die Temperatur ist entlang der z-Achse nicht konstant, ein Effekt, der in der eindimensionalen Neutronentransportrechnung durch XSDRNPM nicht berücksichtigt werden kann. Zur Bestimmung der Moderatorordichte wurde daher der Mittelwert aus der in [AG80] angegebenen Temperaturen verwendet. Um die Auswirkungen dieser Näherung einschätzen zu können, wurde die Moderatorordichte bei ansonsten konstanten Parametern für die Abbrandrechnungen eines Uranbrennelements mit 4%-iger Anreicherung und 50 GWd Abbrand variiert⁶. Wie aus den Abbildungen 4.5 bis 4.8 hervorgeht, ist der Zusammenhang zwischen der Abbrandkonzentration der verschiedenen Isotope und der Moderatorordichte annähernd linear. Die Verwendung des Mittelwertes für die Moderatorordichte stellt insofern eine ausgezeichnete Näherung dar.

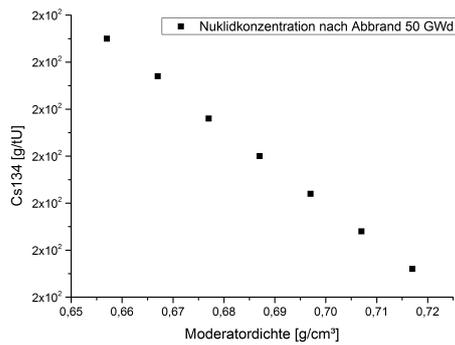


Abbildung 4.5.: Cs134 in Abhängigkeit von der Moderatorordichte

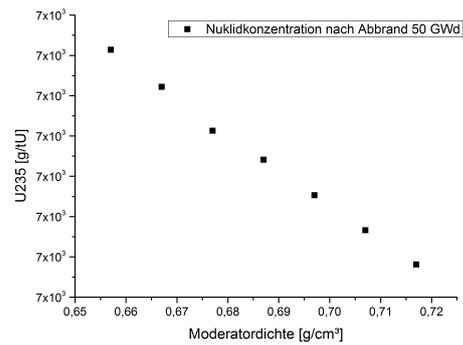


Abbildung 4.6.: U235 in Abhängigkeit von der Moderatorordichte

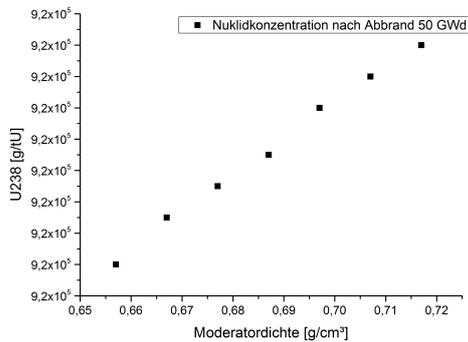


Abbildung 4.7.: U238 in Abhängigkeit von der Moderatorordichte

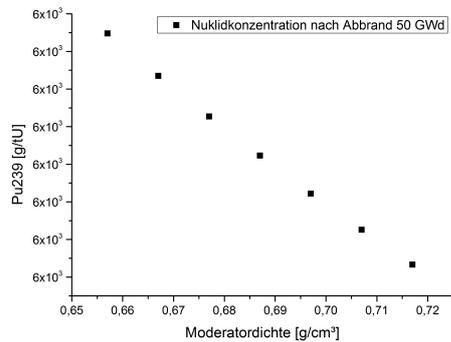


Abbildung 4.8.: Pu239 in Abhängigkeit von der Moderatorordichte

⁶ Die Dichte der im Moderatorwasser gelösten Borsäure wurde ebenfalls entsprechend angepasst.

4.3.4. Übersicht der Folgerungen

Aus den in diesem Abschnitt vorgestellten Resultaten konnten hinsichtlich der im nächsten Abschnitt vorgestellten Berechnungen für MOX-Brennelemente folgende Erkenntnisse gewonnen werden:

1. Die Anzahl der Aktualisierungen der Wirkungsquerschnitte pro Reaktorzyklus (*nlib/cyc*) wird auf den Wert 5 gesetzt, da durch weitere Rechenschritte keine signifikanten Änderungen des Ergebnisses auftreten.
2. Der Einfluss der Zusammensetzung von Strukturmaterialien ist erwartungsgemäß sehr gering, sowohl absolut für das Gesamtergebnis als auch gegenüber dem Einfluss der Zusammensetzung des Brennstoffes. Daher werden Referenzdaten für die Strukturmaterialien verwendet.
3. Die Verwendung eines Mittelwertes der Moderatorerdichte über die Höhe des Brennelementes stellt wegen des annähernd linearen Zusammenhangs mit den Nuklidabbrandkonzentrationen eine zufriedenstellende Näherung dar.

4.4. Radioxenoninventare aus MOX-Brennelementen

In diesem Abschnitt werden die Ergebnisse der Inventarrechnungen für Mischoxidbrennelemente mit verschiedenen Anreicherungsgraden und Isotopenvektoren vorgestellt. Im Unterschied zu den im vorherigen Abschnitt vorgestellten Uranabbrandrechnungen werden dabei nicht nur die Endinventare berücksichtigt, sondern auch die von ORIGEN-S zur Erzeugung der zeitabhängigen Wirkungsquerschnittsbibliotheken berechneten Nuklidkonzentrationen in die Betrachtung einbezogen, um die zeitliche Entwicklung des Radioxenonaufbaus nachvollziehen zu können. Die Ergebnisse werden zunächst den in dieser Arbeit vorgenommenen Berechnungen für Uranbrennstoff vergleichend gegenübergestellt und abschließend innerhalb des zur Verifikation des CTBT verwendeten Graphen verortet.

4.4.1. Eingabedaten

Da MOX-Brennelemente einen Anteil von herkömmlichen Uranbrennelementen in bestehenden Reaktoren ersetzen sollen, müssen Geometrie und Leistungsdichte so weit wie möglich identisch sein. Für den Typ BE18-24, dessen Geometriedaten in Tabelle 4.1 aufgelistet sind, sind in [AG80] explizit sowohl Uran als auch MOX als Befüllung vorgesehen, weshalb diese Daten übernommen werden konnten. Die thermische Leistungsdichte von 37,31 MW/t wurde gleichfalls übernommen, ebenso wie die Dauer der Betriebszyklen und Stillstandzeiten sowie Borkonzentration und Moderatorerdichte. Insofern wurden die simulierten MOX-Brennelemente also im gleichen simulierten Reaktor eingesetzt wie die im vorigen Abschnitt behandelten Uranbrennelemente. Bezüglich der weiteren Eingabedaten gelten folgende Überlegungen:

- Als Trägermaterial wurde für alle Rechnungen Natururan mit 0,7%-igem Gehalt an U235 verwendet.

- Die in [AG80] angegebene Uranbrennstoffdichte von $10,4 \text{ g/cm}^3$ für Uranoxid entspricht ca. 95% des theoretischen Werts unter den angegebenen Bedingungen. Entsprechend wurde die Dichte des Plutoniumoxidbestandteils der MOX-Brennelemente ebenfalls auf 95% des theoretischen Wertes gesetzt; dies entspricht $10,9 \text{ g/cm}^3$.
- Das in MOX-Brennelementen verwendete Plutonium stammt in der Regel aus wiederaufgearbeitetem Brennstoff. Sein genauer Isotopenvektor ist daher von der Betriebsgeschichte der Brennelemente abhängig, aus denen es gewonnen wurde. Diese Daten sind öffentlich nicht zugänglich. Die verwendeten Isotopenvektoren sind daher selbst Simulationsergebnisse, die von Gerald Kirchner [Kir85] durchgeführt worden sind. Sie sind in Tabelle 4.5 und Abbildung 4.9 dargestellt. Zu beachten ist, dass die Anfangsanreicherung in Prozent *der spaltbaren Isotope* Pu239 und Pu 241 (Pu^{fiss}) am Gesamtgewicht des Brennstoffes angegeben ist, analog zur Angabe der Anfangsanreicherung eines Uranbrennelements in Prozent des Isotops U235. Zu berücksichtigen ist zudem, dass das Natururan des Trägermaterials zusätzlich 0,7% Uran235 als Spaltmaterial beisteuert und die Gesamtanfangsanreicherung spaltbaren Materials der angegebenen Brennelemente effektiv zwischen 3,5 und 4,3% liegt.
- Die Herkunftsdaten der verwendeten Isotopenvektoren wie in [Kir85] angegeben sind in Tabelle 4.6 zusammengefasst. Der Wert der Leistungsdichte in den vorangegangenen Abbrandrechnungen der Uranbrennelemente liegt bei $37,5 \text{ MW/t}$. Variiert wurden somit der Anfangsanreicherungsgrad des Uranbrennelements, aus dessen Wiederaufarbeitung das Plutonium für das MOX-Element stammt, der Anfangsanreicherungsgrad des MOX-Brennelements mit spaltbarem Plutonium sowie die Lagerzeit des Plutoniums zwischen der Entnahme des Ausgangsbrennelements aus dem Reaktor und dem erneuten Einsatz als Bestandteil des MOX-Brennelements.
- Ein Abbrand von 50 GWd/t ist im Fall niedrig angereicherter Brennelemente (Anteil des Spaltmaterials unter 4%) insofern nicht realistisch, als die mittlere Spaltausbeute des Brennelements mit zunehmendem Abbrand sinkt und bei niedriger Anfangsanreicherung schneller den Wert erreicht, ab dem eine weitere Verwendung keinen ausreichenden Energiegewinn erwarten lässt. Für MOX-Brennelemente mit niedriger Spaltmaterialanreicherung (Vektoren 1 und 2) wurde daher mit einem Zielabbrand von 33 GWd/t gerechnet und die thermische Leistungsdichte entsprechend auf $24,63 \text{ MW/t}$ reduziert.

4.4.2. Vergleich mit Ergebnissen bei Uranbrennstoff

Der Vergleich der zeitlichen Entwicklung der thermischen Neutronenflussdichten in Abbildung 4.10 zeigt einen deutlich höheren Wert für Uranbrennelemente⁷ im Vergleich zu MOX-Brennelementen an. Dies ist darauf zurückzuführen, dass die Einfangresonanzen der Plutoniumisotope in einem höheren Energiebereich liegen als

⁷ Als Vergleichswerte dienen die Ergebnisse für ein Uranbrennelement mit 4%-iger Anreicherung aus Abschnitt 4.3.

Lfd. Nummer	Anreicherung	Pu238	Pu239	Pu240	Pu241	Pu242
1	2,83%	1,5	62,0	21,6	10,5	4,4
2	2,83%	3,0	55,9	22,6	11,8	6,7
3	3,6%	3,0	55,9	22,6	11,8	6,7
4	3,6%	3,0	53,8	21,7	15,1	6,4
5	3,6%	2,9	59,2	24,1	6,7	7,1

Tabelle 4.5.: Verwendete Isotopenvektoren für Plutonium in MOX-Brennelementen

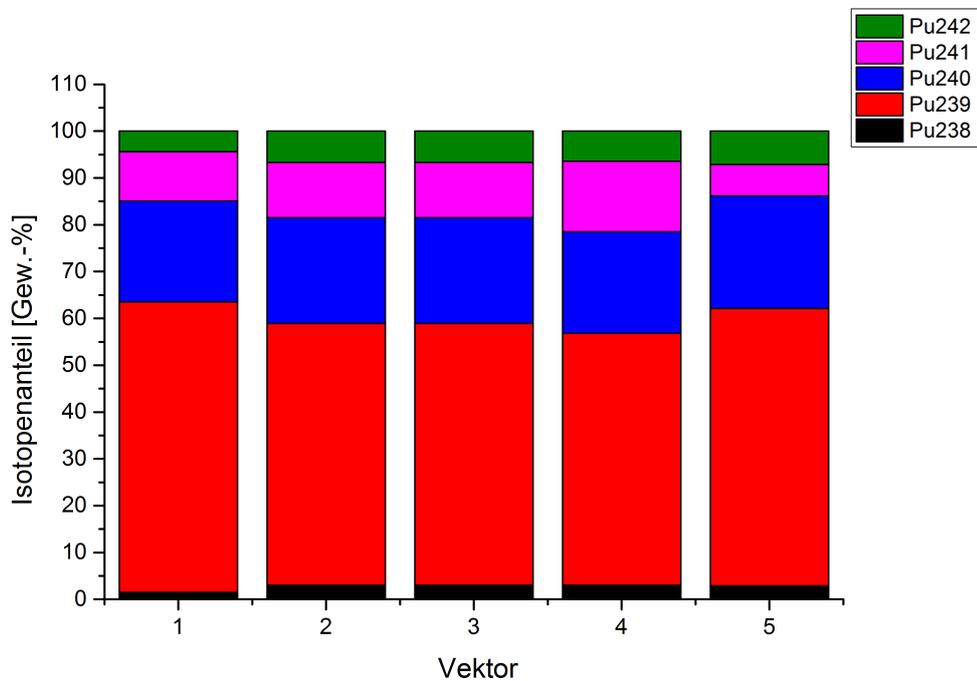


Abbildung 4.9.: Zusammensetzung des Plutoniumanteils der simulierten MOX-Brennelemente

Lfd. Nummer	Anreicherung	Zielabbrand	Lagerzeit	Spaltmaterial MOX	Zielabbrand
Isotopenvektor	Uran in %	Uran	in Jahren	aus U und Pu insgesamt	für MOX
1	3,2	33 GWd/t	7	3,5	33 GWd/t
2	4,0	50 GWd/t	7	3,5	33 GWd/t
3	4,0	50 GWd/t	7	4,26	50 GWd/t
4	4,0	50 GWd/t	1	4,26	50 GWd/t
5	4,0	50 GWd/t	20	4,26	50 GWd/t

Tabelle 4.6.: Herkunft des Plutoniums für MOX-Abbrandrechnungen [Kir85]

die für U235, wie aus den Abbildungen 4.11 und 4.12 hervorgeht, während sich die Ausgabe von ORIGEN-S an den Resonanzen für U235 orientiert. Daher wird bei der Verwendung von MOX ein größerer Teil der Neutronen in den Einfangresonanzen des Plutoniums gebunden und steht nicht mehr zur Spaltung von U235 zur Verfügung. Das Auslesen der durch XSDRNPM errechneten Gruppenflussdichten ließe eine genauere Analyse der Energieverteilung des Neutronenflussspektrums zu, konnte aber im Rahmen dieser Arbeit nicht realisiert werden.

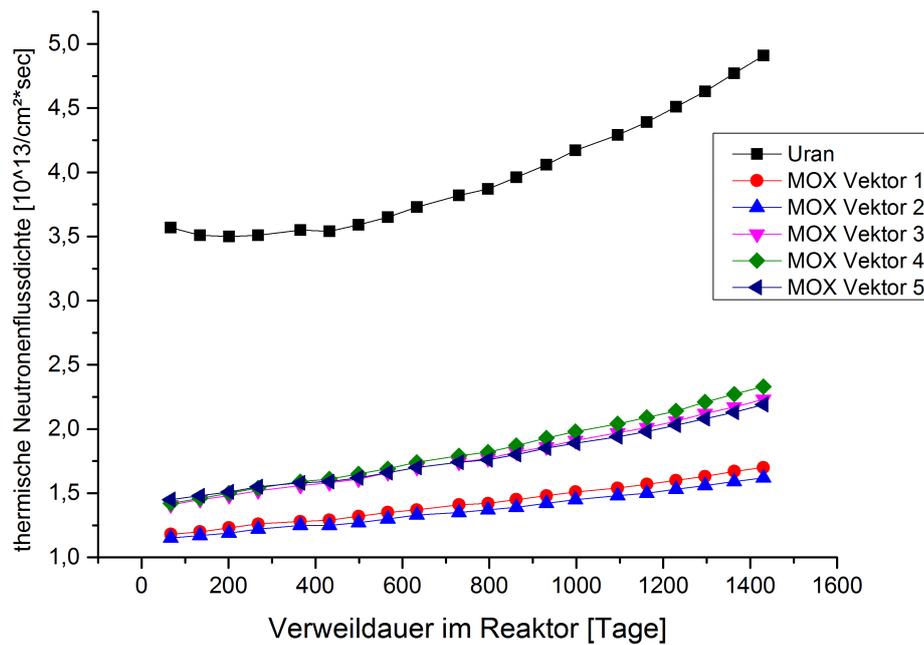


Abbildung 4.10.: Abbrandabhängige Neutronenflussdichte für verschiedene MOX-Vektoren im Vergleich mit Uran

Der Unterschied zwischen den Neutronenflussdichten für die Vektoren (1) und (2) im Vergleich zu den Vektoren (3)-(5) in Abbildung 4.13 hingegen lässt sich durch die geringere Leistungsdichte erklären, die für diese Vektoren wegen der geringeren Anfangsanreicherung gewählt worden ist (24,63 MW/t im Unterschied zu 37,31 MW/t). Für eine geringere Leistungsdichte sind weniger Spaltungen pro Masseinheit und Zeit erforderlich und eine entsprechend geringere Neutronenflussdichte zu erwarten. Die auf die unterschiedliche Isotopenzusammensetzung zurückzuführenden Unterschiede sind gegenüber den zuvor genannten vernachlässigbar gering.

In Abbildung 4.14 sind die errechneten Verhältnisse von Xe133m/Xe131m vergleichend dargestellt. Deutlich zu erkennen ist der schnelle Zerfall der Isotope nach den 30 Tagen Stillstandzeit am Ende der Reaktorzyklen. Während die Abweichung von den Vergleichswerten für Uranbrennstoff zu Beginn der Berechnung noch maximal 7,5% beträgt, gleichen sich die Werte mit zunehmender Abbrandzeit an, so dass die minimale Abweichung bei 0,3% liegt. Dieser Angleichungseffekt ist insofern erwartbar, als bei zunehmendem Abbrand das im Uranbrennelement erbrütete Plutonium

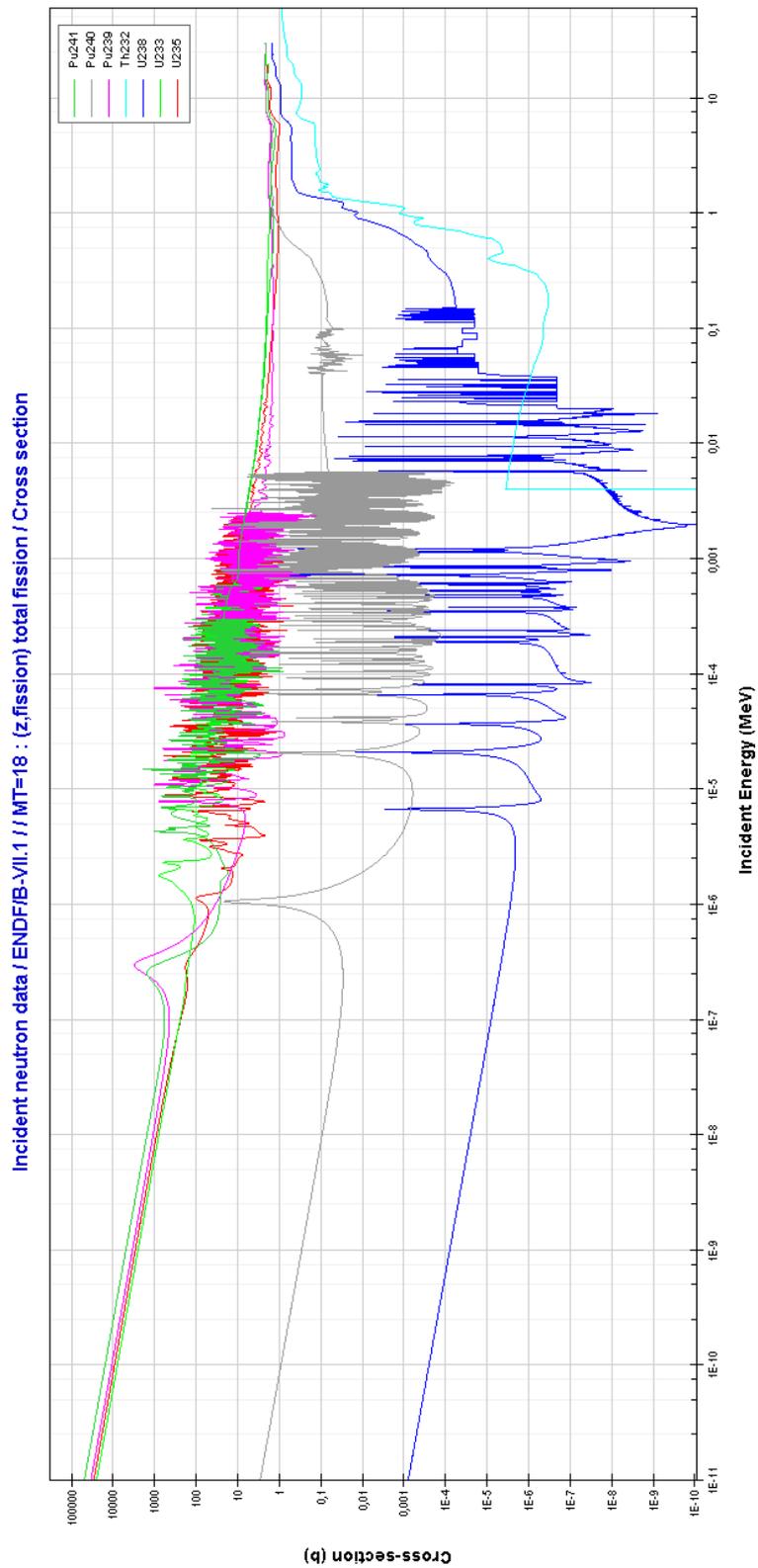


Abbildung 4.11.: Vergleich der Spaltwirkungsquerschnitte für verschiedene Isotope [Np16]

Incident neutron data / ENDF/B-VII.1 / Pu240 // Cross section

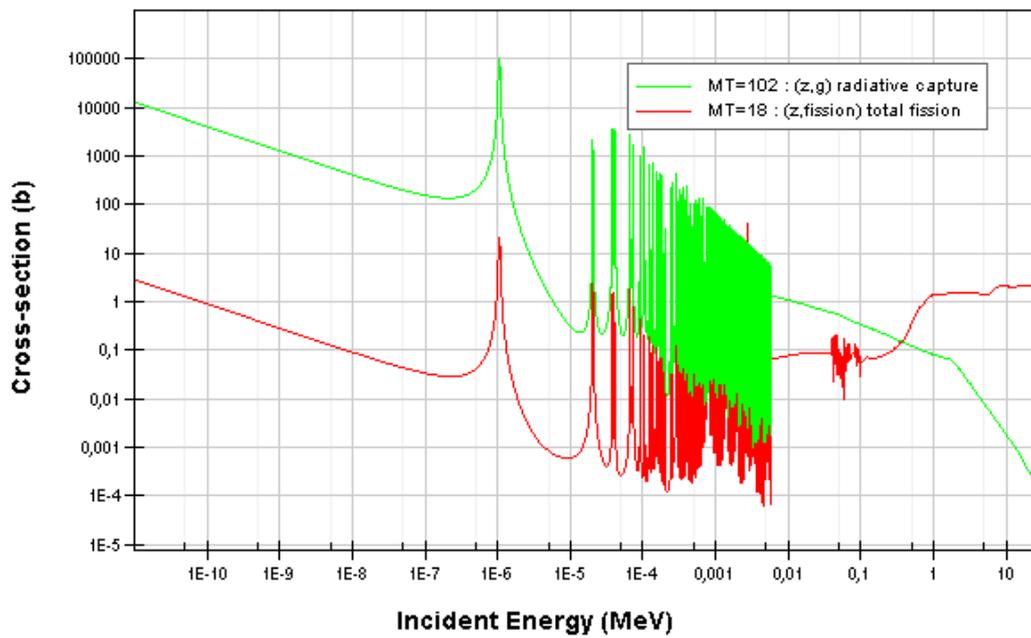


Abbildung 4.12.: Energieabhängige Wirkungsquerschnitte von Pu240 für Spaltung (rot) und Absorption (grün) [Np16]

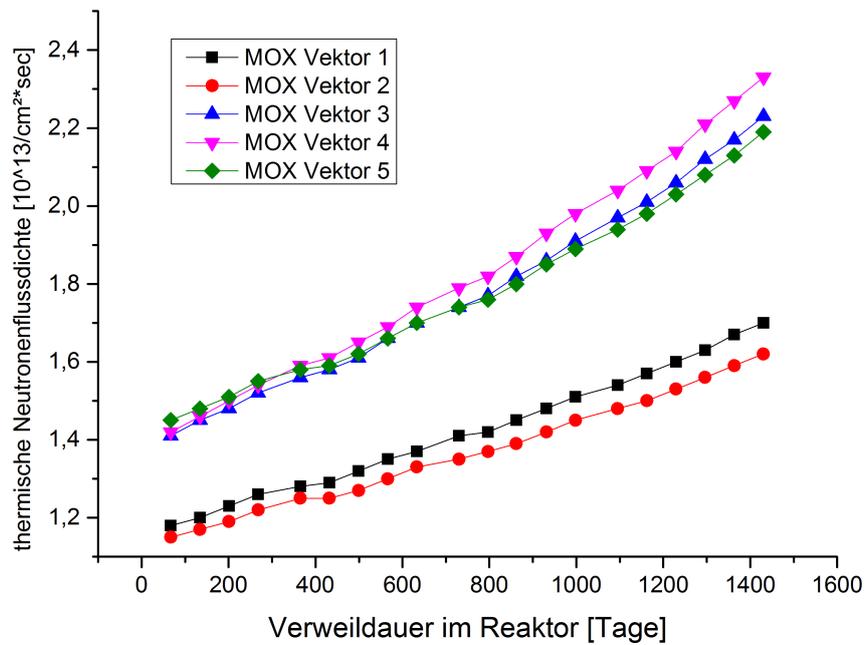


Abbildung 4.13.: Abbrandabhängige Neutronenflussdichte für verschiedene MOX-Vektoren

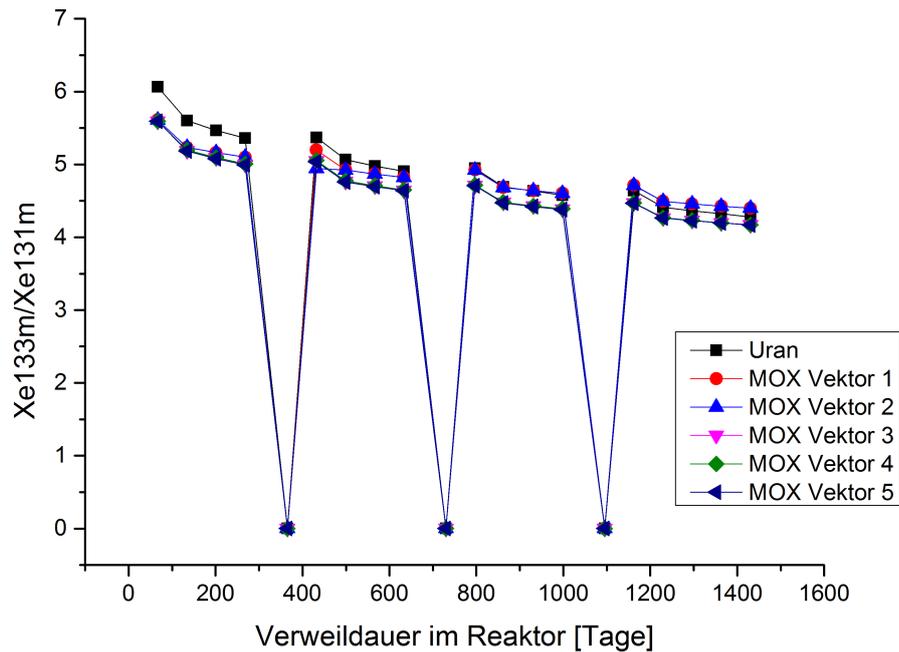


Abbildung 4.14.: Verhältnis Konzentrationen Xe133m/Xe131m

einen höheren Anteil des Spaltmaterials ausmacht. Die kumulativen Spaltausbeuten der betrachteten Xenonisotope unterscheiden sich für U235 und Pu239 in geringem Ausmaß (vgl. Tabelle 4.7). Dies spielt eine geringere Rolle, wenn sich über die Zeit die Verhältnisse der Spaltmaterialien annähern. Die Unterschiede zwischen den Isotopenvektoren unterschiedlicher Anreicherung und Leistungsdichte bewegen sich im Bereich bis 5,5%. Bei gleicher Anreicherung und Leistungsdichte (Vektoren (1) und (2) bzw. (3) bis (5)) ist der Einfluss der Isotopenzusammensetzung kaum noch darstellbar (vgl. Abbildung 4.15) und liegt unterhalb des Signifikanzniveaus von 0,02%, welches für die Rechengenauigkeit bei der Wahl der Zeitintervalle in Kapitel 4.3.1 festgelegt wurde.

In Abbildung 4.16 werden die Verhältnisse Xe135/Xe133 verglichen. Auch hier ist der fast vollständige Zerfall nach 30 Tagen Stillstandzeit zum Ende der Reaktorzyklen ersichtlich. Die für MOX errechneten Daten liegen 211,1% (zu Abbrandbeginn) bis 165,3% über den Vergleichswerten von Uran. Die geringe Anfangsanreicherung und Leistungsdichte führen für die Ergebnisse der Vektoren (1) und (2) zu bis zu 15,4% höheren Werten gegenüber den Vektoren (3) bis (5). Die ausschließlich auf die Iso-

	Xe131m	Xe133	Xe133m	Xe135
U235	$3,1266 \cdot 10^{-4}$	$6,5963 \cdot 10^{-2}$	$1,8878 \cdot 10^{-3}$	$6,6614 \cdot 10^{-2}$
Pu239	$4,0483 \cdot 10^{-4}$	$6,69948 \cdot 10^{-2}$	$2,156 \cdot 10^{-3}$	$7,3602 \cdot 10^{-2}$

Tabelle 4.7.: Kumulative Spaltausbeuten von U235 und Pu239 [IAE16a]

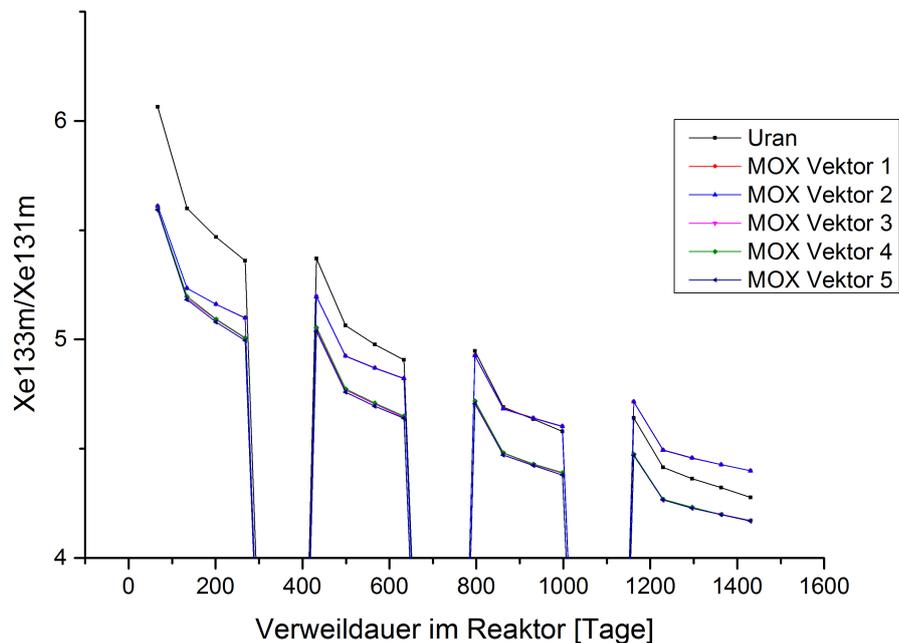


Abbildung 4.15.: Verhältnis Konzentrationen Xe133m/Xe131m Ausschnittvergrößerung

topenzusammensetzung zurückzuführenden Differenzen machen demgegenüber weniger als 0,2% aus.

Über unterschiedliche Spaltausbeuten lässt sich dieser Effekt nicht erklären. Der Grund für die signifikante Erhöhung des Xe135/133 im Vergleich zu Uran ist das veränderte Neutronenspektrum: Der thermische Wirkungsquerschnitt von Xe135 übertrifft mit $2,85 \cdot 10^6$ barn den der übrigen Nuklide um mehrere Größenordnungen⁸. Die Xe135-Konzentration ist daher sehr sensitiv gegenüber der Verringerung der thermischen Neutronenflussdichte durch den erhöhten Einfang in den Resonanzen der Plutoniumisotope.

Insgesamt kann der Einfluss der exakten Isotopenzusammensetzung des wiederaufgearbeiteten Plutoniums als vernachlässigbar gegenüber der Leistungsdichte und dem Anreicherungsgrad angesehen werden. Dies bedeutet, dass die genaue Herkunft des Plutoniums innerhalb der MOX-Brennelemente nicht bekannt sein muss, –solange es sich um solches aus der kommerziellen Wiederaufarbeitung handelt–, um eine belastbare Aussage für die zu erwartenden Isotopenverhältnisse zu treffen. Bezüglich der Verifikation des CTBT hat dies zur Folge, dass die Aussagen dieser Arbeit für alle im Normalfall verwendeten MOX-Brennelemente Gültigkeit haben.

⁸ Zum Vergleich: Der thermische Wirkungsquerschnitt für Uran235 liegt bei 586 barn, der für Cs137 bei 0,2 barn.

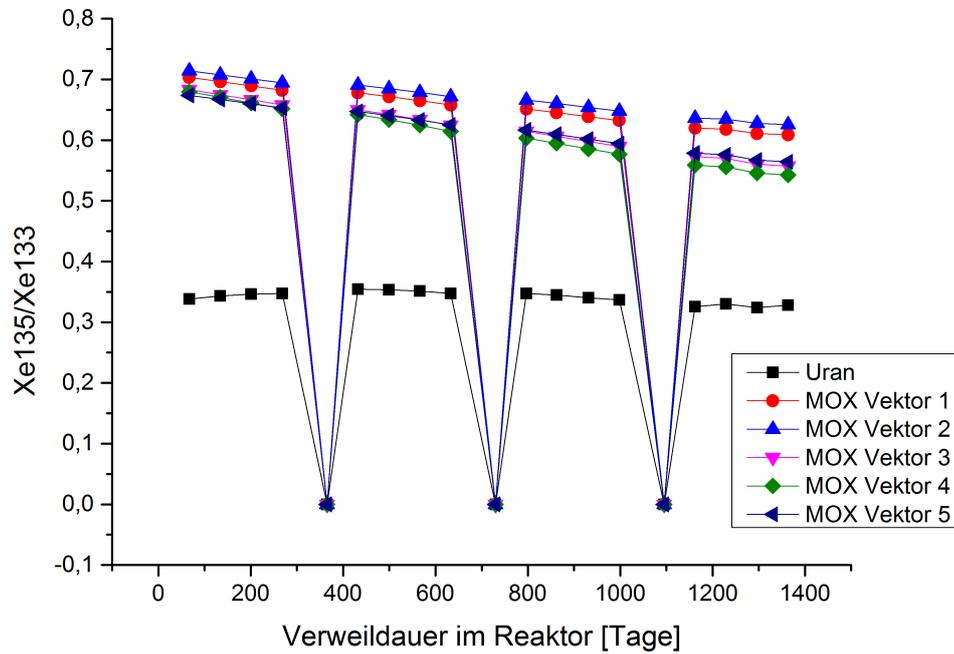


Abbildung 4.16.: Verhältnis Konzentrationen Xe135/Xe133

Von Bedeutung sind hingegen Anreicherungsgrad der Brennelemente und Leistungsdichte des Reaktors. Die für die Berechnungen verwendeten Eingabedaten sind allerdings so gewählt, dass die Grenzen des zu erwartenden „Korridors“ an Signaturen erfasst sind. Die entscheidende Abweichung im Vergleich zu Uranbrennelementen bei der Verwendung von MOX besteht in den erhöhten Werten für das Xe135/Xe133-Verhältnis. Zur Bewertung der Auswirkungen auf den Verifikationsmechanismus des CTBT wird daher im letzten Abschnitt eine Einordnung in die zur Bestimmung der verwendeten Diskriminierungslinie in [MBK10] veröffentlichten Daten vorgenommen.

4.4.3. Vergleich mit Daten von Kalinowski/Pistner

Die errechneten Nuklidkonzentrationen wurden gemäß der Formel

$$A = \frac{m[g]}{m_{Molar}[g/mol]} \cdot N_A \cdot \frac{\ln 2}{T_{1/2}}$$

mit A : Aktivität

N_A : Avogadrozahl $6,022 \cdot 10^{23} mol^{-1}$

$T_{1/2}$: Halbwertszeit

in Aktivitäten umgerechnet und gemeinsam mit in [MBK10] veröffentlichten Daten für ein Uranbrennelement mit 3,2% Anfangsanreicherung in doppelt logarithmischem Maßstab aufgetragen. In Abbildung 4.17 ist exemplarisch das Ergebnis für den MOX-Isotopenvektor (3) zu sehen.

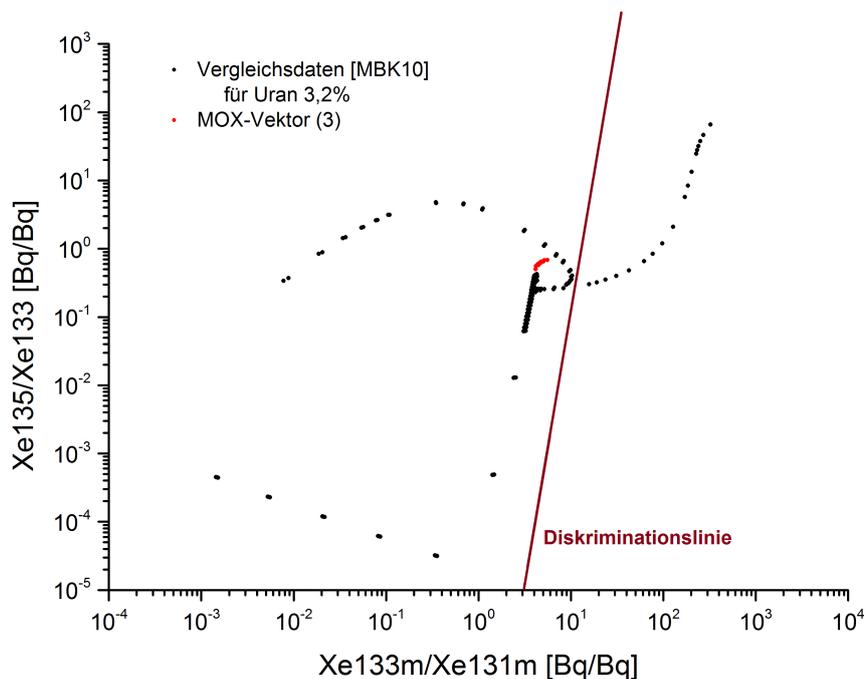


Abbildung 4.17.: Vergleich mit Simulationsergebnissen Kalinowski/Pistner

Dabei zeigt sich zunächst, dass die innerhalb dieser Arbeit berechneten Werte nur Vergleichsparameter für den Gleichgewichtszustand während des Reaktorbetriebes darstellen können, bedingt durch die Festlegung der Inventaraktualisierung auf die Mitte der gewählten Zeitintervalle (siehe Abschnitt 3.2). Eine weitergehende Reproduktion der von Kalinowski et al. vorgelegten Daten ist innerhalb des SAS2-Moduls nur bei einer Modifikation des Programmcodes praktikabel umsetzbar, da es im ursprünglichen Codesystem nicht vorgesehen ist, die Erstellung einer Vielzahl von

Bibliotheken nur für einen kleinen Zeitabschnitt zu fordern. Die erstellten Bibliotheken werden, wie in Abbildung 3.4 gezeigt, prinzipiell gleichmäßig über einen gesamten Zyklus verteilt, weshalb schon eine zeitliche Auflösung nach Tagen das Erzeugen von 365 Bibliotheken pro Zyklus erfordern würde. Diese Eingabe sprengt den zulässigen Eingabebereich und würde bei enorm gesteigertem Rechenaufwand eine große Zahl von Bibliotheken ohne nennenswerte Mehrinformation erzeugen. Zudem würde in Anbetracht der geringen Halbwertszeit von Xe135 von 9,2 Stunden noch immer keine befriedigende Auflösung für die Entwicklung während des Hoch- und Herunterfahrens des Reaktors erzielt.

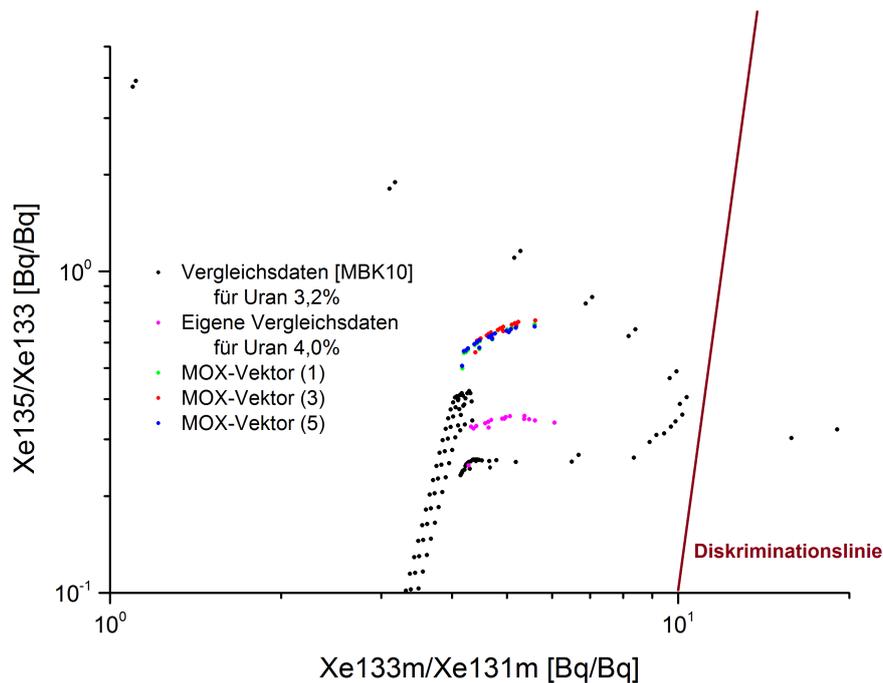


Abbildung 4.18.: Vergrößerung Gleichgewichtszustand Vektoren (1),(3),(5)

Lediglich der Zerfallsverlauf nach erfolgtem Herunterfahren ließe sich durch eine entsprechende Vielzahl von Simulationen, die jeweils eine nur leicht variierte Abklingzeit vorsehen, näherungsweise darstellen. Allerdings muss im unmodifizierten SAS2 Modul der höchste Detailgrad für die Ausgabe (PRINTLEVEL=10) gewählt werden, um die Nuklidinventare aus der Erzeugung der Wirkungsquerschnittsbibliotheken innerhalb der Output-Datei zu erhalten. Die resultierenden Ausgabedateien enthalten bereits für die im Rahmen der Arbeit vorgestellten Berechnungen über eine Million Zeilen an Ausgabedaten, die zudem nicht in einem für die Verarbeitung in einem Datenauswertungsprogramm wie OriginPro geeigneten Format vorliegen. Allerdings zeigen auch die Berechnungen von [MBK06] und [MBK10] für die Zerfallsphase einen Verlauf parallel zur Diskriminierungslinie, der lediglich von den Zerfallskonstanten der Nuklide abhängt und entsprechend auch für die im Rahmen dieser Arbeit errechneten Verhältnisse zu erwarten ist.

Aus den genannten Gründen war es zeitlich nicht möglich, innerhalb der vorliegenden Arbeit eine vollständige Reproduktion des Kalinowski-Pistner-Graphen bei der Verwendung von MOX-Brennelementen zu erstellen.

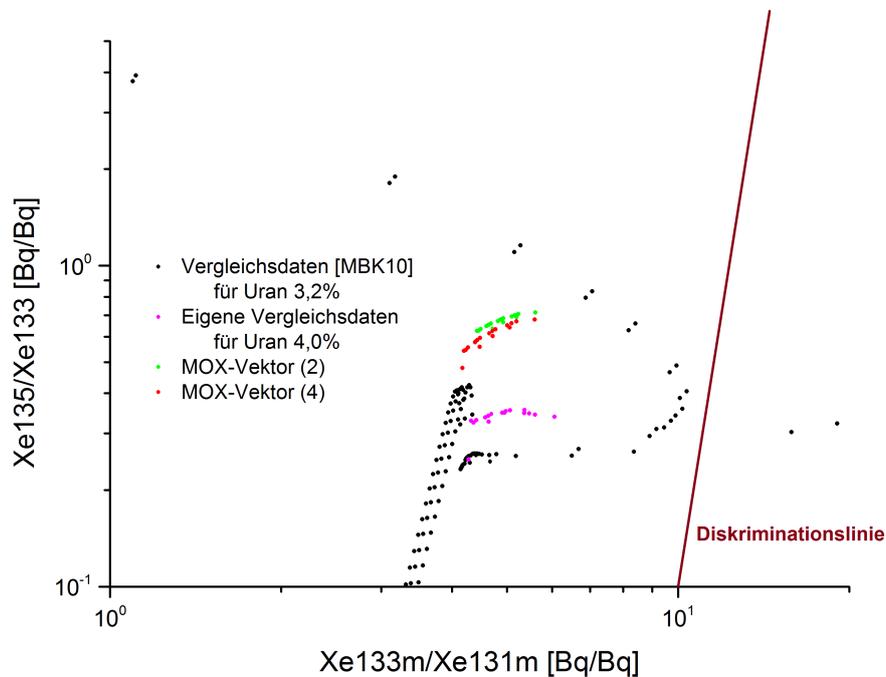


Abbildung 4.19.: Vergrößerung Gleichgewichtszustand Vektoren (2),(4)

In den Graphen 4.18 und 4.19 ist der Ausschnitt für den Gleichgewichtszustand im Reaktorbetrieb vergrößert, für den Vergleichswerte gebildet werden konnten. Die Veränderungen durch insbesondere den höheren Xe135-Anteil verschieben die Trajektorien nicht in Richtung der Diskriminationslinie (links-unten), sondern tendenziell sogar von ihr weg (rechts-oben). Zudem sei an dieser Stelle noch einmal daran erinnert, dass MOX-Brennelemente gemeinsam mit Uranbrennelementen innerhalb eines Reaktors verwendet werden und insofern die Ober- und Untergrenzen erwartbarer Emissionen gegenübergestellt wurden. Die Verwendung von MOX als Brennstoff in Kernreaktoren stellt daher die Anwendung des Verifikationsmechanismus nicht in Frage.

5. Zusammenfassung und Ausblick

Eine große Herausforderung für die theoretische Bestimmung der zu erwartenden Radionuklidemissionen bei der Verwendung von MOX-Brennelementen war die Wahl geeigneter Eingabedaten, da die genauen Betriebsbedingungen zwischen einzelnen AKWs variieren und auch innerhalb eines spezifischen Reaktors betriebsbedingten Änderungen unterworfen sind. Zudem verfolgen die Betreiber der Atomkraftwerke eine restriktive Informationspolitik. Andererseits ist für die Überprüfung des Verifikationsmechanismus des CTBT zunächst nicht die exakte Rekonstruktion der Emissionen eines spezifischen Brennelementes von Interesse, sondern die Bestimmung des Möglichkeitsraumes ziviler Signaturen.

Um dieser Problematik gerecht zu werden, wurde mit dem Reaktor Neckarwestheim II (GKN II) ein moderner Druckwasserreaktor als exemplarische Grundlage gewählt, für den in Form des Sicherheitsberichtes für den geplanten, aber nicht gebauten Reaktor der gleichen Baureihe Biblis C [AG80] Betriebsbedingungen und Brennelementgeometrie vorlagen. Der Einfluss variierender Parameter für Moderator-dichte⁹, Strukturmaterialien und Anreicherungsgrade konnte anhand von vorbereiteten Berechnungen mit Uranbrennstoff in Abschnitt 4.3 bestimmt werden, ebenso wie ein geeigneter Wert für die Anzahl der durch SAS2 erzeugten zeitabhängigen Wirkungsquerschnittsbibliotheken. Die Materialzusammensetzung erweist sich als überwiegender Effekt gegenüber dem Einfluss auf die Nuklidabbrandkonzentrationen durch Strukturmaterialien (weniger als 0,5% insgesamt) oder einer weiteren Erhöhung der Anzahl erstellter Bibliotheken (weniger als 0,02%). Räumliche und zeitliche Variationen der Moderator-dichte sind wegen des annähernd linearen Zusammenhangs mit den Abbrandkonzentrationen bei Verwendung des Mittelwertes vernachlässigbar.

Auf dieser Grundlage wurden in Abschnitt 4.4 sowohl Anreicherungsgrad als auch Isotopenzusammensetzung für Abbrandrechnungen eines MOX-Brennelementes unter den Einsatzbedingungen innerhalb des GKN II variiert. Die Auswirkungen der zugrundegelegten Brennstoffart (Uran oder MOX) und Anreicherung erweisen sich dabei als dominant gegenüber dem Einfluss unterschiedlicher Isotopenvektoren bei dem verwendeten Plutonium. Der Vergleich der Ergebnisse sowohl mit den in Abschnitt 4.3 gewonnenen Daten, als auch mit den für [MBK10] zu Grunde gelegten Berechnungen zeigt dabei für MOX einen signifikanten Anstieg des Verhältnisses der Konzentrationen und Aktivitätsraten von Xe135 zu Xe133 gegenüber Uran an. Dies ist insofern plausibel, als die Einfangresonanzen der in MOX in größerer Konzentration vorliegenden Plutoniumisotope in einem höheren Energiebereich einsetzen als diejenigen von Uran. Die resultierende Härtung des Spektrums führt zu einer höheren Xe135-Konzentration, die wegen des hohen thermischen Wirkungsquerschnittes des

⁹ Hier gehen die Variationen von Druck und Temperatur ein.

Isotops überproportional sensibel gegenüber Änderungen der thermischen Neutronenflussdichte ist.

Weitergehende Fragestellungen:

- Obwohl DWRs den Großteil der in Betrieb befindlichen AKWs ausmachen, sind Berechnungen bezüglich weiterer in Betrieb befindlicher Reaktortypen notwendig, um den Möglichkeitsraum möglicher Xenonsignaturen vollständig zu bestimmen.
- Die für die Verifikation verwendete Xe135-Konzentration und -Aktivitätsrate reagiert wegen des hohen thermischen Wirkungsquerschnitts des Isotops besonders sensitiv auf Veränderungen des Neutronenflussspektrums. Eine zeitlich und energetisch hochauflösende Simulation von Nichtgleichgewichtszuständen mit hoher Änderungsrate des Flussspektrums beispielsweise während des An- und Herunterfahrens eines Reaktors kann daher weitere Erkenntnisse liefern. Die grundsätzliche qualitative Aussage dieser Arbeit über höhere Xe135-Konzentrationen bei Verwendung von MOX wird davon aber nicht berührt.
- Betriebsbedingungen, die der neutronenphysikalischen Situation bei einem atomaren Test näher kommen, insbesondere die kurzzeitige Bestrahlung hochangereicherter Urantargets, stellen für die Verifikation ein mögliches Problem dar. Mögliche Felder von Folgeuntersuchungen wären daher die Produktion medizinischer Isotope, Forschungsreaktoren und atomare Schiffsantriebe, in denen ebenfalls hochangereichertes Uran zum Einsatz kommt.

Da höhere Konzentrationen von Xe135 die zu erwartenden Signaturen in keinem Fall näher an die Diskriminationslinie zur Unterscheidung ziviler Quellen von atomaren Tests verschieben, kann ein negativer Einfluss der Verwendung von MOX in DWRs auf die Verifikationsfähigkeit des CTBT somit ausgeschlossen werden. Andere Aspekte, unter denen der Einsatz von MOX beurteilt werden muss, etwa Betriebssicherheit, Toxizität der Abfälle und Proliferationsrisiken (Wiederaufarbeitung von Brennstoff ist eine Voraussetzung für den Bau von Plutoniumbomben) sind davon nicht berührt.

A. Anhänge

A.1. Zusammensetzung Strukturmaterialien

In Tabelle A.1 sind die Konzentrationen an leichten Elementen in kg pro (auf 1 Tonne renormiertem) Brennelement zusammengefasst, die als Bestandteile der Strukturmaterialien in die Berechnungen mit einbezogen wurden [IG06].

C	0.10962	N	0.06180	O	113.72	Al	0.08361
Si	0.12052	P	0.26023	Ti	0.09119	Cr	4.282
Mn	0.20057	Fe	8.416	Co	0.06120	Ni	8.056
Zr	184.46	Nb	0.59933	Mo	0.33233	Sn	3.023

Tabelle A.1.: Eingabedaten leichte Elemente aus Strukturmaterialien

A.2. Eingabedateien für SAS2

Verwendete Eingabedateien für SAS2 für ein Uranbrennelement bei 4%-Anfangsanreicherung und für ein MOX-Brennelement unter Verwendung des Pu-Isotopenvektors (3).

A.2.1. Eingabedatei Uranbrennelement

Vollständige Eingabedatei für die Abbrandsimulation eines 18x18-24 Uranbrennelementes mit 4%-iger Anfangsanreicherung im GKN II bei 50 GWd/t Zielabbrand.

```
1 =sas2 parm='skipcellwt'
2 sas2 GKN2: 50mwd/kgU, 18*18 pin, pwr, 4 cyc, dry-fuel cask
3 44groupndf5 latticecell
4 'Mittlere Dichte, Urangehalt 4.0%'
5 '-----'
6 '          composition input, Brennstoffdichte über volume-fraction Eintrag
7 '
8 uo2 1 0.9489 1106 92234 0.028 92235 4.0 92238 95.972 end
9 zirc4 2 1 649 end
10 h2o 3 den=0.687 1 592 end
11 boron 3 den=0.687 800.0e-6 592 end
12 '
13 'Borsäuregehalt über Zeit: bfrac bei den Zyklen Mittelwert
14 'Temp: Kirchner uo2 833 C , Hüllrohr KWU 2.6.2.4 mittel 376 C, Moderator 319 C
15 'Dichte für Moderator nach Table S2.5.2 auf Seite S2.5.13 im Scale 5.1 Manual
16 '-----'
17 '          shipping cask (data from Sample Case 2 for SAS2 in Scale 5.1 Manual)
18 '          irrelevant für Abbrandrechnungen
19 '
20 ss304 4 2.1375-2 end
21 n 4 den=1.22-3 0.553 end
22 ss304 5 2.1375-2 end
23 n 5 den=1.22-3 0.553 end
24 ss304 6 2.1712-2 end
25 b4c 6 7.7066-2 end
26 n 7 1-20 end
27 ss304 8 end
28 u(.27)metal 9 end
29 h2o 12 0.944 end
30 end comp
31 '
32 '-----'
33 '          assembly geometry BE 18x18-24 from 2.6.5/1 KWU DWR 1300
34 '          Anzahl Brennstäbe npin/assm für 1 Tonne Schwermetall pro Brennelement
35 squarepitch 1.27 0.805 1 3 0.950 2 0.822 0 end
36 npin/assm=549 fuelnlength=390.00 ncycles=4 nlib/cyc=5
37 printlevel=9
38 lightel=16
39 '
40 '
41 '-----'
42 ' Zyklusdauer standardisiert, Power nach Zielabbrand 50 Mwd/kgU
43 ' bfrac für 600, 400, 200 Mittelwerte bei Start von 900 und Ende bei 100 ppm
44 '
45 power=37.3134 burn=335 down=30 end
46 power=37.3134 burn=335 down=30 BFRAC= 0.75 end
47 power=37.3134 burn=335 down=30 BFRAC= 0.5 end
48 power=37.3134 burn=335 down=30 BFRAC= 0.25 end
49 '
50 '-----'
51 'light elements per assembly aus Handbuch Referenz
52 'auf 1-Tonnen-Brennelement hochgerechnet
53 '
54 c 0.10962 n 0.06180 o 113.72 al 0.08361
55 si 0.12052 p 0.26023 ti 0.09119 cr 4.282
```

```
56 mn 0.20057 fe 8.416 co 0.06120 ni 8.056
57 zr 184.46 nb 0.59933 mo 0.33233 sn 3.023
58 '
59 '-----
60 '      zone description shipping cask (Sample Case 2)
61 '      irrelevant für Abbrandrechnungen
62 '
63 27n-18couple tempcask(k)=325 numzones=9 detect=0 dryfuel=yes end
64 4 12.75 6 21.72 5 38.05 7 47.63 8 48.90
65 9 57.40 8 61.35 12 72.78 8 73.22
66 zone=1 fuelbndl=1 zone=3 fuelbndl=6
67 epss=1-7 ptcs=1-8
68 end
69 end
```

A.2.2. Eingabedatei MOX-Brennelement

Vollständige Eingabedatei für die Abbrandsimulation eines 18x18-24 Uranbrennelementes mit Plutonium-Isotopenvektor (3) im GKN II bei 50 GWd/t Zielabbrand.

```
1 =sas2 parm='skipcellwt'
2 sas2 GKN2: 50mwd/kgU, 18*18 pin, pwr, 4 cyc, dry-fuel cask
3 44groupndf5 latticecell
4 'MOX Vektor (3)
5 '-----
6 '      composition input
7 '      Brennstoffdichte direkt über den=xxx in g/cm^3
8 '      Mischungsverhältnis Uran-Plutonium über VF, nach Hochrechnen von Pufiss
9 '      auf Pugesamt
10 '
11 uo2 1 den=10.412 0.946 1106 92234 0.028 92235 0.7 92238 99.272 end
12 puo2 1 den=10.887 0.054 1106 94238 3.0 94239 55.9 94240 22.6 94241 11.8
13 94242 6.7 end
14 zirc4 2 1 649 end
15 h2o 3 den=0.687 1 592 end
16 boron 3 den=0.687 800.0e-6 592 end
17 '
18 'MOX nach Kirchner85 S.77 (11)
19 'Dichte = theoretische Dichte nach Scale 5.1 Manual M8.2.28/29
20 'Borsäuregehalt (über Zeit: bfrac bei den Zyklen) Mittelwert!
21 'Temperatur: U/Pu Kir85 833 C , Hüllrohr KWU 2.6.2.4 mittel 376 C, Wasser 319 C
22 'Dichte für Moderator nach Table S2.5.2 auf Seite S2.5.13 im Scale 5.1 Manual
23 '-----
24 '      shipping cask (data from Sample Case 2 for SAS2 in Scale 5.1 Manual)
25 '      irrelevant für Aufgabenstellung
26 ss304 4 2.1375-2 end
27 n 4 den=1.22-3 0.553 end
28 ss304 5 2.1375-2 end
29 n 5 den=1.22-3 0.553 end
30 ss304 6 2.1712-2 end
31 b4c 6 7.7066-2 end
32 n 7 1-20 end
33 ss304 8 end
34 u(.27)metal 9 end
35 h2o 12 0.944 end
36 end comp
37 '
38 '-----
39 '      assembly geometry BE 18x18-24 from 2.6.5/1 KWU DWR 1300
40 '      Anzahl Brennstäbe npin/assm für 1 Tonne Schwermetall pro Brennelement
41 squarepitch 1.27 0.805 1 3 0.950 2 0.822 0 end
42 npin/assm=549 fuelngth=390.00 ncycles=4 nlib/cyc=5
43 'Bearbeitungszeit 5 Minuten
44 printlevel=10
45 lightel=16
46 '
47 '
48 '-----
49 '      Zyklusdauer standardisiert, Power nach Zielabbrand 50 Mwd/kgU
50 '      bfrac für 600, 400, 200 Mittelwerte bei Start von 900 und Ende bei 100 ppm
51 '
52 power=37.3134 burn=335 down=30 end
53 power=37.3134 burn=335 down=30 BFRAC= 0.75 end
54 power=37.3134 burn=335 down=30 BFRAC= 0.5 end
55 power=37.3134 burn=335 down=30 BFRAC= 0.25 end
56 '
57 '-----
58 '      light elements per assembly aus Handbuch Referenz
59 '      auf 1-Tonnen-Brennelement hochgerechnet!
60 '
61 c 0.10962 n 0.06180 o 113.72 al 0.08361
62 si 0.12052 p 0.26023 ti 0.09119 cr 4.282
63 mn 0.20057 fe 8.416 co 0.06120 ni 8.056
64 zr 184.46 nb 0.59933 mo 0.33233 sn 3.023
```

```
65 '
66 '-----
67 '       zone description shipping cask (Sample Case 2 Scale Manual)
68 '       irrelevant für Aufgabenstellung
69 27n-18couple tempcask(k)=325 numzones=9 detect=0 dryfuel=yes end
70 4 12.75 6 21.72 5 38.05 7 47.63 8 48.90
71 9 57.40 8 61.35 12 72.78 8 73.22
72 zone=1 fuelbndl=1 zone=3 fuelbndl=6
73 epss=1-7 ptcs=1-8
74 end
75 end
```

Literaturverzeichnis

- [AG80] AG, Kraftwerk-Union: *Sicherheitsbericht für das Kernkraftwerk Biblis, Block C*. Offenbach, 1980
- [Bun10] BUNDESTAG, Duetscher: *Antwort der Bundesregierung zum Thema "Sicherheit bei Transport, Lagerung und Einsatz von MOX-Brennelementen". Drucksache 17/1323 vom 08.04.2010 abgerufen am 21. Oktober 2016.* dipbt.bundestag.de/extrakt/ba/WP17/249/24934. Version: 2010
- [CTB16] CTBTO: *Internetpräsenz der Comprehensive Test Ban Treaty Organisation - Preparatory Commission, zuletzt abgerufen am 26. Oktober 2016.* www.ctbto.org/. Version: 2016
- [DG16] DIRECTOR GENERAL, IAEA: GC(60)/INF/2. In: *Nuclear Technology Review 2016* International Atomic Energy Agency, IAEA, 2016
- [Ede15] EDELSTAHLWERKE, Deutsche: *Werkstoffdatenblatt X6CrNiTi18-10 1.4541, zuletzt abgerufen am 24. Oktober 2016.* <https://www.dew-stahl.com/leistungsspektrum/rsh-stahl/>. Version: 2015
- [EDF12] EDF, Areva NP : *Pre-Construction Safety Report, Fundamental Safety Overview, Volume 2: Design and Safety Report Chapter B, subchapter B.3: Comparison Table - Comparison with reactors of similar design (N4 and KONVOI), abgerufen am 21. Oktober 2016.* www.epr-reactor.co.uk. Version: 2012
- [HS09] HIDEYUKI SAKATA, Jun Shimizu Shigeyuki W. Yasunao Yamaguchi Y. Yasunao Yamaguchi: *FUEL ASSEMBLY FOR PWR NUCLEAR REACTOR*. 2009
- [IAE09] IAEA ; IAEA (Hrsg.): *Integrity of reactor pressure vessels in nuclear power plants : assessment of irradiation embrittlement effects in reactor pressure vessel steels*. STI/PUB/1382 ISBN 978-92-0-101709-3. Vienna : International Atomic Energy Agency, 2009
- [IAE16a] IAEA: *Livechart - Table of Nuclides basierend on JEFF 3.1.1 Data, zuletzt abgerufen am 28. Oktober 2016.* <https://www-nds.iaea.org/relnsd/vcharthtml/VChartHTML.html>. Version: 2016
- [IAE16b] IAEA, Power Reactor Information System P.: *PRIS database.* <https://www.iaea.org/PRIS/WorldStatistics/OperationalReactorsByType.aspx>, 2016. – Stand Datenbank 24. Oktober 2016, abgerufen am 25. Oktober 2016

- [IG06] I.C. GAULD, O.W. H. ; LABORATORY, Oak Ridge N. (Hrsg.): *SAS2: A coupled one-dimensional depletion and shielding analysis module*. Oak Ridge National Laboratory, 2006
- [Jen13] JENA, Zukunftswerkstatt: *Kernenergie - woher kommt sie? zuletzt abgerufen am 27. Oktober 2016*. www.zw-jena.de/energie/kernenergie.html. Version: 2013
- [JH97] J.E. HOOGENBOOM, J.L. K.: Generation and validation of ORIGEN-S libraries for depletion and transmutation calculations based on JEF2.2 and EAF3 basic data. In: *Nuclear Engineering and Design* 170 (1997), S. 107–118
- [JT95] J.C. TAINT, A.H. K. I. Gauld G. I. Gauld: Validation of the ORIGEN-S code for predicting radionuclide inventories in used CANDU fuel. In: *Journal of Nuclear Materials* 223 (1995), S. 109–121
- [Kir85] KIRCHNER, Gerald: *Ein neuer Toxizitätsindex zur Ermittlung des Gefährdungspotentials endgelagerter radioaktiver Abfälle*, Universität Bremen, Diss., 1985
- [MBK06] MARTIN B. KALINOWSKI, Christoph P.: Isotopic signature of atmospheric xenon released from light water reactors. In: *Journal of Environmental Radioactivity* 88 (2006), S. 215–235
- [MBK10] MARTIN B. KALINOWSKI, Marc Bean Xavier Blanchard Theodore W. Bowyer Guy Brachet Simon Hebel Justin I. McIntyre Jana Peters Christoph Pistner e. Anders Axelsson A. Anders Axelsson: Discrimination of Nuclear Explosions against Civilian Sources Based on Atmospheric Xenon Isotopic Activity Ratios. In: *Pure and Applied Geophysics* 167 (2010), S. 517–539
- [Np16] NUCLEAR-POWER.NET: *JANIS (Java-Based Nuclear Data Information Software), ENDF/B-VII.1, abgerufen am 28. Oktober 2016*. <http://www.nuclear-power.net/nuclear-power-plant/nuclear-fuel/>. Version: 2016
- [Old75] OLDEKOP, Werner ; HANLE, Pollermann M. W. (Hrsg.): *Einführung in die Kernreaktor- und Kernkraftwerkstechnik Teil I*. Verlag Karl Thiemig - München, 1975
- [SJ09] SAN JOSE, Niabot: *Kernkraftwerk mit Druckwasserreaktor CC BY 3.0 zuletzt abgerufen am 29. Oktober 2016*. <https://commons.wikimedia.org/>. Version: 2009
- [SM07] SPECIAL METALS, Corporation: *Inconel 718 datasheet, Publication Number SMC-045, zuletzt abgerufen am 21. Oktober 2016*. [www.specialmetals.com/documents/Inconel alloy 718.pdf](http://www.specialmetals.com/documents/Inconel%20alloy%20718.pdf). Version: 2007
- [UN00] UNITED NATIONS, Scientific Committee on the Effects of Atomic R.: *Sources and effects of ionizing radiation UNSCEAR 2000 Report to the General Assembly*. Bd. Volume I: Sources. 2000. – 233 S.

- [Wag03] WAGNER, John C.: Impact of Soluble Boron Modeling for PWR Burnup Credit Criticality Safety Analyses. In: *American Nuclear Society: International ANS/ENS (European Nuclear Society) 2003 Winter Meeting with cooperation with Nuclear Energy Institute on "Nuclear Technology: Achieving Global Economic Growth While Safeguarding the Environment," November 16–20, 2003, New Orleans, Louisiana, USA* Oak Ridge National Laboratory, 2003
- [Zie13] ZIEGLER, A. ; A. ZIEGLER, H.-J. A. (Hrsg.): *Reaktortechnik - Physikalisch-technische Grundlagen*. Springer Vieweg, Berlin, Heidelberg, 2013

Danksagung

Die vorliegende Arbeit wurde am Carl Friedrich von Weizsäcker-Zentrum für Naturwissenschaft und Friedensforschung erstellt, den Mitarbeitern des Instituts gilt daher mein besonderer Dank. Dessen Leiter Prof. Dr. G. Kirchner ist hier als erster zu nennen, der mir die Durchführung der Arbeit ermöglichte und sie mit großem persönlichen Interesse und unerschöpflicher Geduld fachlich betreut hat. Ebenfalls nennen möchte ich meine Büronachbarn Arne Schmäser und Anna Heise, die stets ein offenes Ohr für Fragen und Diskussionen hatten. Im freundlichen und kooperativen Klima innerhalb der Arbeitsgruppe konnten Motivation und inhaltlicher Austausch gedeihen, ohne die keine wissenschaftliche Arbeit denkbar wäre.

Danken möchte ich an dieser Stelle auch Prof. Dr. Martin B. Kalinowski, dessen Vorlesungen mich an die Thematik herangeführt und für die naturwissenschaftliche Bearbeitung friedenswissenschaftlicher Themen begeistert haben und dessen Arbeit mit Christoph Pistner eine der inhaltlichen Grundlagen dieser Diplomarbeit bildet.

Für die gerade in der Endphase der Arbeit unentbehrliche moralische Unterstützung schließlich möchte ich mich bei unserem Teamassistenten Robert Steinbeck, meinem Mitbewohner Klaas Bühring und meiner Familie sehr herzlich bedanken.