

**KERNFORSCHUNGSZENTRUM
KARLSRUHE**

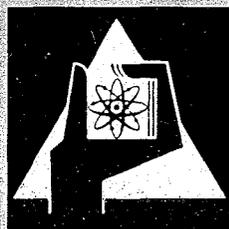
September 1968

KFK 846
EUR 4152 d

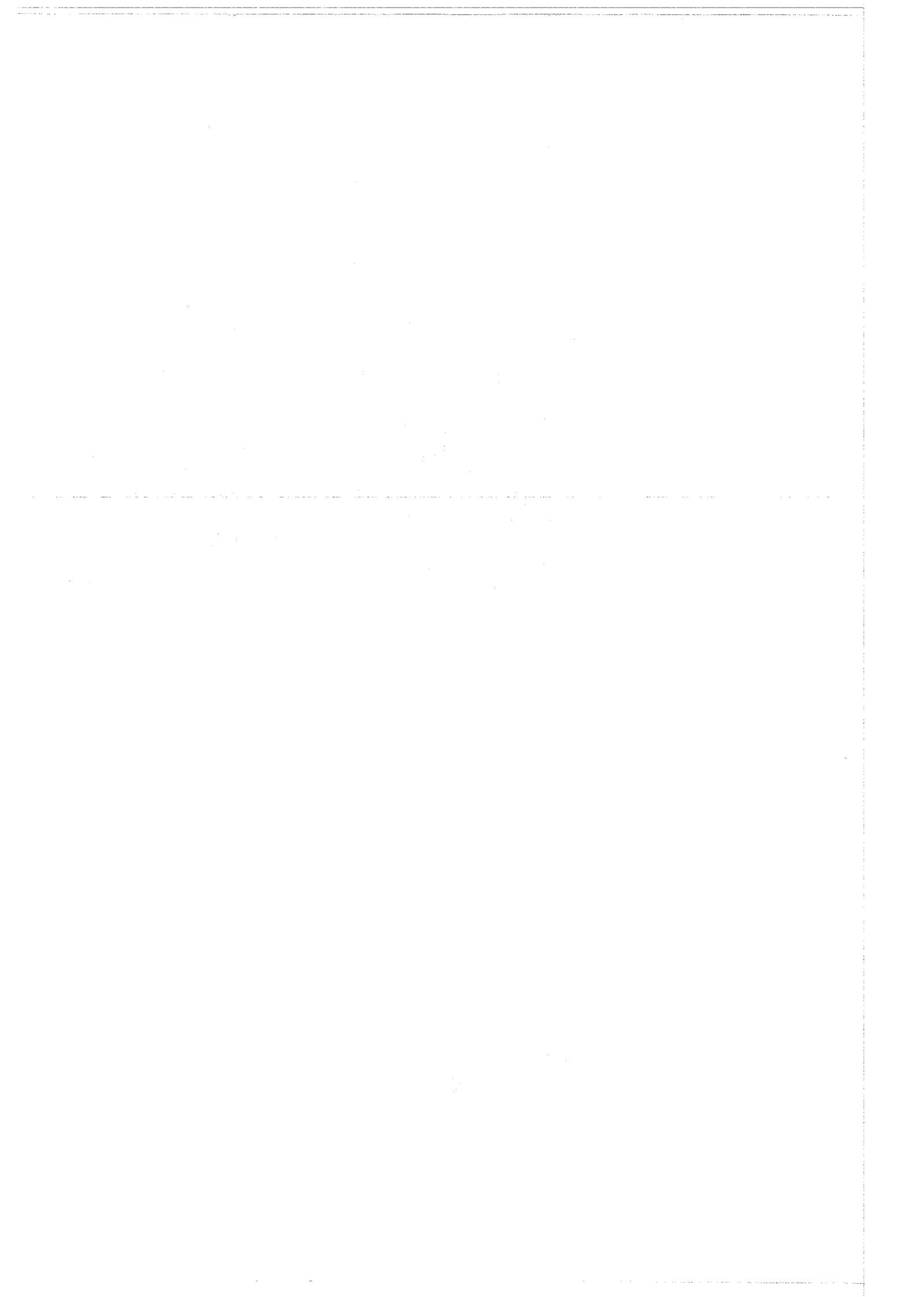
Institut für Neutronenphysik und Reaktortechnik

Konsistente Behandlung des Einflusses der neuen α -Werte von
Pu-239 auf nukleare Kenngrößen unter Berücksichtigung der
Plutonium-Gleichgewichtsisotopenzusammensetzung (Pu_{∞})

E. Kiefhaber



GESELLSCHAFT FÜR KERNFORSCHUNG M. B. H.
KARLSRUHE



KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE

September 1968

KFK- 846
EUR 4152 d

Institut für Neutronenphysik und Reaktortechnik

Konsistente Behandlung des Einflusses der neuen α -Werte von Pu239

auf nukleare Kenngrößen unter Berücksichtigung der
Plutonium-Gleichgewichtsisotopenzusammensetzung (Pu_{∞})^{*})

von

Edgar Kiefhaber

Gesellschaft für Kernforschung m.b.H. Karlsruhe

*) Diese Arbeit wurde im Rahmen der Assoziation zwischen der Europäischen Atomgemeinschaft und der Gesellschaft für Kernforschung mbH, Karlsruhe, auf dem Gebiet der schnellen Reaktoren durchgeführt.

Inhalt

- I. Einleitung
- II. Berechnung von P_{u0}
- III. Einfluß auf nukleare Kenngrößen
- IV. Schlußbemerkung

I. Einleitung

Der experimentell gefundene Hinweis auf eine Vergrößerung des α -Wertes von Pu239 im Energiegebiet zwischen 0,5 und 20 keV ($\alpha = \frac{\sigma_c}{\sigma_f}$), wurde in der letzten Zeit von vielen Experten diskutiert, z.B. auf den Konferenzen in Karlsruhe [1] und Washington [2]. Die Auswirkungen für die verschiedenen Arten von Reaktoren wurden in der ganzen Welt untersucht. Allgemein wurde eine Reduktion der Brutrate oder des Brutgewinns von etwa 0,05-0,1 festgestellt. Da die Diskrepanzen und Unsicherheiten der gemessenen α -Daten bekanntlich sehr beträchtlich sind, hängt die genaue Größe der Reduktion in erheblichem Maße von der persönlichen Entscheidung des Auswertenden (data-evaluator) ab. Außerdem spielt der betrachtete Reaktortyp, insbesondere das entsprechende Neutronenspektrum, das durch Wahl des Kühlmittels (Gas, Natrium, Dampf) und des Brennstoffs (Oxid in Edelhüllhülle, Karbid in coated particles) beeinflusst werden kann, eine wichtige Rolle. Die Herabsetzung des Brutvermögens der Schnellen Reaktoren ist naturgemäß am schwerwiegendsten für den Fall dampfgekühlter Reaktoren, da diese im allgemeinen den kleinsten Brutgewinn aufweisen.

Es scheint, daß ein Effekt, der als Folge der neuen α -Werte auftritt, bisher generell in allen Diskussionen unberücksichtigt geblieben ist, nämlich die Änderung in der Plutonium-Gleichgewichts-Isotopenzusammensetzung (Pu_{∞}). In der vorliegenden Arbeit wird der Einfluß dieses Effekts auf die nuklearen Kenngrößen für den Fall eines dampfgekühlten schnellen Reaktors getrennt behandelt.

II. Berechnung von Pu_{∞}

Für die Berechnung von Pu_{∞} , der Gleichgewichtsplutonium-Isotopenzusammensetzung, wurde das sogenannte nulldimensionale Modell von A. Jansen und K. Ott [3] benutzt, bei dem angenommen wird, daß zur Erhaltung der Kritikalität ein ständiger Brennstoffwechsel stattfindet. Falls die Konversionsrate des Cores kleiner als 1 ist, enthält der zugefügte Brennstoff außer U238 noch einen Teil des im Blanket erbrüteten Pu239. Dieses Modell ist sicherlich nur näherungsweise gültig, erscheint jedoch für unsere Zwecke ausreichend, um gewisse Tendenzen aufzuzeigen; die hier berechneten Pu_{∞} -Werte für eine gemeinsame Aufbereitung der Core- und Blanket-Brennelemente sind aus diesem Grunde nicht als exakte Angaben sondern nur als Richtwerte aufzufassen. Der untersuchte Reaktor ist dem Karlsruher Entwurf eines dampfgekühlten schnellen Brutreaktors (D1) [4] sehr ähnlich. Folgende Gruppensätze wurden benutzt: 1. der russische ABN-Satz von I.I. Bondarenko et al. [5],

2. eine modifizierte Version des in [6] beschriebenen KFK-SNEAK-Satzes, wobei die hier wesentliche Modifikation in einer Herabsetzung der U238-Einfangquerschnitte bestand (H20PMB), 3. dieser modifizierte KFK-SNEAK-Satz aber unter Benutzung höherer Einfangquerschnitte für Pu239 aufgrund der neuen α -Werte. Die alten und neuen α -Werte im interessierenden Energiegebiet sind in Tabelle 1 angegeben.

Tabelle 1: Alte und neue α -Werte

Energiebereich keV	0,215-0,465	0,465-1,0	1,0-2,15	2,15-4,65	4,65-10	10-21,5	21,5-46,5
alter α -Wert	0,691	0,640	0,592	0,538	0,488	0,421	0,321
neuer α -Wert	0,691	0,946	0,990	0,979	0,881	0,645	0,321

Mit diesen drei Gruppensätzen berechneten wir mit Hilfe einer nulldimensionalen Multigruppen-Rechnung die effektiven mikroskopischen Eingruppenquerschnitte, d.h. gemittelt über das zugehörige Neutronenspektrum, die kritische Anreicherung und die Konversionsrate sowie einige andere nukleare Kenngrößen des Cores. Dabei benutzten wir die bereits in der D1-Studie [4] verwendete Pu_∞-Zusammensetzung (siehe Tabelle 2). Aus diesen Eingruppenquerschnitten der Brennstoffisotope und einigen zusätzlichen Angaben über das Blanket berechneten wir in dem erwähnten nulldimensionalen Modell [3] die neuen Pu_∞-Zusammensetzungen. Dabei erhielten wir die in Tabelle 2 angegebenen Werte.

Tabelle 2: Plutonium-Gleichgewichtszusammensetzung

	Pu239	Pu240	Pu241	Pu242
Alte Zusammensetzung (D1)	0,74	0,227	0,023	0,01
Gruppensatz 1 (ABM)	0,7055	0,2339	0,0461	0,0145
Gruppensatz 2 (altes α)	0,7186	0,2236	0,043	0,0148
Gruppensatz 3 (neues α)	0,6451	0,2794	0,0547	0,0208

III. Einfluß auf nukleare Kenngrößen

Wir berechneten nun einige nukleare Kenngrößen des Cores erneut, wobei wir das dem betreffenden Gruppensatz entsprechende Pu_∞-Gemisch verwendeten. Dabei ergaben sich die in Tabelle 3 enthaltenen Ergebnisse.

Tabelle 3: Nukleare Kenngrößen eines dampfgekühlten schnellen Brutreaktors mit und ohne Berücksichtigung der Pu_∞-Zusammensetzung.

Gruppensatz	Pu _∞	Anrei- cherung	Pu-Einsatz Brennstoff- Einsatz	Konver- sionsrate d. Cores	$\frac{dk/k}{d\rho/\rho}$	-Tdk/dT bei 900°K	Δk_L	Δk_F
1 (ABN)	alt	0,10648	0,13955	0,97736	-0,01747	0,017132	+0,03674	-0,04296
2 (altes α)	alt	0,12011	0,15742	0,98410	-0,02520	0,017128	+0,04257	-0,07253
3 (neues α)	alt	0,12432	0,16294	0,89117	-0,02826	0,015367	+0,05174	-0,07122
1 (ABN)	neu 1	0,10408	0,13847	0,98900	-0,01516	0,017590	+0,03330	-0,03997
2 (altes α)	neu 2	0,11711	0,15375	0,98946	-0,02222	0,017702	+0,03863	-0,06498
3 (neues α)	neu 3	0,11809	0,16875	0,93322	-0,02532	0,016345	+0,04735	-0,08071

In Tabelle 3 bedeuten:

Anreicherung: das Teilchenzahlverhältnis von spaltbaren Isotopen (Pu239, Pu241) zu allen Brennstoffisotopen (Pu239, Pu240, Pu241, Pu242, U238);

Pu-Einsatz/Brennstoff-Einsatz: das Teilchenzahlverhältnis aller Pu-Isotope (chemisches Plutonium) zu allen Brennstoffisotopen;

Konversionsrate des Cores: Anzahl der neu entstehenden zu Anzahl der verbrauchten Spaltstoffisotope im Core;

$(dk/k)/(d\rho/\rho)$ = reduzierter Kühlmitteldichtekoeffizient der Kritikalität im Normalbetrieb;

-Tdk/dT = Doppler-Konstante bei 900°K

$\Delta k_L = k_{eff}(\rho=0) - k_{eff}(\rho_N)$ = Kühlmittelverlustreaktivität (ρ_N = Kühlmitteldichte im Normalbetrieb);

$\Delta k_F = k_{eff}(\rho=1g/cm^3) - k_{eff}(\rho_N)$ = Flutreaktivität.

Aus Tabelle 3 ist zu ersehen, daß bei Berücksichtigung der entsprechenden Pu_∞-Zusammensetzung, die neuen α-Werte auf die Anreicherung des spaltbaren Materials praktisch keinen Einfluß haben; gegenüber den Werten mit der alten Pu_∞-Zusammensetzung ist sogar eine geringfügige Verkleinerung der Anreicherung festzustellen. Das sogenannte Rating, die thermische Leistung pro kg Spaltstoff, wird daher auch kaum verändert. Dagegen wird wegen des höheren

Pu²⁴⁰-Anteils in Pu_∞ der Einsatz an chemischem Plutonium als Folge der neuen α -Werte etwas größer.

Die neuen, höheren α -Werte für Pu²³⁹ führen zu einer Erhöhung der Einfang- und Absorptionsrate in Pu²³⁹. Zur Erhaltung der Kritikalität muß die Anreicherung heraufgesetzt werden. Dies führt, zusammen mit der erhöhten Absorptionsrate in Pu²³⁹, zu einer starken Herabsetzung der Konversionsrate, wenn die Plutoniumzusammensetzung nicht verändert wird.

Tabelle 3 zeigt vor allem, daß die Reduktion der Konversionsrate des Cores durch den Einfluß der neuen α -Werte beträchtlich kleiner ist als in den bisher üblichen Rechnungen. Dies ist darauf zurückzuführen, daß bei einer konsistenten Behandlung des Problems als ein Begleiteffekt der neuen Pu²³⁹ α -Werte die entsprechenden Pu_∞-Zusammensetzungen geändert werden müssen.

Dasselbe gilt für den nach dem englischen Vorschlag berechneten Brutgewinn, nach dem den einzelnen Plutonium-Isotopen verschiedene Gewichte zugeteilt werden [7]; Pu²³⁹:1,0; Pu²⁴⁰:0,15; Pu²⁴¹:1,5; Pu²⁴²:0,15. Die durch die Berücksichtigung der zugehörigen Pu_∞-Zusammensetzung erzielte Verbesserung der Bruterate ist vergleichbar mit der in [8] beobachteten Erhöhung, die dadurch zustande kam, daß anstelle der Pu-Zusammensetzung, die sich bei einer gemeinsamen Aufbereitung der Core- und Blanket-Brennelemente ergibt, diejenige aus einer getrennten Aufbereitung verwendet wurde.

Die Erklärung der Plutoniumzusammensetzung auf die in Tabelle 3 aufgeführten Größen ist bereits in [8] skizziert. Die für das Verhalten der Anreicherung und der Konversionsrate maßgeblichen Gründe sind: a) reaktivitätsmäßig ist Pu²⁴⁰ wesentlich besser als U²³⁸ und Pu²⁴¹ besser als Pu²³⁹; daher kann beim Übergang zu Plutonium mit größerem Gehalt an höheren Isotopen die Anreicherung herabgesetzt werden; b) der effektive Einfangquerschnitt von Pu²⁴⁰ ist erheblich größer als derjenige von U²³⁸; dies trägt neben der reduzierten Anreicherung dazu bei, daß die Konversionsrate steigt, wenn man die zugehörige Pu_∞-Zusammensetzung berücksichtigt, deren Anteil an höheren Isotopen gegenüber der alten Zusammensetzung beträchtlich gewachsen ist.

Wie in [8] wurden auch hier einige weitere nukleare Kenngrößen untersucht, die für die Sicherheit und das Stabilitätsverhalten des Reaktors wichtig sind. Für den Betrag des reduzierten Kühlmitteldichtekoeffizienten der Kritikalität ergibt sich zwar bei Berücksichtigung der zugehörigen Pu_∞-Zusammensetzung ein etwas kleinerer, d.h. günstigerer Wert als mit der alten Pu_∞-Zusammensetzung (dies dürfte in erster Linie auf die relativ starke Zunahme

des Pu²⁴¹-Anteils in Pu_∞ zurückzuführen sein [9]); der Unterschied zwischen den Werten mit alten und neuen Pu²³⁹-α-Daten bleibt jedoch davon nahezu unbeeinflusst. Die Dopplerkonstante wird erwartungsgemäß etwas günstiger, wenn man die zugehörige Pu_∞-Zusammensetzung berücksichtigt; dabei wird auch der Unterschied zwischen den Werten mit alten und neuen Pu²³⁹-α-Daten etwas kleiner. Für die Kühlmittelverlustreaktivität A_{k_L} gilt das Analoge wie für den reduzierten Kühlmitteldichtekoeffizienten. Die Flutreaktivität zeigt kein einheitliches Verhalten bei Berücksichtigung der zugehörigen Pu_∞-Zusammensetzung, für die alten Pu²³⁹-α-Daten erhält man einen dem Betrag nach kleineren Wert (Pu²⁴¹-Einfluß), für die neuen Pu²³⁹-α-Daten dagegen einen dem Betrag nach größeren Wert, da der Pu²⁴⁰-Einfluß (1eV-Resonanz) den Pu²⁴¹-Einfluß überwiegt. Wie bereits in [8] ausgeführt, ist jedoch die Berechnung von A_{k_F} aus mehreren Gründen mit erheblichen Unsicherheiten behaftet.

IV. Schlußbemerkung

Bezüglich der Stabilitäts- und Sicherheitskenngrößen kann man generell feststellen, daß die neuen Pu²³⁹-α-Daten ungünstige Änderungen hervorrufen, daß diese Tendenz jedoch bei Berücksichtigung der zugehörigen Pu_∞-Zusammensetzungen meist nicht mehr ganz so ausgeprägt ist. Insbesondere ist der Unterschied zwischen den mit den alten α-Daten und der alten Pu_∞-Zusammensetzung berechneten Werten und den mit den neuen α-Daten und der zugehörigen neuen Pu_∞-Zusammensetzung berechneten Werten relativ gering.

Die vorliegende Arbeit zeigt vor allem, daß der durch die neuen Pu²³⁹-α-Daten verursachte Rückgang des Brutpotentials schneller Reaktoren in den bisherigen Diskussionen überschätzt wurde. Bei einer konsistenten Behandlung des Gesamtproblems, d.h. unter Berücksichtigung der zugehörigen Pu_∞-Zusammensetzung, beträgt der erwähnte Rückgang nur 60% seines ursprünglichen Wertes. Darüber hinaus herrscht allgemein der Eindruck [10], [11], [12], [13], daß die in Tabelle 1 angegebenen neuen α-Werte oberhalb 3 keV vermutlich zu groß sind. Aus diesem Grunde darf man erwarten, daß die Berücksichtigung neuer α-Daten für Pu²³⁹ im Energiebereich zwischen etwa 0,5-20 keV für die schnellen Reaktoren bei konsistenter Behandlung des Problems keinen so starken Rückgang des Brutpotentials mit sich bringen wird, wie bisher meist angenommen wurde. Der in der unteren Hälfte von Tabelle 3 angegebene Rückgang der Konversionsrate des Cores von etwa 0,06 kann daher für den untersuchten Reaktortyp als eine obere Grenze für die Verschlechterung dieser Größe durch die Berücksichtigung neuer α-Werte von Pu²³⁹ angesehen werden.

Die vorliegenden Untersuchungen betreffen nur das Langzeit-Brutpotential einer isolierten Generation Schneller Brutreaktoren mit Dampfkühlung. Bei Natrium- und Gaskühlung wurden etwa die gleichen Auswirkungen der Änderungen der α -Daten von Pu239 auf die Konversionsrate festgestellt, wie sie in der oberen Hälfte von Tabelle 3 (ohne Berücksichtigung der Veränderung von Pu_{∞}) für Dampfkühlung angegeben sind [14]. Daher ist zu erwarten, daß auch bei einer gemeinsamen Aufbereitung der Brennelemente aus diesen Schnellen Brutreaktoren der ermittelte Rückgang für die dampfgekühlte Version nahezu unverändert bleiben wird.

Untersucht man die Auswirkungen der geänderten α -Daten von Pu239 auf das Kurzzeit-Brutverhalten des Reaktors während der Anfahrphase des Reaktorbetriebs, so muß man von dem Einfluß der durch die geänderten α -Daten bedingten, langzeitigen Veränderung der Gleichgewichtsplutonium-Isotopenzusammensetzung (Pu_{∞}) absehen (dies entspricht der oberen Hälfte von Tabelle 3). Für das Anfahr- oder Kurzzeit-Brutverhalten hat demnach die Änderung der Pu239- α -Daten eine größere Bedeutung als für das Langzeit-Brutpotential.

Herrn D. Thiem und Herrn K. Wagner danke ich für ihre Unterstützung bei der numerischen Behandlung des Problems.

Literatur

- |1| Symposium on Fast Reactor Physics and Related Safety Problems, Karlsruhe, 30 October - 3 November 1967, z.B. M.G. Schomberg et al.: SM 101/41 und Panel Discussion.
- |2| Second Conference on Neutron Cross Sections and Technology, Washington, March 4-7, 1968.
- |3| A. Jansen, K. Ott: Long-Time Behaviour of Fast Breeders, Proceedings of the Seminar on the Physics of Fast and Intermediate Reactors, Vienna SM-18/2, 1962, pp. 213-228.
- |4| A. Müller et al.: Referenzstudie für den 1000 MWe dampfgekühlten schnellen Brutreaktor(D1), KFK-392.
- |5| I.I. Bondarenko et al.: Gruppenkonstanten schneller und intermediärer Neutronen für die Berechnung von Kernreaktoren, KFK-tr-144.
- |6| H. Küsters et al.: Group Cross-Section Set KFK-SNEAK. Preparation and Results, KFK 628, SM 101/12, EUR 3672e.
- |7| Definitions of Fast Reactor Breeding and Inventory. Sheet distributed by the British Nuclear Energy Society during the London Conference on Fast Breeder Reactors, May 17-19, 1966.
- |8| E. Kiefhaber: Reactivity Coefficients of Steam-Cooled Fast Breeders, KFK 629, SM 101/15, EUR 3673e.
- |9| K.E. Schroeter: Private Information.
- |10| J.J. Schmidt: Private Information.
- |11| C.G. Campbell: Private Information.
- |12| R. Gwin: Private Information.
- |13| Yu. V. Ryabov et al.: Measurements of U235 and Pu239 Neutron Capture-to-Fission Ratio for Resonance Incident Neutron Energies, Atomnaya Energiya 24, 351, 1968.
- |14| H. Küsters: Private Information.