

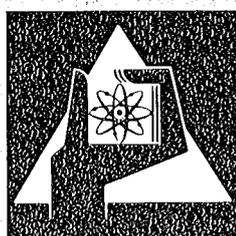
**KERNFORSCHUNGSZENTRUM  
KARLSRUHE**

April 1975

KFK 2200  
JÜL 1178

**Beiträge zur Kerntechnik**

Karl Wirtz gewidmet zum 65. Geburtstag



**GESELLSCHAFT  
FÜR  
KERNFORSCHUNG M.B.H.**

**KARLSRUHE**

Als Manuskript vervielfältigt

Für diesen Bericht behalten wir uns alle Rechte vor

GESELLSCHAFT FÜR KERNFORSCHUNG M. B. H.  
KARLSRUHE

KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE

JÜL-1178

KFK-2200

B e i t r ä g e z u r K e r n t e c h n i k

Karl Wirtz gewidmet zum 65. Geburtstag

---

Gesellschaft für Kernforschung mbH., Karlsruhe





Über die Wechselwirkung langsamer Neutronen mit gebundener Materie K.H. BECKURTS, W. GLÄSER	1
Zielfunktionen W. HÄFELE	25
Geschlossene Kreisläufe für die Energie- und Rohstofftechnik R. SCHULTEN	51
Die Verminderung des Restrisikos in Druckwasser-Kernkraftwerken D. SMIDT	63
Spektrometrie schneller Neutronen in der Reaktorphysik und Kerntechnik H. BLUHM, G. FIEG, F. KAPPLER, D. RUSCH, H. WERLE	97
Thermodiffusion in oxidischen Kernbrennstoffen M. BOBER, G. SCHUMACHER	149
The Development of the Gas Cooled Fast Breeder Reactor M. DALLE DONNE	193

Über die Wechselwirkung langsamer Neutronen mit  
gebundener Materie

K.H. Beckurts, Kernforschungsanlage Jülich GmbH  
und W. Gläser, Technische Universität München

1. Einleitung

Bereits kurz nach der Entdeckung des Neutrons durch CHADWICK und des Neutronenbremsungseffektes durch die Gruppe um FERMI wurde die Problematik der Wechselwirkung langsamer Neutronenfelder mit gebundener Materie erkannt: Einerseits mußte aufgrund der thermischen Eigenbewegungen der moderierenden Atome der Bremsprozeß sich bei Annäherung an die thermische Energie verlangsamen, wobei Effekte der chemischen Bindung der streuenden Atome sowie Interferenzphänomene ins Spiel kamen. Andererseits bedingten Absorptions- und Diffusionsprozesse nur eine endliche Lebensdauer der Neutronen im Streumedium und störten somit den Thermalisierungsprozeß. Während die wesentlichen quantenmechanischen Probleme bei der Wechselwirkung langsamer Neutronen mit chemisch gebundenen Streuzentren auch sehr bald in bahnbrechenden Arbeiten von FERMI (1936) und von LAMB (1939) formuliert worden waren, ließen die zunächst verfügbaren experimentellen Methoden keine genaueren Untersuchungen über die Energiespektren zu; auch für eine erschöpfende theoretische Behandlung fehlte das Rüstzeug. Erste, orientierende Versuche zur Ermittlung der Energieverteilung der aus einem Paraffinblock emittierten Neutronen mit Hilfe von Flugzeitmethoden zeigten jedoch, daß sich das Neutronenspektrum in grober Näherung als Maxwell-Verteilung mit einer Temperatur in der Nähe der Moderatortemperatur darstellen ließ.

Mit der Verfügbarkeit erheblich höherer Neutronenintensitäten, fortgeschrittener experimenteller Methoden und insbesondere auch mit den Möglichkeiten umfangreicher Computerrechnungen, waren etwa

ab Anfang der 50iger Jahre gute Voraussetzungen für eine intensivere Behandlung der Streu- und Thermalisierungsprobleme langsamer Neutronen geschaffen worden; dementsprechend wandten sich etwa ab 1950 viele Physiker diesem Problemkreis zu. Dabei spielte neben dem rein wissenschaftlichen Interesse die eminente Bedeutung eine Rolle, die eine genaue Kenntnis des thermischen Neutronenspektrums für die Berechnung nuklearer Parameter von Leistungsreaktoren - wie Temperaturkoeffizient, Kritikalität, Abbrandverhalten - haben. Außerdem wurde aber auch immer deutlicher, daß Untersuchungen der elementaren Streuprozesse langsamer Neutronen an Materie ein hervorragendes Hilfsmittel für die Erforschung der Struktur und der dynamischen Eigenschaften von Vielteilchensystemen darstellen können. Dementsprechend hat das gesamte Gebiet der Physik der langsamen Neutronen ab etwa 1950 einen sehr starken Aufschwung genommen, wobei sich heute feststellen läßt, daß das Thermalisierungsproblem sowohl von den Erfordernissen der reaktortechnischen Praxis, als auch des physikalischen Verständnisses her gesehen, nunmehr hinreichend gründlich und genau durchgearbeitet worden ist. Auch bei der Anwendung der Neutronenstreuung in der Festkörper- und Flüssigkeitsforschung ist - nach der Erstellung fortgeschrittener Neutronenquellen wie der Höchstflußreaktoren in Brookhaven und Grenoble und nach der Entwicklung vieler fortgeschrittener Meßverfahren - eine gewisse Konsolidierungsphase eingetreten, langsame Neutronen sind heute ein unersetzliches Hilfsmittel beim Studium der kondensierten Materie.

Der Beginn dieser weltweiten Entwicklung in der Neutronenphysik fiel in etwa zusammen mit dem Zeitpunkt, zu dem kerntechnische und neutronenphysikalische Arbeiten in der Nachkriegszeit in Deutschland wieder möglich wurden. So ist leicht zu verstehen, daß in der Gruppe von K. WIRTZ ein besonderes Interesse an diesen Fragen bestand; erste Arbeiten über Neutronenthalisierung wurden bereits in Göttingen in Angriff genommen und ab 1958 in Karlsruhe am Institut für Neutronenphysik und Reaktortechnik verstärkt fortgeführt; ab 1963 wurden die Arbeiten zur Streuung langsamer Neutronen vom neuen Institut für Angewandte Kernphysik über-

nommen und im Laufe der Zeit immer stärker auf festkörperphysikalische Fragestellungen ausgerichtet. Im folgenden soll rückblickend über einige wichtige Ergebnisse dieser Arbeiten berichtet werden.

## 2. Neutronentemperatur und Neutronenspektrum in Graphit

Wegen der großen Bedeutung des Graphits als Moderator- und Strukturmaterial einerseits und seiner komplexen Bindungsstruktur andererseits war die Neutronenthalisierung in Graphit Gegenstand zahlreicher Untersuchungen. Eine erste systematische Studie wurde von KÜCHLE (1957) durchgeführt, der unter Verwendung von Sandwich-Detektoren die Transmission der thermischen Neutronen durch eine die Indium-Sonde umhüllende Goldfolie ermittelt hat, wobei dieser Sandwich-Detektor innerhalb eines Graphitblocks in verschiedenen Abständen von einer (Ra + Be)-Neutronenquelle angeordnet wurde. Unter Zugrundelegung einer Maxwell-Verteilung konnte so eine effektive Neutronentemperatur bestimmt werden; KÜCHLE konnte zeigen, daß diese Neutronentemperatur stets über der Moderatortemperatur liegt und die Temperaturdifferenz direkt der effektiven lokalen Neutronenverlustrate proportional ist. Ein solches Ergebnis ist aus elementaren "thermodynamischen" Überlegungen auch zu erwarten, wenn man die örtliche Energiebilanz im "Neutronengas" bildet; eine einfache Rechnung, bei der unter Vernachlässigung der chemischen Bindungen die Thermalisierung in einem Gas aus Teilchen der Masse 12 betrachtet wird, liefert aber eine um etwa den Faktor vier kleinere Proportionalitätskonstante als die Messungen von KÜCHLE; hierin liegt ein quantitativer Hinweis auf den Einfluß der chemischen Bindung. Untersuchungen des sogenannten Diffusionskühlungseffektes in gepulsten Neutronenfeldern führten auf ähnliche Ergebnisse hinsichtlich des Einflusses der chemischen Bindung: Hier wurde das exponentielle zeitliche Abklingen eines thermischen Neutronenfeldes nach Injektion von kurzen Pulsen von 14 MeV-Neutronen in Graphitblöcken verschiedener Größe beobachtet. Es zeigte sich, daß die Abklingkonstante nicht nur dem elementaren Absorptions- und Ausflußterm der Diffusions-

theorie entsprach, sondern eine von der Geometrie abhängige "Unter-  
kühlung" des Neutronengases - im Wechselspiel von Diffusion und  
Thermalisierung - einen Zusatzterm verursachte. Untersuchungen,  
die u.a. von BECKURTS (1957) durchgeführt wurden, ergaben auch  
hier einen gegenüber dem freien Gas der Masse 12 etwa viermal  
größeren Effekt.

Genauere Untersuchungen über die Neutronenthalisierung in Graphit  
erforderten einen erheblich größeren Aufwand. So mußten auf der  
einen Seite differentielle Messungen des Neutronenspektrums mit  
Hilfe von Flugzeitmethoden angestellt werden; andererseits waren  
eingehende Untersuchungen über den elementaren Streuvorgang er-  
forderlich. Im INR wurde zwar 1961 eine Flugzeiteinrichtung zur  
Bestimmung von Neutronenspektren aus Moderatoren errichtet, sie  
war jedoch in erster Linie für Untersuchungen an wasserstoff-  
haltigen Moderatoren geeignet, vgl. BURKART und REICHARDT (1962).  
Sehr umfangreiche Messungen des Neutronenspektrums aus Graphit-  
anordnungen wurden von PARKS, BEYSTER und WIKNER (1962) angestellt;  
einige der Ergebnisse sind in den Abbildungen 1a) und 1b) darge-  
stellt im Vergleich zu Rechnungen für ein Gas der Masse 12 und für  
einen "synthetischen Streukern" (s.u.). In Karlsruhe wurden je-  
doch sehr eingehende Untersuchungen über den elementaren Streu-  
prozeß an Graphit durch CARVALHO (1967) angestellt. Unter Verwen-  
dung eines Neutronenstrahls aus dem Reaktor FR2 und mit Hilfe  
eines Doppelspektrometers mit rotierendem Einkristall (vgl.  
nächster Abschnitt) wurde für einen weiten Bereich von Einfallss-  
energie  $E$ , Ausfallsenergie  $E'$  und Streuwinkel  $\theta$  der doppelt-  
differentielle Streuquerschnitt bei verschiedenen Temperaturen  
des Graphits bestimmt. Einige Ergebnisse sind in der Abb. 2  
wiedergegeben; aufgetragen ist das aus dem differentiellen  
Wirkungsquerschnitt abgeleitete Streugesetz

$$S(\alpha, \beta) = \frac{2 k_B T}{\sigma_b} \sqrt{\frac{E}{E'}} \exp\left(\frac{\beta}{2}\right) \sigma(E \rightarrow E', \cos \theta)$$

als Funktion des dimensionslosen Energieübertrags  $\beta = \frac{E' - E}{k_B T}$

und des dimensionslosen Impulsübertrags  $\alpha = \frac{E' + E - 2 \sqrt{EE'} \cos \theta}{A k_B T}$

[ A = Massenzahl der Streuatome,  $k_B T$  = therm. Energie des Streuers ] .

Die insbesondere bei kleineren Energieüberträgen verhältnismäßig ausgeprägte Feinstruktur der  $S(\alpha, \beta)$ -Kurven rührt von Interferenzeffekten her, die durch die überwiegend kohärente Streuung des Kohlenstoffs bedingt sind. Da jedoch für die überwiegende Mehrzahl der Thermalisierungsprobleme diese Feinstruktur ohne Bedeutung ist, kann eine wichtige Vereinfachung durchgeführt werden: Es wird ein synthetisches Streugesetz für einen rein inkohärent streuenden Festkörper aufgestellt, dessen Gittereigenschaften durch eine generalisierte Frequenzverteilungsfunktion (Phononenspektrum)  $\rho(\beta)$  beschrieben werden.  $\rho(\beta)$  wird durch ein Extrapolationsverfahren so bestimmt, daß es die Meßergebnisse im Mittel gut wiedergibt. Abb. 3 zeigt  $\rho(\beta)$  nach CARVALHO im Vergleich zu gittertheoretischen Berechnungen. Die so gerechnete Frequenzverteilungsfunktion gibt, wie in Abb. 2 zu sehen ist, die Meßwerte für  $S(\alpha, \beta)$  im Mittel gut wieder; der auf diese Weise gefundene synthetische Streukern liefert sehr gute Ergebnisse beim Vergleich berechneter und gemessener Neutronenspektren und ermöglicht auch eine genaue Berechnung experimenteller Diffusionskühlungskoeffizienten. Aus  $\rho(\beta)$  kann auch die Temperaturabhängigkeit des Gitteranteils der spezifischen Wärme des Graphits berechnet werden; die gemessenen Werte werden sehr genau reproduziert.

Für die Berechnung graphitmoderierter Reaktoren werden heute Multi-gruppenmethoden unter Verwendung von synthetischen Streukernen verwendet, die auf die Frequenzverteilung von CARVALHO (oder auf eine etwas einfachere Modellverteilung) aufbauen. Die damit erreichte Genauigkeit ist voll ausreichend; sie beträgt z.B. in der Voraussage der kalten Kritikalität eines Kugelhaufen-Hochtemperaturreaktors  $\pm 1/2 \%$ ; in der Ermittlung des Abbrandes  $\pm 5 \%$ .

Neben Graphit waren auch andere Moderatoren Gegenstand intensiver Untersuchungen der Karlsruher Gruppe. So bestand Ende der 50iger

Jahre erhebliches Interesse an den Eigenschaften von organischen Flüssigkeiten wie Diphyl (KÜCHLE (1960), GLÄSER (1965)) im Zusammenhang mit dem damaligen ORGEL-Projekt von Euratom. EHRET (1968) hat eine sehr eingehende Studie über die Streueigenschaften von Zirkonhydrid gemacht, die auch für die Auslegung des KNK-Reaktors von Interesse war. Nicht zuletzt wegen der vielfältigen Karlsruher Beiträge zum Themenkreis der Neutronenthalisierung wurde die "International Conference on Pulsed Neutron Research" von der Internationalen Atomenergieorganisation 1965 (IAEA 1965) in Karlsruhe abgehalten.

### 3. Weiterentwicklung der Flugzeitmethode

#### a) Drehkristallflugzeitspektrometer

Zur Messung des in Abschnitt 2 am Beispiel des Graphits diskutierten doppeltdifferentiellen Streuquerschnitts, bzw. des Streugesetzes  $S(\alpha, \beta)$ , wird ein Doppelspektrometer benötigt. Ein solches Spektrometer besteht aus einem Monochromator, der aus einem Reaktorneutronenstrahl ein schmales Energieband selektiert und aus einem zweiten Spektrometer, das zur Analyse der Energie und des Impulses der gestreuten Neutronen dient. Zur gleichzeitigen Bestimmung von  $S(\alpha, \beta)$  für einen großen Bereich von Energie- und Impulsüberträgen bietet sich die Flugzeitmethode an, bei der ein gepulster monochromatischer Neutronenstrahl auf die Streuprobe geschossen und die Energie der Neutronen nach der Streuung aus ihrer Flugzeit bestimmt wird. Der gepulste monochromatische Strahl kann ähnlich wie bei den Atomstrahlmethoden mit in Phase laufenden mechanischen Zerhackern (Doppelchopper) hergestellt werden.

In Chalk River wurde von BROCKHOUSE (1961) und in Karlsruhe von GLÄSER (1961) mit dem Drehkristallspektrometer ein einfacheres und in vieler Hinsicht überlegenes System entwickelt (Abb. 4). In dieser Anordnung wird ein sich schnell drehender Einkristall zur Herstellung der monochromatischen Neutronenpulse benutzt. Jedesmal, wenn die parallel zur Drehachse liegenden Netzebenen

des Kristalls zusammen mit den Richtungen von Eingangs- und Ausgangskollimator für eine bestimmte Neutronenenergie die Bragg-Bedingung erfüllen, wird ein zeitlich kurzer ( $\mu\text{sec}$ -Bereich) Neutronenpuls dieser Energie reflektiert. Vorteile ergeben sich neben der Einfachheit vor allem daraus, daß in einem schnell rotierenden Monochromatorkristall Extinktionsverluste reduziert werden und die auftretenden Fokussierungseffekte zur Optimierung der Meßbedingungen ausgenutzt werden können. Die Verwendung einer Multidetektoranordnung und die Entwicklung eines "on-line"-Computersystems zur Datenerfassung (KRÜGER u.a. 1964) hat zu einer großen Effektivität dieser Untersuchungsmethode geführt. Ein in jüngerer Zeit in Karlsruhe entwickeltes spezielles Drehkristallflugzeitspektrometer (GOMPF u.a. 1972), mit dem die in Abschnitt 2 erwähnte generalisierte Frequenzverteilungsfunktion  $\rho(\beta)$  eines polykristallinen kohärenten Streuers direkt gemessen werden kann, ist in Abb. 5a skizziert. In dieser Anordnung fällt ein mit einem Doppelmonochromator erzeugter gepulster monochromatischer Strahl auf die polykristalline Streuprobe. Mit einer geeigneten Abschirmung der Probe (Abb. 5b) wird erreicht, daß nur Neutronen, die an der Probe zweimal gestreut werden, vom Detektor registriert werden. Durch die auf diese Weise erzwungene doppelte Mittelung über die Brillouin-Zone im reziproken Gitter des Streuers werden Kohärenzeffekte ausgemittelt und die direkte Ableitung der Frequenzverteilung aus dem Detektorspektrum ermöglicht.

#### b) Der pseudostatistische Chopper

Der Vorteil der Flugzeitmethode, daß im Prinzip alle Streuwinkel und Energieänderungen gleichzeitig erfaßt werden können, muß mit einer schlechten Zeitausnutzung des primären Reaktorstrahls, die wegen des erforderlichen großen zeitlichen Abstands der Pulse z.T. weniger als 1 % beträgt, erkauft werden. Für viele Meßprobleme, insbesondere, wenn das zu bestimmende Spektrum aus wenigen Linien besteht oder wenn der Streuer einen im Vergleich zum Streuquerschnitt sehr hohen Absorptionsquerschnitt besitzt, kann die Flugzeitmethode durch Verwendung sogenannter pseudostatistischer

Pulsfolgen - mit einer Zeitausnutzung bis zu 50 % - verbessert werden. Solche Folgen können aus informationstheoretischen Überlegungen abgeleitet werden, bei denen angestrebt wird, den statistischen Fehler des Meßergebnisses zu minimalisieren. Allerdings wird das gesuchte Spektrum, die Responsefunktion des Streuers, erst durch eine Kreuzkorrelation der Meßfunktion mit der auf die Probe fallenden pseudostatistischen Pulsfolge erhalten. Es ist klar, daß die experimentelle Anwendung dieses Verfahrens erst mit der Verfügbarkeit effektiver "on-line"-Rechner möglich wurde. In Karlsruhe wurde ein Spektrometer mit pseudostatistischem Chopper aufgebaut (GOMPF u.a. 1968). Dabei wurde eine mechanische Chopperscheibe mit einer pseudostatistischen Transmissionsfunktion entwickelt, wie sie in Abb. 6 schematisch dargestellt ist. Diese Anordnung wurde erfolgreich zur Bestimmung der Phononendispersionskurven einer Reihe von Festkörpern eingesetzt (DREXEL (1969), RENKER (1971)). Die mit der pseudostatistischen Methode praktisch realisierbaren Gewinne waren bisher aufgrund der Strahlquerschnittsbegrenzungen mechanischer Chopper kleiner als theoretisch möglich. Die Methode besitzt aber noch ein gewisses Entwicklungspotential, das z.B. mit der Weiterentwicklung elektronischer Chopper ausnutzbar sein dürfte.

#### 4. Anwendung der Neutronenflugzeitmethode zum Studium von Festkörpereigenschaften

Die zum Studium der im Abschnitt 2 beschriebenen Thermalisierungsprobleme entwickelten Meßmethoden haben weit über diesen Problembereich hinaus Bedeutung erlangt. Aus der Streuung langsamer Neutronen kann sehr direkt Information über die Struktur und die dynamischen Eigenschaften und damit die chemische Bindung atomarer Vielteilchensysteme erhalten werden. Neutronen sind in vieler Hinsicht anderen Sonden, wie elektromagnetischer Strahlung oder geladenen Teilchen überlegen. Die Anwendung der Neutronenstreuung in der Festkörperforschung hat sich deshalb zu einem umfangreichen Gebiet entwickelt. Wir wollen hier nur einige Arbeiten erwähnen,

die in den letzten Jahren im Institut für Angewandte Kernphysik mit Hilfe der Neutronenflugzeitmethode durchgeführt wurden.

a) Gitterdynamik von Supraleitern

In der Theorie von BARDEEN, COOPER und SCHRIEFER wurde mit der Annahme einer attraktiven Wechselwirkung zwischen den Elektronen über die Phononen ein wesentlicher Schritt zu einem mikroskopischen Verständnis der Eigenschaften von Supraleitern geleistet. Durch eine Erhöhung der Elektron-Phonon-Wechselwirkung sollten bessere Supraleiter, das heißt Supraleiter mit höherer Sprungtemperatur  $T_c$ , höherem kritischen Feld usw., verwirklicht werden können. Ein Weg, das zu erreichen, könnte in einer Reduktion der mittleren Phononenenergie bestehen. Auf der anderen Seite kann eine zu starke Elektron-Phonon-Wechselwirkung zu einer Instabilität des Kristallgitters, d.h. zu einer Phasenumwandlung und damit unter Umständen zu einem Verlust der supraleitenden Eigenschaften führen.

Um den Einfluß der Phononenfrequenzen auf die Sprungtemperatur zu verstehen, hat MC MILLAN die BCS-Theorie für den Fall starker Elektron-Phonon-Kopplung weiterentwickelt. Für  $T_c$  ergibt sich angenähert der Ausdruck

$$T_c \approx \theta_D \exp\left(-\frac{1+\lambda}{\lambda}\right)$$

Hier ist  $\theta_D$  die Debye-Temperatur und  $\lambda$  die Elektron-Phonon-Kopplungskonstante, die explizit folgendermaßen geschrieben werden kann

$$\lambda = 2 \int \frac{\alpha^2(\omega)\rho(\omega)}{\omega} d\omega \quad \left(\omega = \frac{\beta k_B T}{\hbar}\right)$$

wobei  $\alpha^2(\omega)$  die Kopplung zwischen einem Elektron und einem einzelnen Phonon der Frequenz  $\omega$  angibt.  $\rho(\omega)$  ist die Phononenfrequenzverteilung, die wie oben ausgeführt mit Neutronen direkt gemessen werden kann.

Für eine Reihe von Supraleitern wurden die Frequenzverteilungen genauer untersucht. Es handelt sich einmal um die Verbindungen  $V_3Si$ ,  $V_3Ga$ ,  $V_3Ge$  (SCHWEISS 1974) und  $Nb_3Sn$  (SCHNEIDER u.a. 1974) aus der Familie der A15-Verbindungen, unter denen die Supraleiter mit den bisher höchsten  $T_c$  gefunden wurden und zum anderen um die Verbindungen  $TiN$ ,  $ZrN$ ,  $NbC$  und  $NbN$  (GOMPF u.a. 1974) aus der Serie der Hartstoffe mit NaCl-Struktur.

Abb. 7 zeigt als Beispiel die bei verschiedenen Temperaturen gemessene Frequenzverteilung von  $V_3Si$ . Es liegt nahe, die breite Verteilung mit dem Maximum bei 25 meV den Vanadiumschwingungen und den hochfrequenten peak den leichteren Siliziumatomen zuzuordnen. Zur Erklärung der anomalen Temperaturabhängigkeit von  $\rho(\omega)$  muß neben einem Weichwerden spezieller akustischer Phononen (soft modes) mit abnehmendem T auch eine Frequenzerniedrigung optischer Moden angenommen werden. Dieses Weichwerden ist für den martensitischen Phasenübergang in  $V_3Si$  bei ca. 20 K verantwortlich. Die Verschiebung von  $\rho(\omega)$  nach kleineren Frequenzen erhöht die Elektron-Phonon-Kopplungskonstante um ca. 15 %, wenn angenommen wird, daß  $\alpha^2(\omega)$  frequenzunabhängig ist.

Abb. 8 zeigt für  $NbC$ , ein Beispiel aus der Serie der Hartstoffe, die gemessene Frequenzverteilung im Vergleich zu den ebenfalls gemessenen Dispersionskurven. Man erkennt deutlich die Anomalien in den Dispersionskurven, z.B. in den akustischen Zweigen an der Zonengrenze in  $[111]$ -Richtung, und eine entsprechend hohe Zustandsdichte in der Frequenzverteilung. Solche Phononanomalien wurden auch in anderen supraleitenden Hartstoffen gefunden, während sie in den nichtsupraleitenden nicht auftreten. Es liegt nahe, anzunehmen, daß die hohen  $T_c$  mit diesen Anomalien gekoppelt sind. Eine weitere Absenkung der Phononenfrequenzen sollte  $T_c$  weiter erhöhen. Die Anomalie ist aber gleichzeitig eine Vorankündigung einer Gitterinstabilität. Wenn die weichste Phononenfrequenz den Wert null erreicht, muß die Kristallstruktur sich umwandeln. Die bisherigen Ergebnisse der Neutronenstreuexperimente an Supraleitern bestätigen die Vermutung, daß Kristallstrukturen mit hohen Sprungtemperaturen eine Neigung zur Instabilität besitzen.

## b) Dynamik von Molekülkristallen

Verglichen mit den Fortschritten, die im Verständnis der Art, Größe und Reichweite der Kräfte zwischen den Gitterbausteinen in Metallen und Ionenkristallen erzielt wurden, ist noch recht wenig über die Bewegungen und damit auch die Kräfte in aus Molekülen aufgebauten Kristallen bekannt. Die Moleküle können neben Gitterschwingungen auch behinderte oder sogar fast freie Rotationsbewegungen um bestimmte Molekülachsen ausführen. Zahlreiche Eigenschaften der Kristalle hängen von diesen zusätzlichen Freiheitsgraden ab. So findet in vielen Molekülkristallen mit wachsendem  $T$  ein Phasenübergang aus der kristallinen in die plastische Phase statt. In dieser Phase gibt es keinen Widerstand gegen Reorientierungen der Moleküle, die wahrscheinlich nahezu unbehindert rotieren können.

Am FR2 wurden einige einfache Molekülkristalle, nämlich festes  $H_2$  (SCHOTT u.a. 1968),  $CH_4$  (KAPULLA u.a. 1972) und  $D_2O$  (RENKER 1971) untersucht. Wir wollen kurz die Ergebnisse an Methan skizzieren.

Methan wird unterhalb 90 K fest, die tetraederförmigen  $CH_4$ -Moleküle ordnen sich in einem kubisch flächenzentrierten Kristallgitter an. Bei 20 K findet ein Phasenübergang im festen Zustand statt. In der oberen Phase können die  $CH_4$ -Moleküle sich leicht reorientieren und um alle möglichen Molekülachsen rotieren. Diese Bewegungsmöglichkeiten führen zu einem unelastischen Streuspektrum ohne Struktur; jedoch treten neben den elastisch gestreuten Neutronen auch solche mit sehr kleinen Energieänderungen auf. Diese Energieänderungen können auf sprungartige Änderungen der Rotationsachsen (Rotationsdiffusion) zurückgeführt werden. Unterhalb von 20 K wurden dagegen wenige definierte Energieänderungen im meV-Bereich gefunden.

Abb. 9 zeigt das Spektrum der an  $CH_4$  von 4 K inkohärent gestreuten Neutronen. Neben der elastischen Linie sind vier weitere unelastische Linien zu erkennen. Diese Energieänderungen unterscheiden sich nur wenig von den Energiequanten eines frei rotierenden  $CH_4$ -Moleküls. Die quantitative Auswertung der Streuintensität

führt zu dem Schluß, daß in der Tieftemperaturphase nur eins von vier  $\text{CH}_4$ -Molekülen frei rotieren kann.

Mehr Einzelheiten über die Dynamik der Moleküle im Kristallgitter ergeben sich aus der kohärent unelastischen Neutronenstreuung. Ein Beispiel hierfür ist die am FR2 mit der pseudostatistischen Flugzeitmethode durchgeführte Untersuchung der Phononendispersion von  $\text{D}_2\text{O}$ -Eis (RENKER 1971), die wesentlich zur Vervollständigung des Bildes über die Kräfte zwischen den Wassermolekülen im Kristall beigetragen hat. Die Untersuchung der großen Mannigfaltigkeit der Molekülkristalle mit den Methoden der Neutronenstreuung wird in Zukunft sicher noch an Bedeutung gewinnen. Der Anwendungsbereich reicht bis zur Dynamik der langen Molekülketten, wie sie in Polymeren auftreten.

In diesem Rückblick haben wir versucht, zu zeigen, daß neutronenphysikalische Methoden, die ursprünglich dazu entwickelt wurden, das Verhalten von Neutronenfeldern in thermischen Reaktoren zu verstehen, weit über diesen Problemkreis hinaus Bedeutung gewonnen haben. Die Anwendung dieser Methoden in der Festkörperforschung hat zunächst bei relativ einfachen Materialien zu quantitativen Aussagen über die Kräfte zwischen den Gitterbausteinen und den daraus resultierenden Eigenschaften geführt. In Zukunft sind weitere wichtige Beiträge im anwendungsnahen Gebiet insbesondere der allgemeinen Materialforschung, aber auch in Nachbargebieten wie z.B. der Chemie und Biologie zu erwarten.

Literaturverzeichnis

1. BECKURTS, K.H.: Nucl. Sci. Eng. 2 (1957) 516.
2. BROCKHOUSE, B.N.: "Inelastic Scattering of Neutrons" IAEA Wien (1961) 113.
3. BURKART, K., REICHARDT, W.: BNL-719 (1962) 318.
4. CARVALHO, F.: Dissertation, Universität Karlsruhe (1967).
5. DREXEL, W., GLÄSER, W., GOMPF, F.: Phys. Letters 28A (1969) 531.
6. EHRET, G.: Dissertation, Universität Karlsruhe (1968).
7. FERMI, E.: Ricerca Sci. 1 (1936) 13.
8. GLÄSER, W.: "Neutron time-of-flight Methods", EANDC Brüssel (1961) 301.
9. GLÄSER, W.: Nukleonik 7 (1965) 64.
10. GOMPF, F., REICHARDT, W., GLÄSER, W., BECKURTS, K.H.: "Neutron Inelastic Scattering", IAEA Wien (1968) 417.
11. GOMPF, F., LAU, H., REICHARDT, W., SALGADO, J.: "Neutron Inelastic Scattering", IAEA Wien (1972) 137.
12. GOMPF, F., REICHARDT, W., SALGADO, J.: in KFK-Bericht Nr. 2054 (1974) 21.
13. IAEA: "Pulsed Neutron Research", Vol.I und II, IAEA Wien (1965).
14. KAPULLA, H., GLÄSER, W.: "Neutron Inelastic Scattering", IAEA Wien (1972) 846.

15. KÜCHLE, M.: Nucl. Sci. Eng. 2 (1957) 87.
16. KÜCHLE, M.: Nukleonik 2 (1960) 131.
17. KRÜGER, G., DIMMLER, G.: Proc. EANDC Conf. on Automatic Acquisition and Reduction of Nuclear Data, Karlsruhe (1964) 149.
18. LAMB, W.E.: Phys. Rev. 55 (1939) 190.
19. PARKS, D.E., BEYSTER, J.R., WIKNER, N.F.: Nucl. Sci. Eng. 13 (1962) 306.
20. RENKER, B.: in "Phonons", Proc. Internat. Conf., Flammarion Paris (1971) 167.
21. SCHNEIDER, E., TRIPADUS, V., REICHARDT, W.: in KFK-Bericht Nr. 2054 (1974) 21.
22. SCHOTT, W., RIETSCHEL, H., GLÄSER, W.: Phys. Letters 27A, (1968) 566.
23. SCHWEISS, P.: in KFK-Bericht Nr. 2054 (1974) 12.

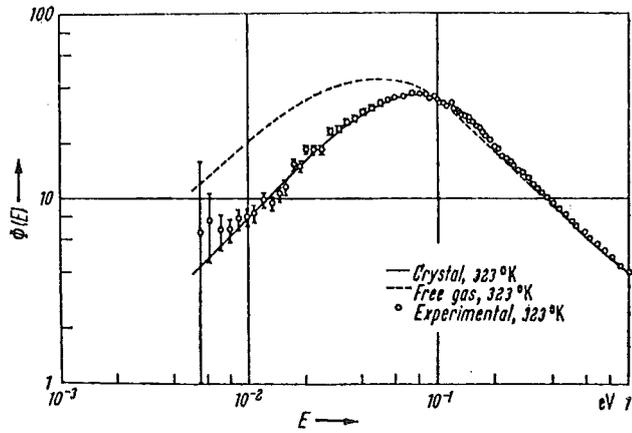


Abb. 1a: Neutronenspektren in vergiftetem Graphit nach PARKS u.a.(1962); Graphittemperatur  $T=323$  K.

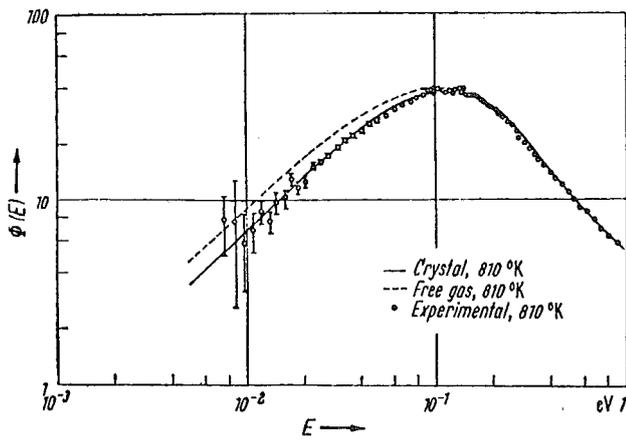


Abb. 1b: Neutronenspektren in vergiftetem Graphit nach PARKS u.a.(1962); Graphittemperatur  $T=810$  K.

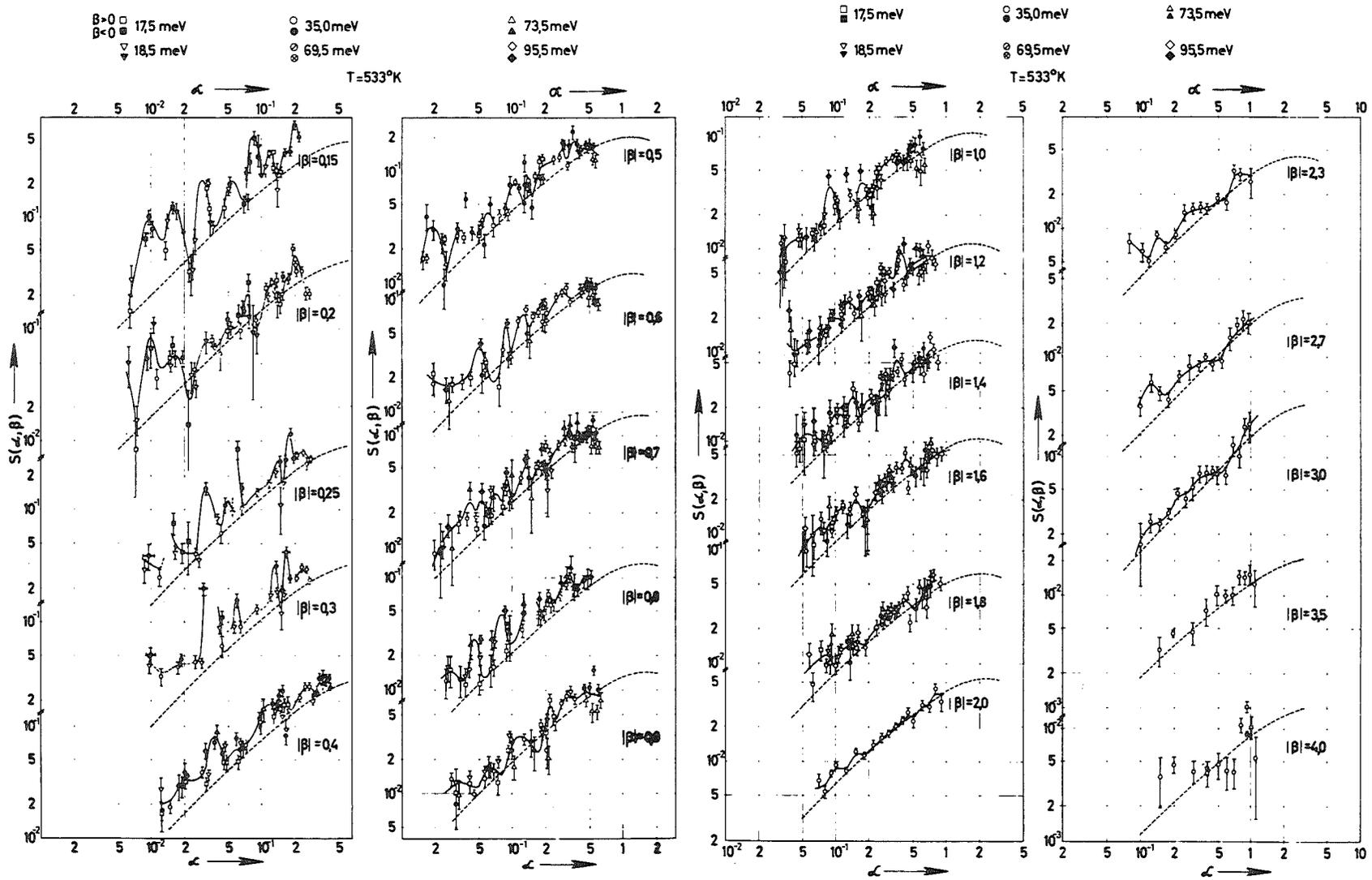


Abb.2: Streugesetz  $S(\alpha, \beta)$  von Graphit bei  $T=533$  K; ----- Phononenentwicklung in inkohärenter Näherung mit  $\rho(\beta)$  nach Abb.3

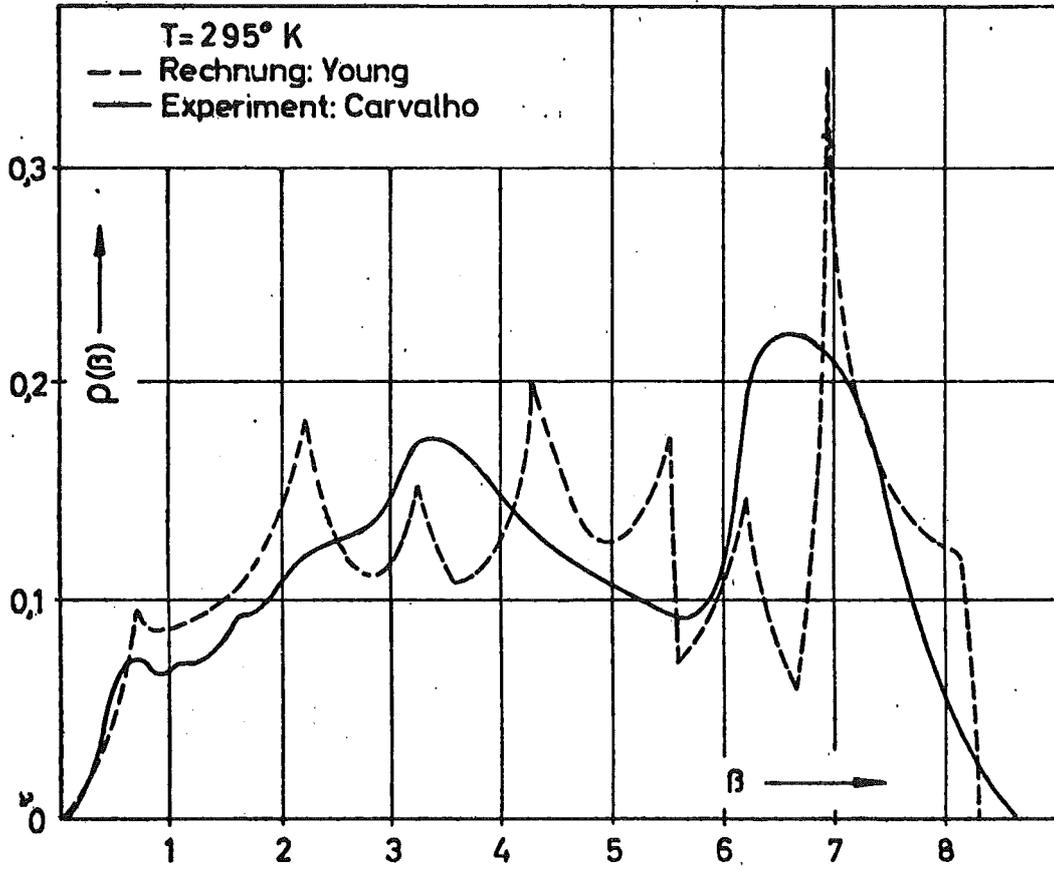


Abb.3: Phononenfrequenzverteilung  $\rho(\beta)$  von Graphit

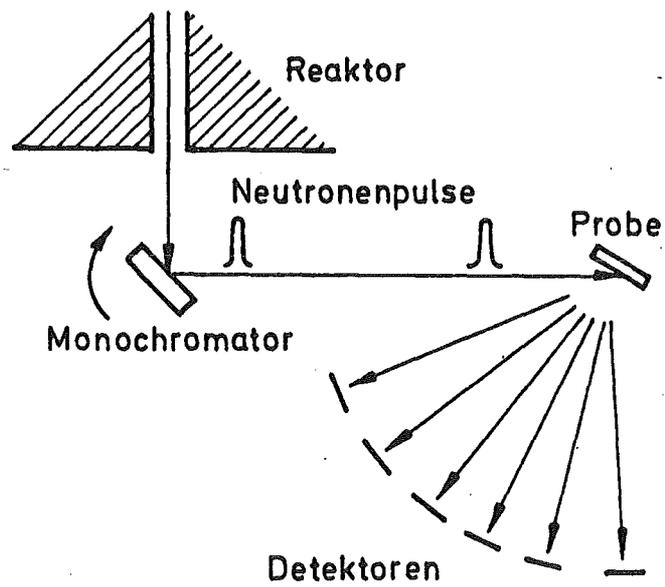


Abb.4: Prinzip des Drehkristall-Flugzeitspektrometers

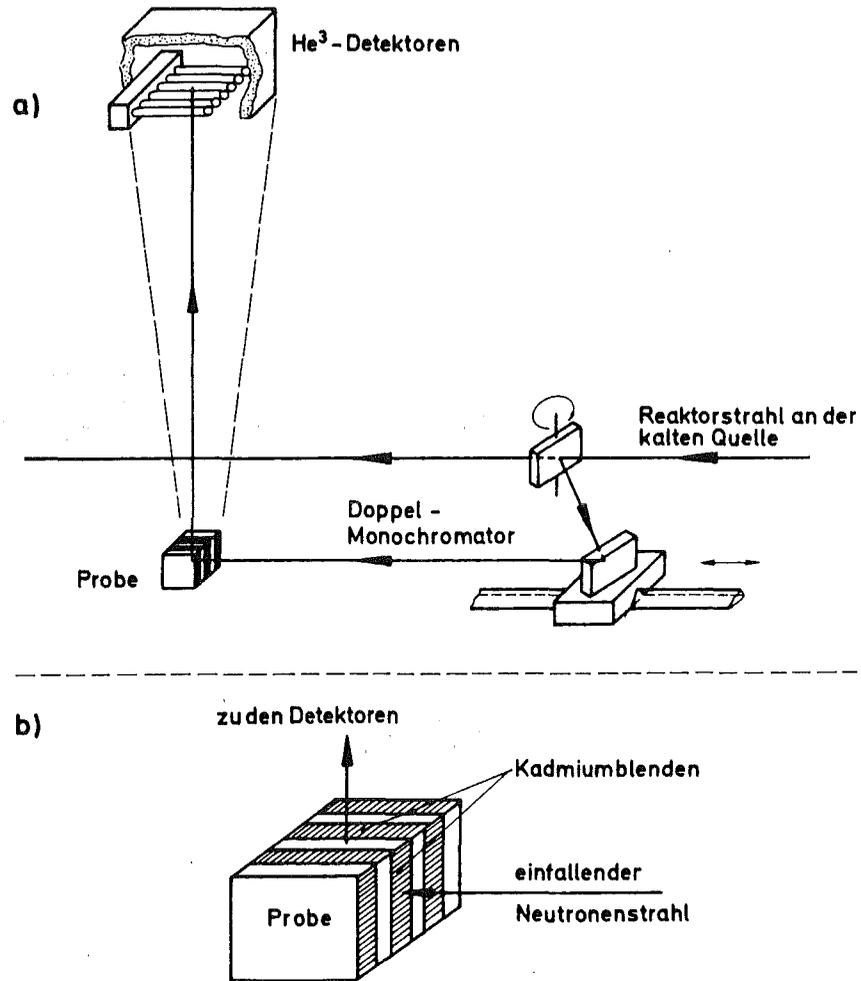


Abb. 5a) Doppelmonochromator-Drehkristallspektrometer zur direkten Bestimmung der Phononenfrequenzverteilung von kohärenten Streuern;

b) Prinzip der Probenabschirmung

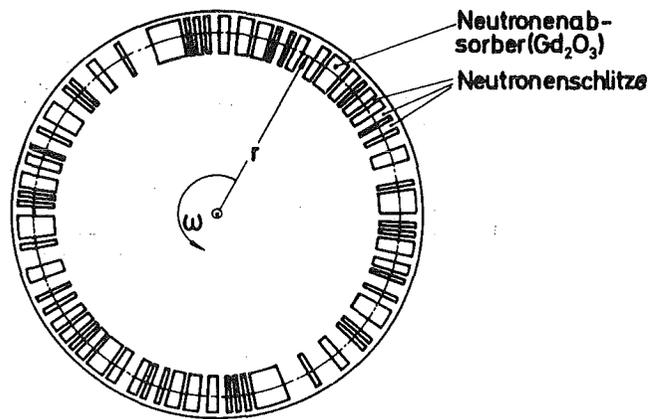


Abb.6: Neutronen-Chopper mit zwei Pseudozufallsfolgen ( $N=2^h-1=127$ )

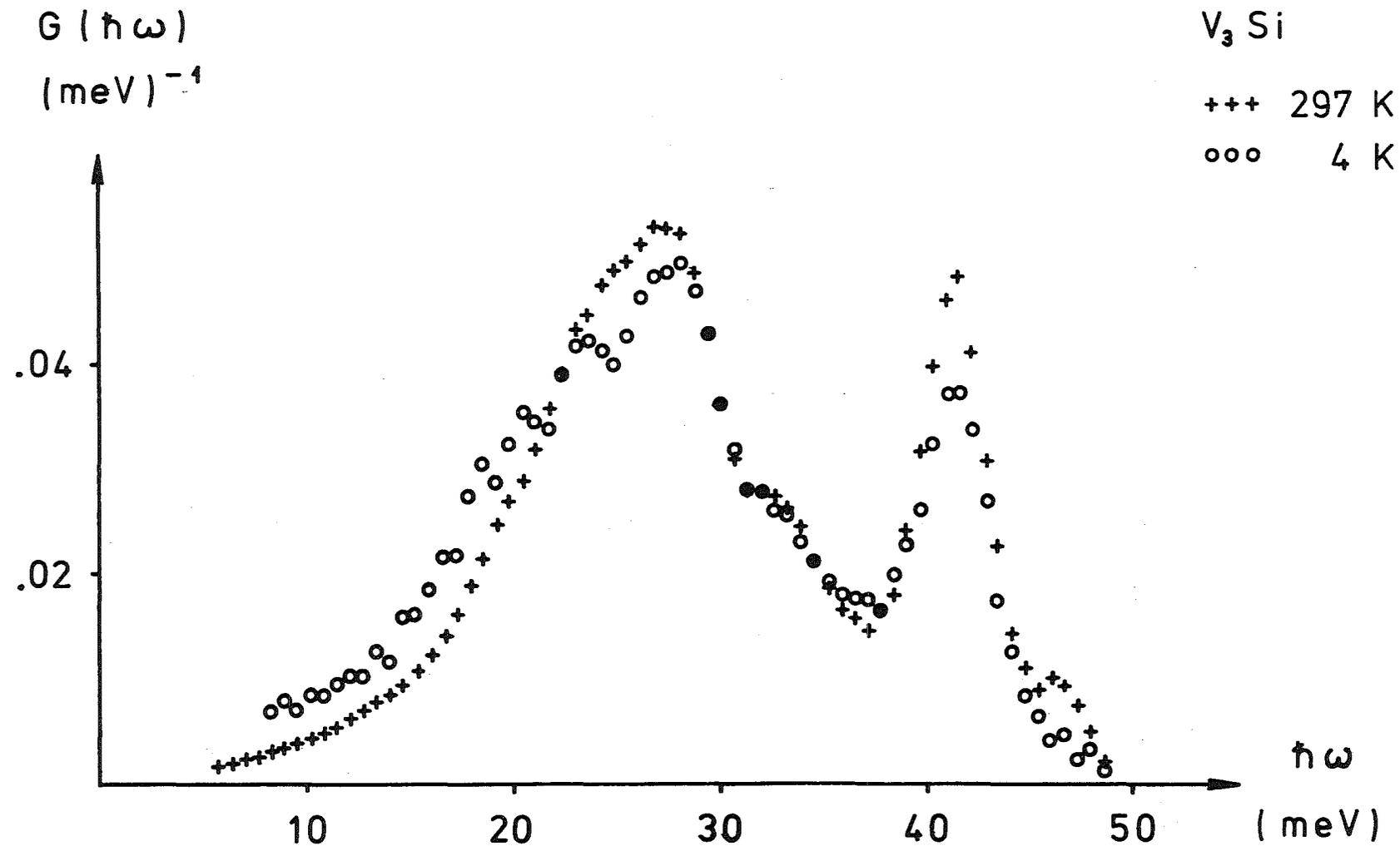


Abb.7: Phononenfrequenzverteilung von V<sub>3</sub>Si bei 4 K und 297 K.

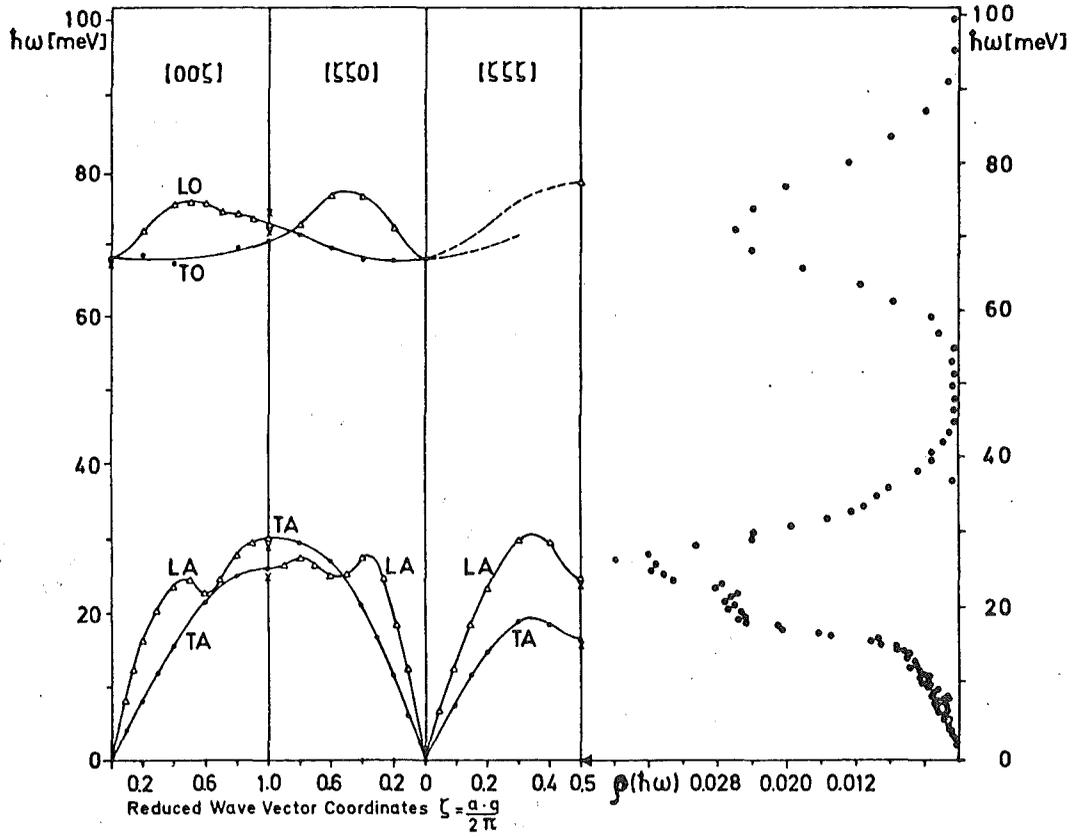


Abb. 8: Phononenfrequenzverteilung  $\rho(\hbar\omega)$  von NbC im Vergleich zu den Phononendispersionskurven von NbC.

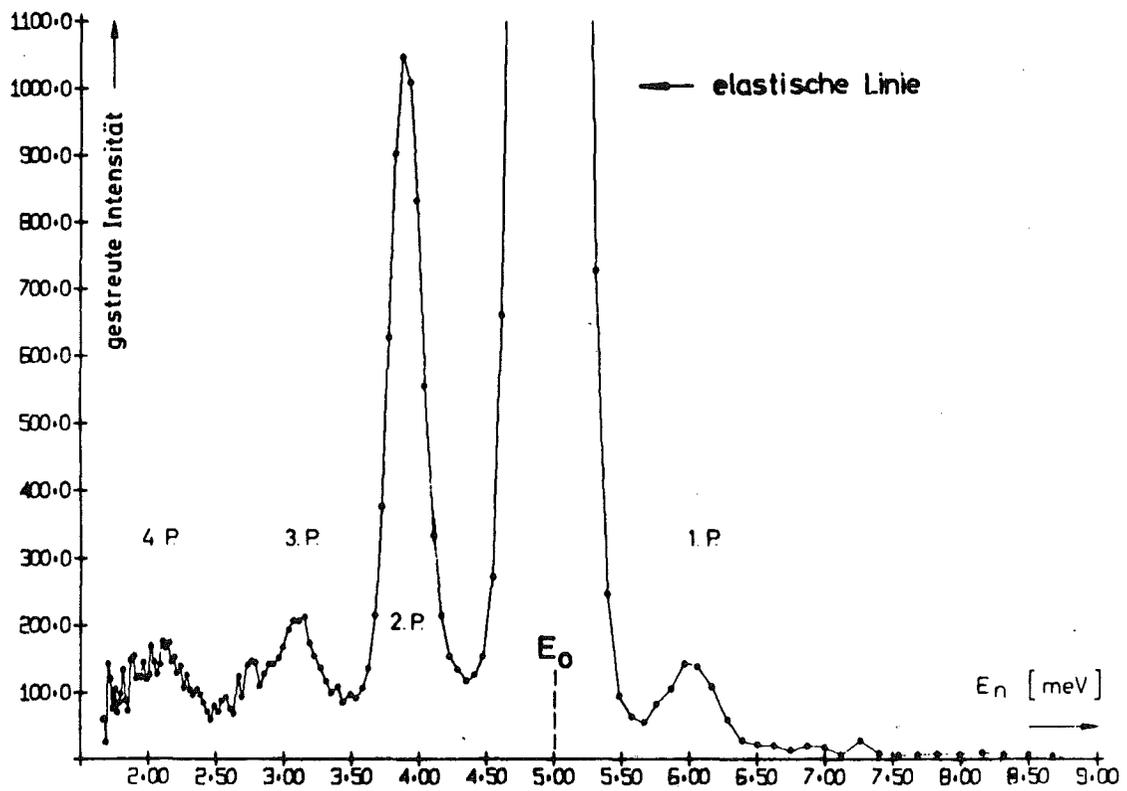


Abb.9: Spektrum der an festem Methan ( $T=4.2$  K) unelastisch gestreuten Neutronen.



## Z i e l f u n k t i o n e n

W. Häfele

Internationales Institut für Angewandte Systemanalyse,  
Laxenburg, Österreich

Karl Wirtz zum 65. Geburtstag gewidmet.

Seit den frühen Vierziger Jahren spielt die Disziplin des Operations Research (OR) eine immer größere Rolle. Ein hervortretender Bereich des OR sind die Optimierungsprobleme. Insbesondere gilt das für die Lineare Programmierung (LP). Kantorovich hatte schon 1939 die Tragweite der LP erkannt und erste Beiträge geleistet. Vor allem aber war es G.B.Dantzig, der 1947 durch die Erarbeitung des Simplexverfahrens den entscheidenden Durchbruch erzielte /1/. Die von Koopmans 1949 in Chicago abgehaltene Konferenz etablierte dann endgültig die eigenständige Bedeutung des LP.

Beim LP Problem sind alle Relationen linear. Es geht um die Optimierung einer linearen Zielfunktion unter Einhaltung einer Anzahl von linearen Nebenbedingungen. Ein klassisches Beispiel ist das Allokationsproblem bei einer Transportaufgabe. Man betrachtet  $n$  Lager für eine bestimmte Ware. Weiter betrachtet man  $m$  Fabriken zur Herstellung dieser Ware. Die spezifischen Kosten des Transports einer Ware von der Fabrik  $i$  zum Warenlager  $j$  seien  $C_{ij}$ . Dann sind die Gesamtkosten  $K$  gegeben durch:

$$K = \sum_{i=1}^m \sum_{j=1}^n C_{ij} X_{ij}, \quad (1)$$

wobei  $X_{ij}$  die Aktivitäten des LP Problems sind, in diesem Fall die Mengen der von der Fabrik  $i$  zum Lager  $j$  transportierten Gesamtmengen

an in Rede stehenden Waren. Es bestehen Nebenbedingungen:

$$\sum_{j=1}^n X_{ij} \leq a_i \quad i = 1, 2, \dots, m \quad (2)$$

und

$$\sum_{i=1}^m X_{ij} \geq d_j, \quad j = 1, 2, \dots, n \quad (3)$$

d.h. die gesamten von der Fabrik  $i$  abgehenden Transporte können (höchstens) der dortigen Produktion  $a_i$  entsprechen. Und alle in Lager  $j$  eintreffenden Transporte müssen (mindestens) dem dort vorliegenden Bedarf  $d_j$  entsprechen. Das LP Problem besteht darin, die Transportkosten  $K$  zu minimieren.  $K$  wird als die Zielfunktion des vorgelegten Problems bezeichnet. Diese Aufgabe wird dann nicht trivial, wenn die Zahl der Aktivitäten und Begrenzungen sehr groß wird. Das von Dantzig entworfene Simplexverfahren ist auf den Gebrauch elektronischer Rechner zugeschnitten. Der Rechenaufwand geht etwa mit der dritten Potenz der Zahl der Nebenbedingungen. Heute werden LP Aufgaben von 30 000 Aktivitäten (und mehr) behandelt. Bei so klar gestellten Aufgaben macht die Formulierung der Zielfunktion keine Schwierigkeiten. Auch allgemeiner waren es in der Vergangenheit fast immer Kosten, die zu optimieren waren.

Kosten als Zielfunktion müssen sich nicht nur auf ein gegebenes (eventuell kurzes) Zeitintervall beziehen. Vielmehr können auch größere Zeitintervalle betrachtet werden. Sie bilden dann den Zeithorizont des LP Problems. So haben Häfele und Manne das Problem des Übergangs von fossilen zu nuklearen Brennstoffen betrachtet /2/. Unter einem Zeithorizont von 75 Jahren soll die jeweilige jährliche Zusammensetzung der Bereitstellung von Primärenergie aus den folgenden Quellen betrachtet werden:

fossil: KOHLE, ÖL + ERDGAS.

nuklear: LEICHTWASSERREAKTOREN, BRÜTER, HOCHTEMP.REAKTOREN

Primärenergieerzeugungen aus diesen Quellen sind also die Aktivitäten des LP Problems. Die Nebenbedingungen dabei sind:

- a) Es soll der jährliche Primärenergiebedarf jeweils elektrisch und nicht elektrisch gedeckt werden.
- b) Es soll kumulativ nicht mehr als eine vorgegebene Gesamtmenge an Öl + Erdgas verbraucht werden.
- c) Es soll kumulativ nicht mehr als eine vorgegebene Gesamtmenge an billigem Uran verbraucht werden.
- d) Es sollen bestimmte jährliche Fertigungskapazitäten für die betrachteten Reaktortypen eingehalten werden.

Bei d) handelt es sich um eine den Aktivitätsfluß begrenzende Nebenbedingung:  $\Delta X = X(t+1) - X(t)$  kann den durch die Fertigungskapazität für den mit X bezeichneten Reaktortyp nicht überschreiten.

Es ist nicht Aufgabe dieser Arbeit, die von Häfele und Manne angestellten Überlegungen zu wiederholen und den Bezug zum allgemeinen Energieproblem, wie er etwa von Häfele angestellt worden ist /3/, erneut zu beschreiben. Vielmehr soll auf den Typ der Zielfunktion hingewiesen werden, der dort verwendet wurde. Die Kosten-Zielfunktion lautet:

$$K = \left[ \sum_{t=0}^{75} 3\beta^t \right] \cdot \left[ \sum_i \text{cur}_i \cdot \text{PC}_i^t + \left( \sum_i \text{cap}_i \cdot \text{DP}_i^t \right) (1 - \text{TV}_t) \beta^{-2} \right] \quad (4)$$

wobei

- $\beta$  der Barwertfaktor ist ( $\beta = \frac{1}{1,1}$  bei einem Diskontsatz von 10%),
- $\text{cur}_i \cdot \text{PC}_i^t$  die laufenden Kosten für die Primärenergieerzeugung durch die Kapazität im t-ten Zeitschritt sind,
- $\text{cap}_i \cdot \text{DP}_i^t$  die Installationskosten sind,
- $1 - \text{TV}_t$  der verbleibende Wert ist,
- $\beta^{-2}$  der Bauzinsverlust ist.

Die Zielfunktion bezieht sich auf die Summe von Drei-Jahres-Schritten. Wegen der  $\frac{75}{3} = 25$  Schritte hat das hier betrachtete LP Problem somit

25x5 Aktivitäten und 25x7 Nebenbedingungen.\*) Als Ergebnis werden Strategien für den Übergang von fossilen zu nuklearen Brennstoffen angegeben, bei denen unter Einhaltung der Nebenbedingungen der Barwert der Energiekosten für den hier betrachteten Zeithorizont von 75 Jahren minimiert wird.

In den letzten Jahren haben die Einwände gegen eine bloße Optimierung der Kosten zugenommen. Zu recht werden nicht-monetäre Kosten wie etwa die der Schadstoffbelastung immer ausdrücklicher angesprochen. Dann liegt es nahe, Kosten für die Rückhaltung solcher Schadstoffe mit einzubeziehen. Bei einer gegebenen räumlichen Verteilung der Schadstoffemittenten, kann etwa die mit jeder Aktivität  $PC_i^t$  einhergehende Emission vom Typ p angegeben werden:

$$EPC_i^t = e_{i,p}^t \cdot PC_i^t \quad (5)$$

Im Falle eines ölgefeuerten Kraftwerkes würde p sich auf  $SO_2$  beziehen,  $e_{i,p}^t$  die Dimension  $[gSO_2/KWsec]$  haben und  $EPC_{i,p}^t$  würde somit die Dimension  $[gSO_2/sec]$  haben. Ein meteorologischer Faktor  $s_p^{E_i \rightarrow I}$  würde die Emission des Typs p am Ort  $E_i$  (mit dem jede Aktivität  $PC_i^t$  verbunden ist) mit der Immission am Ort I verbinden. Ein derartiger meteorologischer Faktor hat die Dimension  $[sec/m^3]$ . Wir haben dementsprechend für solche Immission:

$$IPC_i^t = s_p^{E_i \rightarrow I} \cdot e_{i,p}^t \cdot PC_i^t \left[ \frac{g(p)}{m^3} \right] \quad (6)$$

Für die Immissionen liegen aber Standards vor. Jeder Schadstoff p darf eine bestimmte Konzentration  $\frac{g(p)}{m^3}$  nicht überschreiten. Es lie-

---

\*) Im einzelnen stellt sich in der Arbeit von Häfele und Manne das Problem noch geringfügig anders dar, was in diesem Zusammenhang aber ohne Bedeutung ist.

gen also zusätzliche Nebenbedingungen vor:

$$\sum_i s_p^{E_i \rightarrow I} \cdot e_{i,p}^t \cdot PC_i^t \leq S_p \left[ \frac{g(p)}{m^3} \right] \quad (7)$$

für alle t,

für alle I.

Die Zielfunktion setzt sich nun aus der ursprünglichen Zielfunktion (4), die jetzt  $K_0$  genannt werde, und einem Term zusammen, der die Kosten für Rückhaltemaßnahmen bezeichnet. Man hat damit den folgenden Ausdruck:

$$K = K_0 + \left[ \sum_{t=0}^{75} 3\beta^t \right] \left[ \sum_i k(e_{i,p}^t) PC_i^t \right]. \quad (8)$$

Die mit dem Rückhaltefaktor  $e_{i,p}^t$  einhergehenden Kosten sind im allgemeinen nicht linear von e abhängig. Hier muß man sich mit einer stückweisen Linearisierung behelfen.

Das eben skizzierte Verfahren erlaubt bei gegebener geographischer Verteilung eine die Immissionsstandards beachtende kostenoptimale Strategie beim oben angegebenen Problem zu bezeichnen. Dann ist es interessant, die Schattenpreise solcher Standards zu betrachten. Das heißt, man betrachtet den Einfluß einer Änderung der Standards auf die Zielfunktion:

$$\frac{\partial K}{\partial S_p} \left[ \frac{DM}{g(p)/m^3} \right].$$

Bildet man nach Art der in der Ökonometrie verwendeten Elastizitäten nun noch den folgenden dimensionslosen Ausdruck

$$\rho_p = \frac{S_p}{K} \frac{\partial K}{\partial S_p}, \quad (9)$$

so lassen sich damit Hinweise auf das Problem der Festlegung von Standards gewinnen.

K. Hoffman hat in seinem Modell, in dem er die Allokation von Primärenergie auf den Sekundärenergiebedarf untersucht hat, neben den Kosten auch andere Größen als Zielfunktion betrachtet /4/. Er betrachtet eine Minimierung der Schadstoffbelastung bei gegebenen Gesamtkosten als begrenzende Bedingung oder aber auch die Minimierung des Primärenergieverbrauches bei gegebenem Sekundärenergieverbrauch.

Es liegt auf der Hand, daß hier viele Verallgemeinerungen möglich sind. Unter anderem wird auch am Internationalen Institut für Angewandte Systemanalyse in dieser Richtung gearbeitet. Das Gebiet der Modellbildung im Bereich von Energiebedarf und Energieerzeugung befindet sich in einem raschen Ausbau, und es sei hier auf zusammenfassende Überblicke verwiesen /5/.

Am Internationalen Institut für Angewandte Systemanalyse werden nicht nur Systemuntersuchungen auf dem Energiegebiet durchgeführt. Vielmehr werden ebensolche Untersuchungen auch für Stadtsysteme, Wassersysteme, medizinisch-biologische Systeme, Ökologiesysteme und andere durchgeführt. In dem hier interessierenden Zusammenhang ist es nun wichtig auf den Begriff der Resilience hinzuweisen, wie er von Holling entwickelt worden ist /6/. Sehr umfangreiche Studien über ökologische Gleichgewichte, die sich zum Teil auf ein sehr lange Zeiten umfassendes, gutes Datenmaterial beziehen /7/, haben Holling dazu geführt, die Schlagabsorptionsfähigkeit ökologischer Systeme zu betrachten und sie mit Resilience zu bezeichnen.\*<sup>)</sup> Menschliche Eingriffe in ökologische Systeme, wie etwa der Bau des Assuan Dammes, stellen solche Schläge dar. Es zeigt sich, daß ökologische Systeme eine endliche Anzahl von Eingriffen unter gegebenenfalls starker Änderung ihrer Eigenschaften absorbieren

---

\*<sup>)</sup> Bezeichnenderweise wird im Englischen etwa ein Boxer als resilient bezeichnet.

können. Bei dem dann folgenden nächsten Eingriff kollabieren sie aber völlig, das heißt, sie werden nicht nur verändert, sondern sie brechen zusammen. Die Eutrophierung von Seen ist ein Beispiel dafür.

Es interessiert, den Zusammenhang zum Begriff der Sicherheit, wie er im ingenieurmäßigen Bereich verwendet wird, herzustellen. Dazu dient Figur 1. In der Vergangenheit stand die auf ingenieurmäßiger Erfahrung basierende Einschätzung der "realistischerweise" zu erwartenden Unfälle im Vordergrund (1). Die in runden Klammern stehenden Zahlen weisen auf Teile der Figure 1 hin. Im Bereich der Reaktortechnik weist der Begriff GAU, des größten anzunehmenden Unfalls, genau darauf hin. Auf diese Weise werden nur innerhalb von Grenzen Unfälle betrachtet, für die Vorsorge zu treffen ist. Die nicht grundsätzlich auszuschließende Möglichkeit außerordentlich weitreichender Folgen kerntechnischer Unfälle hat jedoch in den letzten Jahren dazu geführt, daß Unfälle ohne solche Grenzen antizipiert werden. Sie führen zu einem Restrisiko. Es geht dann darum, solches Restrisiko in bestehende Risiken einzubetten (3). Dazu sind heute erhebliche Forschungsarbeiten erforderlich, denn in der Vergangenheit sind solche Fragen kaum behandelt worden. Seit 1974 gibt es z.B. eine gemeinsame Forschungsgruppe des Internationalen Instituts für Angewandte Systemanalyse und der Internationalen Atomenergie Agentur, die solche Fragen behandelt. Bei solchen Arbeiten wird der Unterschied zwischen objektivem Risiko und subjektivem Risikoverständnis (4) deutlich. Die allermeisten der anstehenden Restrisiken lassen sich durch das traditionelle Verfahren von Versuch und Irrtum grundsätzlich nicht behandeln. Vielmehr finden alle entsprechenden Erörterungen im Bereich der Hypothetizität statt (7). Der Autor hat hier versucht, ausführlicher zu Klarstellung zu kommen /8/. Methoden der Entscheidungsanalyse /9/ können dann helfen, in einem formalisierten Verfahren (5), bei grundsätzlich fortbestehender Unsicherheit zu Entscheidungen (6) über Standards für die Akzeptierbarkeit von Restrisiken zu kommen (8). Eine voll ausgebaute Zuverlässigkeitskontrolle (9) hat dann nachzuweisen, ob ein bestimmter technischer Entwurf solchen Stan-

dards entspricht. Der kürzlich veröffentlichte Rasmussen Report steht begrifflich genau an dieser Stelle /10/. Den Durchgang (2)-(10) kann man als den probabilistischen Zugang zur Behandlung von möglicherweise zu erwartenden Unfällen bezeichnen. Solchem Zugang steht der traditionelle Zugang (1), (10) gegenüber. In der Praxis läßt der probabilistische Zugang sich heute noch nicht lückenlos durchhalten. Neben anderen Schwierigkeiten ist hier vor allem auf die institutionelle Schwierigkeit der verbindlichen Erstellung von Standards für Restrisiken hinzuweisen. Solche Schwierigkeiten weisen auf die Schritte (3) bis (6) hin. Auf längere Sicht ist nach Meinung des Autors aber zu erwarten, daß es wirklich zu der Ausbildung der probabilistischen Behandlung von möglicherweise zu erwartenden Unfällen kommt.

Demgegenüber geht das von Holling entwickelte, noch qualitative Konzept der Maximierung von Resilience vielleicht noch einen Schritt weiter, so daß ein dritte Ebene für die Behandlung von möglicherweise zu erwartenden Unfällen zu konzipieren wäre.

Im folgenden soll ein erster Versuch gemacht werden, das Resilience-Konzept unter der Annahme der Existenz einer solchen dritten Ebene quantitativ zu fassen und von daher zur Formulierung einer entsprechenden Zielfunktion zu kommen.

Dieser Versuch soll unter Verwendung eines stark vereinfachenden Beispiels erfolgen. Dazu soll ausdrücklich auf den Aufsatz verwiesen werden, den der Autor in der Festschrift veröffentlicht hat, die Carl Friedrich v. Weizsäcker zum 60. Geburtstag gewidmet ist /11/. Dort wird ausgeführt, daß das Problem der Kernenergie darin besteht, daß ein fast unendlich großer Nutzen sich mit einem hypothetisch fast unendlich großen Risiko verbindet und daß bei solcher Verbindung ein fast unendlich großes ingenieurmäßiges Potential zur Abdeckung solchen Risikos besteht. Offenbar besteht das Problem darin, mit dem Verkoppeln solch fast unendlich groß gewordener Größen fertig zu werden. Auf diesen Zusammenhang soll im folgenden Bezug genommen werden.

Eine letzte Vorbemerkung ist noch erforderlich. Es ist nur dann möglich, das Konzept der Resilience deutlich zu machen, wenn nicht-lineare Zusammenhänge betrachtet werden. Alle von Holling untersuchten ökologischen Zusammenhänge sind hochgradig nichtlinear.

In diesem Sinne betrachten wir das folgende Modell einer gedachten Gesellschaft S:

- 1) Die Gesellschaft S hat ein effektives Brutto-Sozial-Produkt G, das sich nach Art einer Cobb-Douglas Funktion beschreiben läßt, wenn nur der jährliche Verbrauch an Energie E und Arbeitskraft eingeht. Die Arbeitskraft sei proportional der Gesamtbevölkerung P der Gesellschaft S. Zum Beispiel hat Tintner /12/ Produktionsfunktionen für Österreich angegeben, bei denen der Energieverbrauch als Produktionsfaktor explizit eingeht. Von solcher Produktionsfunktion sind die Kosten K abzuziehen, die für Einstellung eines bestimmten Restrisikos aufzuwenden sind, denn hierbei handelt es sich um passiviertes Bruttosozialprodukt. Man findet

$$G = A \cdot E^{\alpha} \cdot P^{\beta} - K.$$

Indem wir annehmen, daß eine Verdoppelung der Produktionsfaktoren E und P nur zu einer Verdoppelung des Wertes der Cobb-Douglas Funktion führen soll, gilt  $\alpha + \beta = 1$ . In Anlehnung an Tintner gilt  $\alpha = \frac{1}{2}$ . Damit haben wir:

$$G = A \cdot E^{\frac{1}{2}} \cdot P^{\frac{1}{2}} - K. \quad (10)$$

- 2) Wir nehmen an, daß der Standard für das Restrisiko sich auf Individuen bezieht und umgekehrt proportional den aufgewendeten Kosten k pro KWJahr ist:

$$r = r_o \cdot \frac{k_o}{k} = r_o \cdot \frac{K_o}{E_o} \cdot \frac{E}{K}, \quad (11)$$

mit

$$k = \frac{K}{E}, \quad (12)$$

wobei die mit o indizierten Größen Referenzwerte darstellen.

Man erhält

$$K = \frac{r_o}{r} \cdot \frac{K_o}{E_o} \cdot E. \quad (13)$$

Man beachte, daß Gleichung (11) die in /11/ behandelten Aussagen über das Restrisiko beinhaltet: Ingenieursmäßige Sicherheitsmaßnahmen können das Restrisiko gegen Null gehen lassen, wenn man beliebig viel Geld aufwendet.

- 3) Der gesamte Energieverbrauch E pro Jahr ist das Produkt aus pro Kopf Verbrauch pro Jahr e und Anzahl der Bevölkerung P:

$$E = e \cdot P. \quad (14)$$

- 4) Die etwa im Verfahren (2)-(10) der Figur 1 ermittelte Risikobereitschaft der Gesellschaft S verhält sich umgekehrt proportional zum pro-Kopf-Verbrauch e potenziert mit  $\lambda$ . Je besser der Einzelne lebt, desto unverhältnismäßig weniger ist er bereit, ein Restrisiko zu akzeptieren:

$$\left(\frac{r}{r_o}\right) = \left(\frac{e}{e_o}\right)^\lambda \quad \lambda > 1.$$

Für unsere Zwecke setzen wir  $\lambda=2$ :

$$\frac{r}{r_0} = \left(\frac{e}{e_0}\right)^2 . \quad (15)$$

- 5) Für die Bereitstellung von Energie bestehen keine Beschränkungen, d.h. der über die Zeit  $t'$  integrierte Gesamtverbrauch

$$\int_0^t e \cdot P dt'$$

kann mit der Zeit unbeschränkt wachsen. Damit beziehen wir die in /11/ bezeichnete dritte Dimension eines fast unendlich grossen Nutzens in das Modell implizit mit ein.

- 6) Wir nehmen an, daß das Wachstum des Energieverbrauches proportional zum effektiven Brutto-Sozial-Produkt  $G$  ist:

$$\frac{dE}{dt} = \mu \cdot G, \quad (16)$$

wobei  $\mu$  die Proportionalitätskonstante ist.

- 7) Wir nehmen an, daß das Bevölkerungswachstum positiv proportional zur Bevölkerungszahl, und negativ proportional zum durch  $e$  bezeichneten persönlichen Wohlstand ist:

$$\frac{dP}{dt} = \sigma P - \kappa e, \quad (17)$$

wobei  $\sigma$  und  $x$  die Proportionalitätskonstanten sind.

Der Vorteil des hier vorgelegten sehr einfachen Modells einer gedachten Gesellschaft  $S$  liegt darin, daß alle Relationen sehr durchsichtig sind. Es ist möglich, das Modell in dem zweidimensionalen Konfigurations-Raum  $(e,P)$  durch eine gewöhnliche Differentialgleichung erster Ordnung darzustellen. Und das Modell ist nichtlinear und erlaubt, wie wir sehen werden, die Erläuterung des Resilience-Begriffes. Man findet ohne Schwierigkeiten

$$\frac{de}{dP} = \frac{\mu A e^{\frac{1}{2}} \cdot P - \mu C e^3 P - \sigma P + K e^2}{P(\sigma P - K e)} \quad (18)$$

mit

$$C = \frac{K_0}{E_0} \frac{1}{e_0^2} . \quad (19)$$

Man sucht nun Trajektorien im  $(e,P)$ -Feld, deren Zeitbelegung durch (16) oder (17) ermittelt werden kann. In Figur 2 ist das  $(e,P)$ -Lösungsfeld angegeben. Dazu wurden die folgenden Zahlenwerte angenommen:

$$A = 0,25 \cdot 10^4 \left[ \frac{\$}{\text{Jahr} \cdot \text{kW}^{\frac{1}{2}} \cdot \text{Kopf}^{\frac{1}{2}}} \right]$$

$$\frac{K_0}{E_0} = 10 \left[ \frac{\$}{\text{kW Jahr}} \right]$$

$$e_0 = 3 \left[ \text{kW/Kopf} \right]$$

$$\mu = 24 \cdot 10^{-6} \left[ \frac{\text{kW}}{\$} \right]$$

$$\sigma = 2 \cdot 10^{-2} \left[ \frac{1}{\text{Jahr}} \right]$$

$$K = 0,25 \cdot 10^6 \left[ \frac{(\text{Kopf})^2}{\text{kW Jahr}} \right]$$

Die Figur 2 wird durch den Sattelpunkt bestimmt. Er liegt bei  $e_s = 21,9 \frac{\text{kW}}{\text{Kopf}}$  und  $P_s = 274$  Mio Köpfe. Als Sattelpunkt teilt er den Konfigurationsraum in vier völlig getrennte Gebiete A, B, C, D, ein. In A steigen sowohl  $e$  als auch  $P$ . Asymptotisch, d.h. für  $P \rightarrow \infty$ , wird ein fester Wert für  $e$  erreicht,  $e_\infty = 7,7$  kW/Kopf. Der persönliche Wohlstand wächst nicht mehr, das Wachstum des aktiven Bruttosozialproduktes wird allein für die zusätzlich Geborenen ausgegeben. In B kommt man dagegen aus Bereichen eines negativen aktiven Bruttosozialproduktes. Durch eine Reduktion der Bevölkerung werden Mittel frei und die Konstellation erlaubt dann doch das Einlaufen in die stabilen Lösungen. Anders verhalten sich die Lösungen in D. Dort wächst der persönliche Wohlstand und mit ihm die Sicherheitsanforderungen. Im Verfolg der Trajektorien in D ist das aktive Bruttosozialprodukt bald negativ, nur durch Heraussterben können die nötigen Mittel noch aufgebracht werden. Entsprechendes gilt für das Gebiet C.

In Figur 3 sind die zeitlichen Verläufe von  $P(t)$ ,  $e(t)$ ,  $K(t)$ ,  $r(t)$  und  $G(t)$  für die Anfangsbedingungen  $P_0 = 220$  Mio Köpfe,  $e_0 = 10$  kW/Kopf wiedergegeben und in Figur 4 für die Anfangsbedingungen  $P_0 = 75$  Mio Köpfe und  $e_0 = 2,7$  kW/Kopf.

Das hier vorgestellte Modell ist stark vereinfachend. Die Ergebnisse mögen qualitativ dazu dienen, nachdenklich zu werden. Der Wunsch nach absoluter Sicherheit kann zum Kollaps führen. Es ist offenkundig, daß für ein quantitativ relevantes Modell sehr viel mehr Zusammenhänge berücksichtigt werden müssen. Auf Einzelheiten des Modells soll von jetzt an deshalb nicht mehr eingegangen werden.

Vielmehr soll jetzt ein erster Versuch gemacht werden, den Begriff der Resilience zu definieren. Solche Definition ist dann natürlich erheblich allgemeiner als das hier vorgelegte Modell.

Der Punkt, auf den es in einem allgemeineren Zusammenhang ankommt, ist also der: Die verschiedenen Lösungsgebiete sind durch die beiden Separatrices, die durch den Sattelpunkt gehen, scharf getrennt. Anfangsbedingungen in der Nähe der Separatrix  $S_1$ , die beliebig nahe beieinander liegen, können zu qualitativ andersartigen, weit auseinander liegenden Endzuständen führen! Falls ein zu A gehöriger Zustand des hier betrachteten human-ökologischen Systems nahe an  $S_1$  liegt, besteht also irgendwie Gefahr, durch ein nicht näher spezifiziertes und durch die Gleichungen (10) bis (17) nicht beschriebenes Ereignis oder aber auch wegen ungenauer Kenntnis über die Lage der Separatrix  $S_1$  über diese Separatrix aus A nach D geworfen zu werden. Das würde aber im Rahmen dieses Modells den Kollaps bedeuten, da für  $t \rightarrow \infty$  dann  $P \rightarrow 0$  geht.

Hier sollte man freilich klarstellen, daß Werturteile eingehen: A wird als erstrebenswerter angesehen als D. Andere Wertvorstellungen würden zu einer anderen Präferenz führen.

Ausgehend von solchen Wertvorstellungen liegt es also nahe, den Abstand zu der Separatrix, die Wünschenswertes von zu Befürchtendem trennt, so groß wie möglich zu machen und den Aufenthalt in der Nähe so kurz wie möglich. Man beachte nun Figur 5. Für ein gegebenes Linienstück (1 oder 2) bezeichnet  $a$  den Abstand zur Separatrix. Wegen der Zeitbelegung der Linienstücke ist  $a$  eine Funktion der Zeit. Wir definieren jetzt eine Größe R:

$$\frac{1}{R} = \int_{s_0}^{s_1} \frac{ds}{\frac{ds}{dt} \cdot a(s)} . \quad (20)$$

Für ein gegebenes Teilstück eines Linienstückes zwischen  $s_0$  und  $s_1$

ist  $R$  umso größer je größer der Abstand zur Separatrix ist und je schneller ein solches Linienstück durchlaufen wird. Wir sprechen hier von Linienstücken um allgemein zu sein. In einem vollständig deterministischen Modell, wie dem eben vorgestellten, sind die Linienstücke Teile von Trajektorien. Läßt man zusätzliche, in den ursprünglichen Gleichungen nicht erfaßte Einflüsse zu, können die Linienstücke auch Trajektorien kreuzen. Über die Größe  $R$  lassen sich die beiden Linienstücke 1 und 2 quantitativ vergleichen.  $R$  sollte dann ein Maß für die Resilience sein. Und das aus dem folgenden Grunde:

- a) Anders als bei dem ingenieurmäßigen und dem probabilistischen Zugang zum Problem der Behandlung von möglicherweise zu erwartenden Unfällen wird hier das Ergebnis, das über die Separatrix  $S$  führt, nicht explizit antizipiert.

Eine implizierte Antizipation ist nur noch insoweit gegeben als angenommen wird, daß die Gefahr umso größer ist, je näher man an der Separatrix ist, und je länger man in der Nähe der Separatrix verweilt.(3)

- b) Eine Maximierung von  $R$ , etwa im Rahmen eines geeignet formulierten LP Modells, deckt auch den Fall ab, daß man sich ein Stück weit unklar ist über die in Wirklichkeit geltenden Relationen. Man impliziert bei der Maximierung von  $R$  lediglich, daß in Wirklichkeit so etwas wie eine Separatrix irgendwie in der Nähe der vom Modell vorhergesagten Separatrix liegt.

Es sei deshalb die Vermutung erlaubt, daß die Maximierung von  $R$  in der Tat einen Vorgang auf der dritten, untersten Ebene in der Figur 1 sein könnte, d.h. daß es möglich sein könnte, über die explizite Antizipation von Unglücken hinaus, Sicherheitsmaßnahmen zu ergreifen.

Auf einen Umstand sei freilich noch hingewiesen. Die Definition eines Abstandes im Konfigurationsraum erfordert die Definition einer Metrik. Im Falle des hier vorgelegten Beispieles würde gelten:

$$A^2 = \text{Min}_{e_s, P_s} \left( \left( \frac{K}{\sigma} (e - e_s) \right)^2 + m^2 \cdot (P - P_s)^2 \right), \quad (21)$$

wobei  $e_s$  und  $P_s$  die Koordinaten der Separatrix sind.

Die Konstanten  $K$  und  $\sigma$  machen so wie in der Differentialgleichung (17) die Dimensionen kompatibel. Die Bestimmung von  $m$  impliziert die Definition einer Metrik. Sie ist aus dem Formalismus nicht ableitbar und muß von außen her definiert werden. Auf dieses so genauer strukturierte Problem reduziert sich dann der explizite Umgang mit dem Problem der Behandlung von für möglich gehaltenen Unfällen.  $m$  setzt Bevölkerungsänderungen und pro Kopf Verbrauches an Energie zueinander in Beziehung.

Das hier vorgestellte quantitative Resilience Konzept ist, wie bereits gesagt, unabhängig von dem hier vorgestellten Modell, dessen Einzelheiten unwichtig sind. Es hängt an der Bezeichnbarkeit differential-topologischer Zusammenhänge, wie sie für nicht lineare Relationen typisch sind. Im allgemeinen werden sehr viel mehr als zwei Variable den relevanten Konfigurationsraum ausmachen. Die von Holling untersuchten Beispiele weisen etwa auf viele tausend Zustandsgrößen.

Die vorgelegte Arbeit soll zu einem Abschluß kommen, indem noch einmal das oben angegebene Modell der gedachten Gesellschaft  $S$  betrachtet wird. So wie es hier vorgelegt worden ist, ist es total deterministisch. Für eine Optimierung ist gar keine Variable frei. Hier ist nun das folgende Vorgehen möglich: Die Energieerzeugung erfolge auf zweierlei Arten: auf nukleare Art (Index 2) und auf fossile Art (Index 1). Dann gilt

$$e = e_1 + e_2 . \quad (22)$$

In unserem Modell sei angenommen, daß die fossile Art der Energieerzeugung risikolos ist (was in Wirklichkeit nicht zutrifft). Dann muß statt Gleichung (12) die folgende Gleichung gelten:

$$r = r_0 \cdot \frac{k_0}{k} \cdot \frac{e_2}{e} \quad (12a)$$

Freilich muß nun auch gelten

$$V_1 - \int_0^t e_0 \cdot P \cdot dt \geq 0, \quad (23)$$

da die fossilen Vorräte  $V_1$  endlich sind. Es liegt nun nahe, die Freiheit, die mit dem Faktor  $\frac{e_2}{e}$  gegeben ist, zur Optimierung in einem LP-Programm zu benützen. Mit (22) als Begrenzung wäre in einem solchen Fall die Resilience, wie sie in Gleichung (20) angegeben ist, die Zielfunktion. Die resultierenden Strategien für den Übergang von fossilen zu nuklearen Brennstoffen wären dann mit den Strategien zu vergleichen, die sich unter Verwendung des Barwertes der Gesamtkosten, also etwa der Gleichung (4) oder (8), ergeben.

In dieser Richtung wird am Internationalen Institut für Angewandte Systemanalyse in Laxenburg bei Wien gearbeitet.

Der Autor möchte den Herren Prof. William Nordhaus, Dr. Rudolf Avenhaus, Dr. David Bell und Dr. Carlos Winkler für anregende Diskussionen danken. Herrn Dipl.Math. Leo Schrattenholzer ist für die numerische Integration der Gleichungen des hier vorgelegten Modells zu danken.

1. G.B. Dantzig, Linear Programming and Extensions, Princeton University Press, Princeton, N.J., 1963
2. W. Häfele, A.S. Manne, Strategies for a Transition from Fossil to Nuclear Fuels, International Institute for Applied Systems Analysis, RR-74-7, Juni 1974
3. W. Häfele, A Systems Approach to Energy, in: American Scientist, Vol.62, Nr.4, Juli-August 1974, S.438-447.
4. K.C. Hoffman, The United States Energy System - A Unified Planning Framework, Dissertation, Polytechnic Institute of Brooklyn, Juni 1972; und  
K.C. Hoffman, P.F. Palmedo, W. Marcuse und M.D. Goldberg, Coupled Energy System-Economic Models, Conference on Energy Modelling and Forecasting, Berkeley, California, Juni 1974
5. J.-P. Charpentier, A Review of Energy Models: No.1- May 1974, International Institute for Applied Systems Analysis, RR-74-10, Juli 1974
6. C.S. Holling, Resilience and Stability of Ecological Systems, in: Annual Review of Ecology and Systematics, Vol.4, S.1-23, 1973
7. Project Status Report: Ecology and Environment Project, International Institute for Applied Systems Analysis, SR-74-2-EC, Juni 1974
8. W. Häfele, Hypotheticality and the New Challenges: The Pathfinder Role of Nuclear Energy; in: Minerva, Vol.X, Nr.3, S.303-323, Juli 1974

9. H.Raiffa, Decision Analysis, Addison-Wesley, Reading, Massachusetts, Juli 1970
10. Reactor Safety Study, An Assessment of Accident Risks in U.S. Commercial Nuclear Power Plants, U.S. Atomic Energy Commission WASH-1400, August 1974
11. W. Häfele, Ergebnis und Sinn des SEFOR-Experimentes, in: Einheit und Vielheit, Festschrift für Carl Friedrich von Weizsäcker zum 60. Geburtstag, hrsg. von E.Scheibe und G.Süssmann, Vandenhoeck und Ruprecht, Göttingen/Zürich, 1973
12. G. Tintner, A Production Function for Austria Emphasizing Energy, Manuskript, Institut für Ökonometrie, Technische Hochschule Wien, 1974.

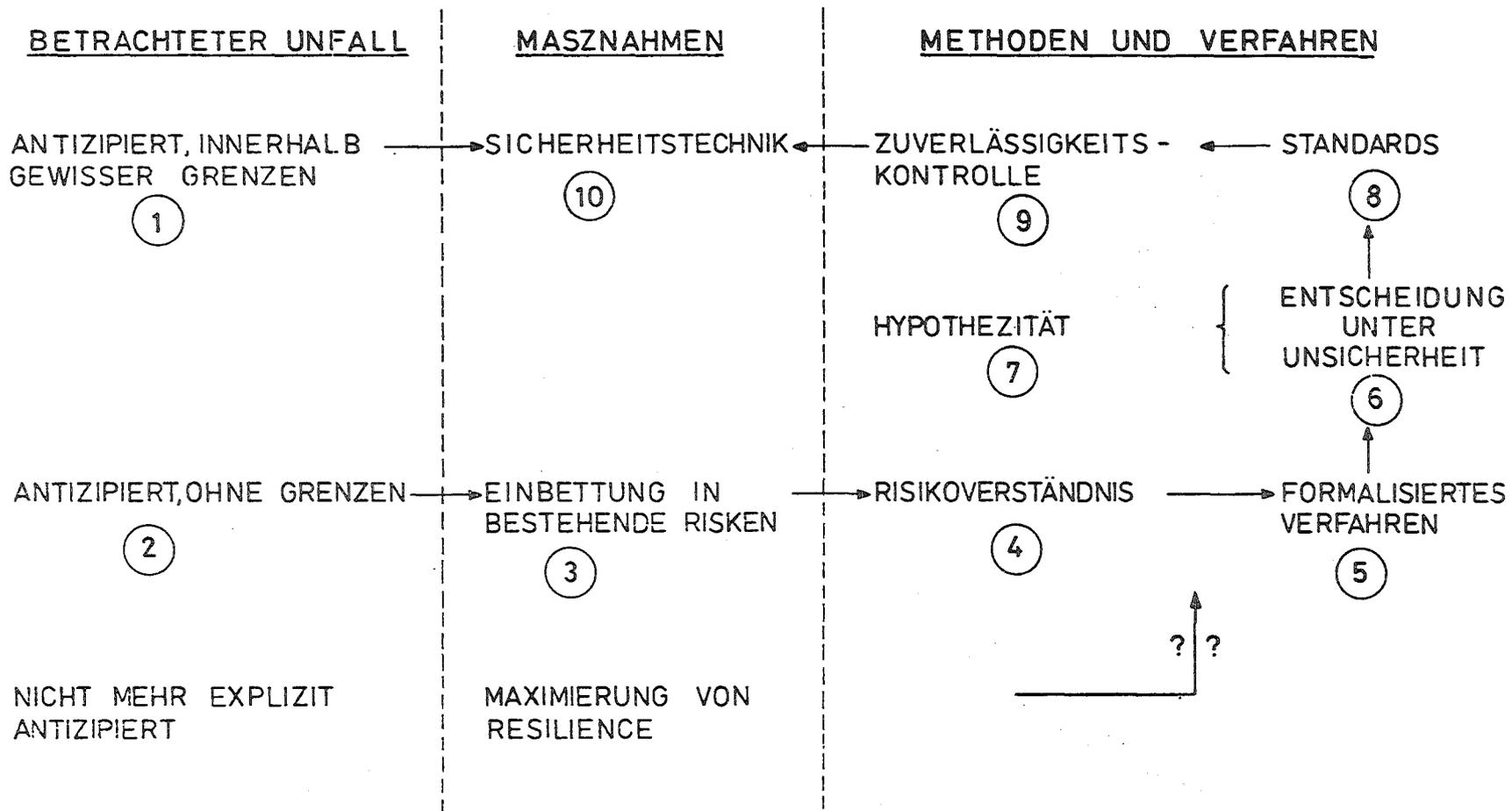


Abb.1: Behandlung von möglicherweise zu erwartenden Unfällen.

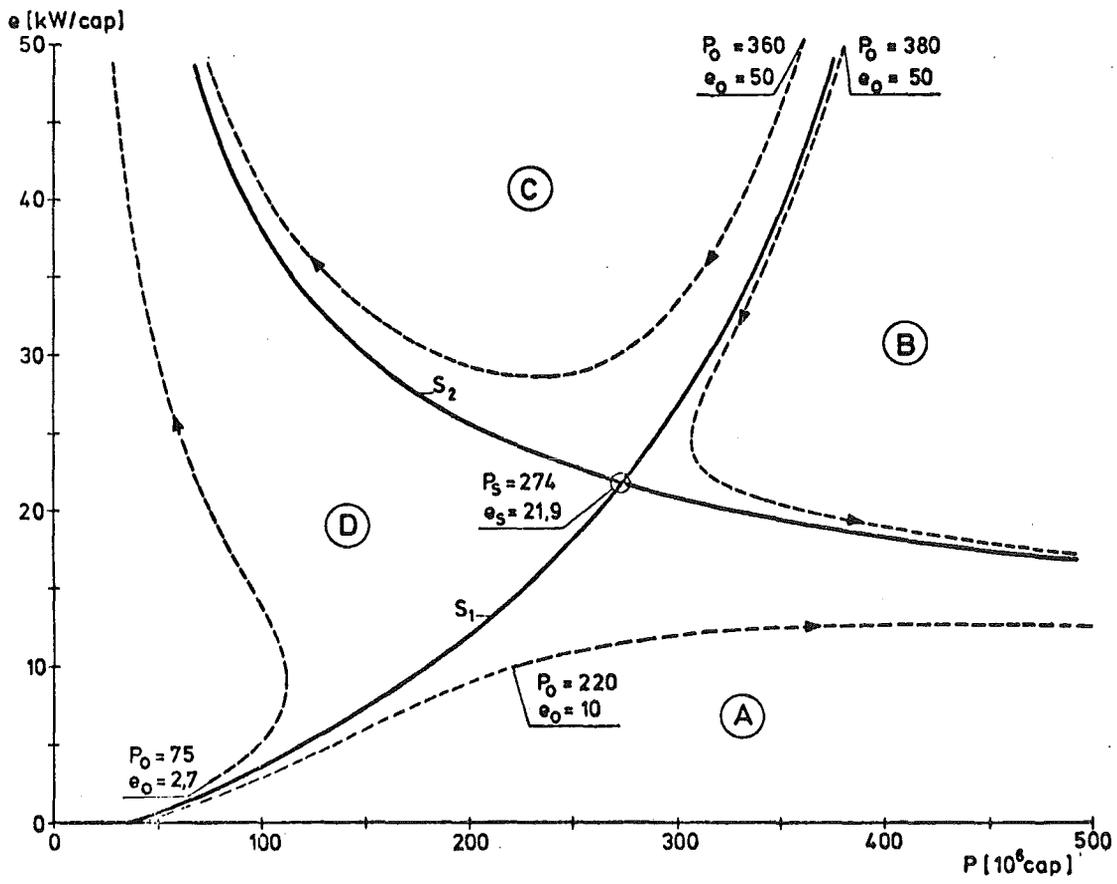
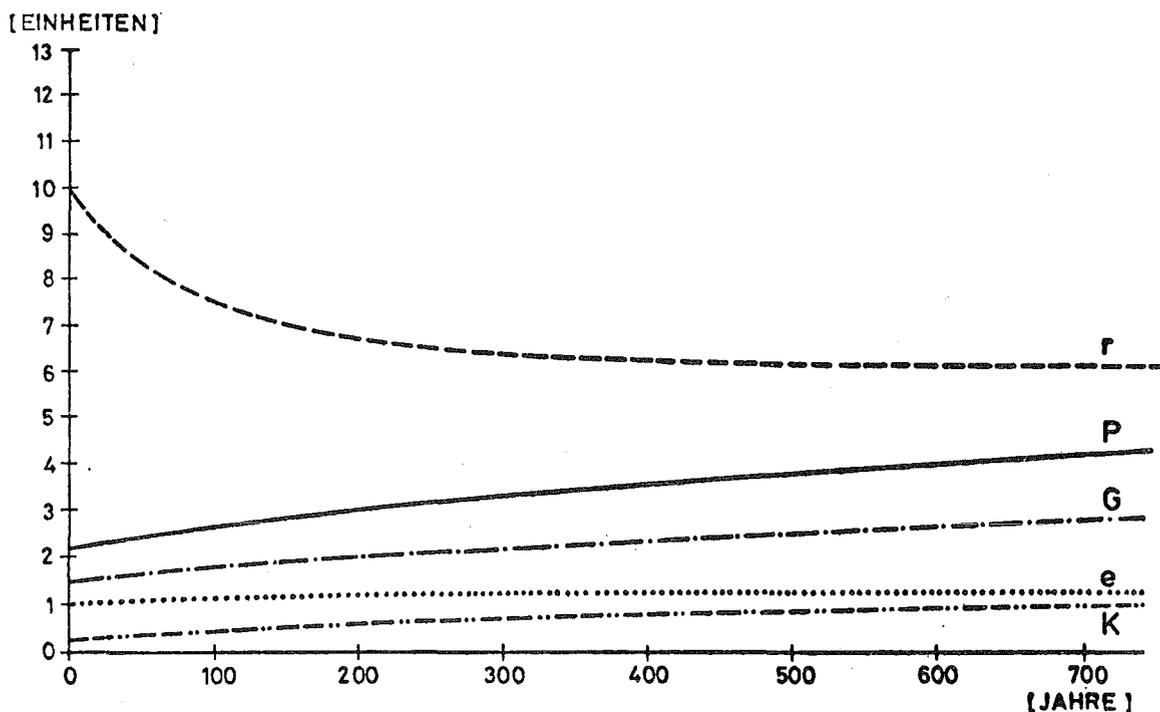


Abb. 2:  $(e, P)$ -Lösungsfeld



Anfangsbedingungen:  $P_0 = 220 \cdot 10^6 \text{ cap}$

$e_0 = 10 \text{ kW/cap}$

Maßstab:  $e [10 \text{ kW/cap/Einheit}]$

$P [100 \cdot 10^6 \text{ cap/Einheit}]$

$K, G [10^{12} \$/\text{Einheit}]$

$r [0.1/\text{Einheit}]$

Abb.3: Zeitverhalten der Gesellschaft S

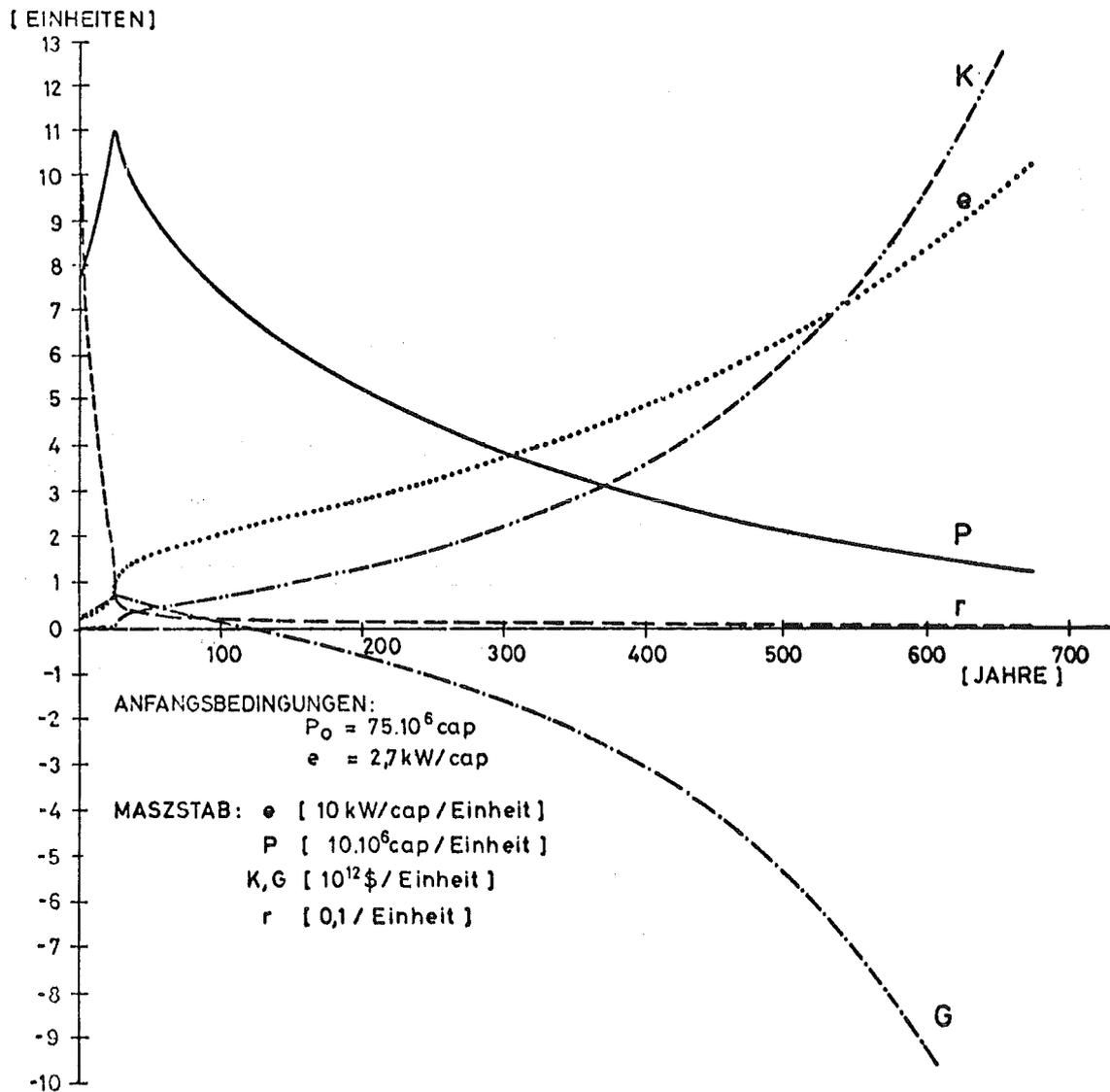


Abb.4: Zeitverhalten der Gesellschaft S

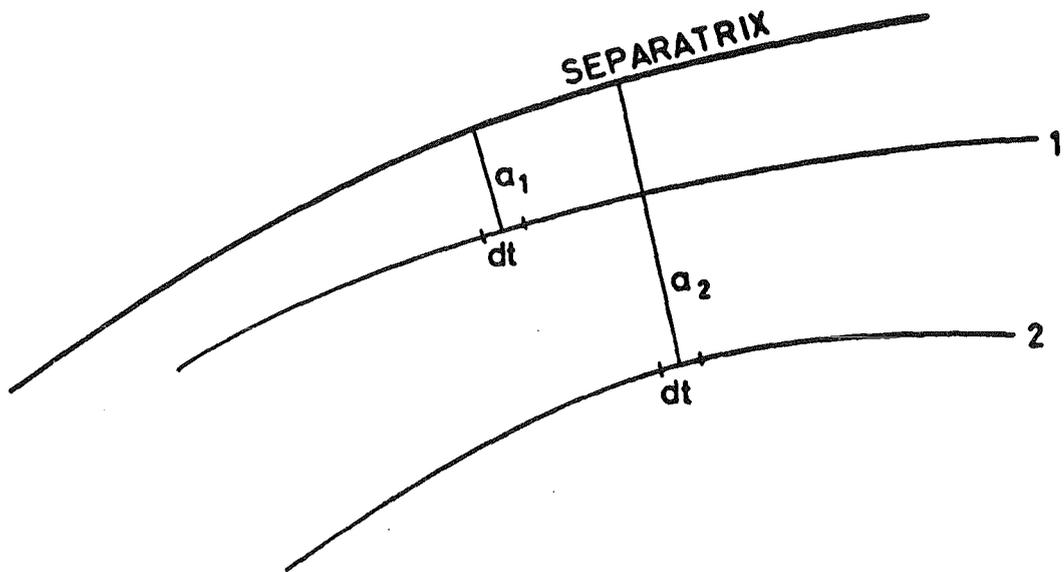


Abb.5: Abstand und Verweilzeit von Linienstücken gegenüber der Separatrix.



Geschlossene Kreisläufe für die Energie- und Rohstofftechnik

R. Schulten

Institut für Reaktorentwicklung  
Kernforschungsanlage Jülich GmbH

Geschlossene Kreisläufe der Rohstoff- und Energietechnik ändern die natürlichen Verhältnisse, d.h. die Umwelt, nicht. Rohstoffgewinnung, Umwandlung, Verwendung, Verbrauch und Rezyklierung sowie die Ablagerung der Abfallstoffe und die Beseitigung der Abfallwärme solcher Prozesse erfolgen bei einem idealen Rohstoffkreislauf so, daß keine langfristigen und wichtigen, vor allem aber keine globalen Änderungen der "natürlichen" Verhältnisse bewirkt werden. Ideale, geschlossene Rohstoffkreisläufe, wie sie uns durch die Natur selbst demonstriert werden z.B. Wasserkreislauf der Erde, CO<sub>2</sub>-Kreislauf der Biosphäre und Atmosphäre u.a., können jedoch offenbar technisch nicht realisiert, sondern nur angestrebt werden. Der Grad der Annäherung an die idealen Verhältnisse eines geschlossenen Kreislaufes ist ein Qualitätsmaß für die Umweltfreundlichkeit des betreffenden technischen Verfahrens.

Die technische Entwicklung der letzten Jahrhunderte hat den Gesichtspunkt der geschlossenen Kreisläufe wenig betrachtet, ja nicht einmal seine Bedeutsamkeit bemerkt. Die starke, exponentielle Steigerung der Produktion in den letzten 50 Jahren erfordert nun eine ständig zu verstärkende Anstrengung, die Technik möglichst weitgehend in geschlossenen oder zumindest in annähernd geschlossenen Kreisläufen zu betreiben. Nur so sind weitere Wachstumsraten möglich und zulässig. Dieser Umstellungsprozeß kann und muß in etwa 50 bis 100 Jahren vollzogen sein und wird unsere Technik in wichtigen Teilen durch Umwelttechnik ergänzen oder verändern und damit auch für die Zukunft ein angemessenes Wachstum ohne Gefahren ermöglichen.

## Die Natur verwendet "geschlossene" Kreisläufe

Die großen geschlossenen Kreisläufe der Natur, z.B. der Wasser- und Wärmehaushalt, arbeiten seit vielen Millionen Jahren unter scheinbar stabilen Bedingungen. Sie haben sich aber, wie wir wissen, im Laufe von Jahrmillionen gebildet, auf Stabilität eingestellt und verändert. Ihre Bedingungen und vielfachen Rückkoppelungen sind kompliziert und in allen Einzelheiten heute noch nicht erkannt. Ihre Erhaltung ist letzten Endes der grundsätzliche Maßstab für die Entwicklungsfähigkeit der Technik und somit für den Wohlstand sowie für die mögliche Anzahl der Erdenbürger. Gewollte oder ungewollte, merkbare Eingriffe in diese natürlichen Kreisläufe erscheinen uns unverantwortlich, da sie die Bewohnbarkeit des Planeten Erde gefährden. Das frühzeitige Erkennen und Verhindern von globalen Gefahren durch diese Eingriffe ist sicher eine der wichtigsten Aufgaben der Wissenschaften.

Der Wasserhaushalt der Erde ist schlechthin eine der wichtigsten Voraussetzungen unseres Lebens. Dieses Geschehen ist außerordentlich kompliziert, u.a. auch durch die Rückkoppelung mit dem Wärmehaushalt der Erde. Es ist leicht einzusehen, daß gerade eine mögliche Störung des Wärmehaushaltes der Erde eine prinzipielle Begrenzung für die Entwicklung der Technik und das Wachstum darstellt. Alle technischen Prozesse wie auch alle Lebensprozesse lassen sich nach einem allgemein bekannten, physikalischen Sachverhalt immer nur so durchführen, daß eine gewisse Abfallwärme, die weiter nicht verwendbar ist, abgeführt werden muß. Bei immer größerem Umfang und immer größerer Anzahl von technischen Anlagen wird jedoch auch die Menge der Abfallwärme immer größer. Während man sie bisher u.a. durch Fluß- oder Seewasser "beseitigte", wird man sie in der Zukunft nur noch an die Luft abgeben können, da das Leben in den Flüssen schon durch eine geringe Temperaturerhöhung empfindlich beeinflußt werden kann. Bei der Abgabe von extrem großen Wärmemengen an die Luft stellt sich natürlich die Frage, ob dadurch nicht die unmittelbare Umgebung einer technischen Anlage geschädigt wird. Darüber hinaus ist die Abgabe von Abfallwärme an die Lufthülle der Erde sicher nicht unbegrenzt möglich, ohne das Klima der Erdoberfläche zu ändern. Von dieser Grenze sind wir glücklicherweise heute noch weit entfernt.

Auch der Kreislauf des Sauerstoffs und Kohlendioxids der Lufthülle erweist sich von fundamentaler Bedeutung. Der heutige Sauerstoff der Lufthülle ist vor vielen Millionen Jahren in der Karbonzeit durch Pflanzenwachstum entstanden, wobei durch den sogenannten Assimilationsprozeß Kohlendioxid der Erdatmosphäre in Sauerstoff umgewandelt wurde. Durch diesen Prozeß sind die Kohle sowie das Erdöl und das Erdgas entstanden. Die Tatsache, daß wir heute in der Luft eine beachtliche Sauerstoffkonzentration haben, ist nur darauf zurückzuführen, daß die damaligen riesigen Wälder nicht verbrannt, sondern durch geologische Ereignisse mit Erdschichten bedeckt und damit konserviert wurden. Solange der Mensch noch keine technischen Anlagen betrieben hat, stand die Produktion von Kohlendioxid durch Pflanzen und Tiere mit der Produktion von Sauerstoff durch die Pflanzen in einem Gleichgewicht. Durch die Entwicklung der Technik, u. a. durch das Verbrennen von Kohle, Erdöl und Erdgas, wird in den letzten Jahrzehnten in steigendem Maße der Kohlendioxid- und Sauerstoffhaushalt der Erde gestört. Obwohl die heute vorliegenden und wahrgenommenen Änderungen noch nicht alarmierend sind, müssen wir aber damit rechnen, daß in einem Zeitraum von höchstens 50 oder 100 Jahren eine wesentliche Reduzierung der Verbrennungsprozesse eingeleitet werden muß, um die natürlichen Verhältnisse der Erde nicht zu stark zu stören.

Die aufgeworfenen Probleme sind sehr ernst zu nehmen. Vor allen Dingen werden sie bald zu der Erkenntnis führen, daß diese Auswirkungen globaler Natur sind, also die gesamte Erdoberfläche betreffen. Da die Kenntnisse über diese sehr komplizierten Zusammenhänge noch sehr unvollkommen sind und heute bezweifelt werden muß, ob diese Zusammenhänge in allen Einzelheiten genügend sicher erkannt werden können, muß gefordert werden, daß jedes technische Wachstum sich an die von der Natur gegebenen Maßstäbe anpaßt.

Die Technik verwendet bis heute vornehmlich nicht geschlossene

Kreisläufe

In der bisherigen Geschichte der Technik konnten ohne Bedenken größtenteils offene Prozesse angewendet werden. Der Einfluß der Abfallstoffe und der Abfallwärme war meist gering und immer nur lokal wirksam, also in keinem Fall von einer globalen Bedeutung. So beziehen sich die heutigen Anstrengungen der Umwelttechnik zunächst nur auf die lokalen Auswirkungen der Technik; das globale Problem ist heute noch nicht aktuell. Alle technischen Verfahren vor allen Dingen aber die Verfahren der Großtechnik für die Massenproduktion müssen aber bald auch unter dem Gesichtspunkt ihrer globalen Auswirkungen betrachtet werden.

Die Verbrennung ist z.B. ein offener Prozeß, bei dem große Mengen von Sauerstoff verbraucht werden und als Abfallstoff Kohlendioxid und eine Reihe von anderen Abfallstoffen an die Luft abgegeben werden. Hier ist u.a. die Verbreitung von Schwefeldioxid zu nennen, die uns zur Zeit stark beschäftigt, die aber eigentlich nur ein lokales Umweltproblem darstellt. Aus heutiger Sicht kann gesagt werden, daß ein ständig steigendes Wachstum der Industrie auf der Basis der fossilen Brennstoffe auf lange Sicht nicht möglich ist. Neben einer vorauszusehenden Klimaveränderung würden auch der Mensch und die Tierwelt weniger und weniger lebensfähig sein.

Offene Kreisläufe werden heute auch in großem Umfang für die Stahlerzeugung und für die Erzeugung von chemischen Produkten angewendet. Viele Industriebetriebe befinden sich jedoch bereits in einer Umwandlungsphase, indem möglichst versucht wird, die flüssigen und festen Abfallstoffe entweder wieder zu verwenden oder sie in eine solche Form überzuführen, für die eine natürliche und ungefährliche Ablagerung möglich ist. Die Elektrizitätserzeugung benutzt bis heute in der Hauptsache Verbrennungsprozesse. Vor allem in diesem Bereich ist dem Problem der Abfallwärme besondere Beachtung zu zollen, da die Umwandlung der chemischen Energie der Kohle und des Erdöls

in Elektrizität mit einem Wirkungsgrad von etwa 30 bis 35% realisiert werden kann. Aber auch die übrige Wärmedarbietung zum Beheizen der Häuser sowie die in der Industrie verwendete Prozeßwärme führen zu einem starken Anfall von Abwärme. Insgesamt erreichen wir heute in der BRD auf die gesamte Energiewirtschaft bezogen einen Wirkungsgrad von etwa 50%. Das bedeutet, daß die Hälfte der Energie aus den Primärrohstoffen als Abfallwärme an die Außenwelt abgegeben wird, ohne eine Nutzung zu erfahren. Hier liegt eine große Möglichkeit des Einsparens des Energieverbrauchs.

Andere wichtige offene Kreisläufe, die in der Technik bis heute verwendet werden, sind im Bereich der Rohstoffverwendung und -verarbeitung zu nennen, deren Abfallstoffe bisher in die Flüsse und das Weltmeer geleitet wurden. Vom heutigen Standpunkt aus gesehen ist man sich mehr und mehr darüber im klaren, daß die Gewässer und das Weltmeer als Abfallspeicher auf die Dauer nicht genutzt werden können. Besonders kritisch ist die Frage der Abfallstoffe, die bei der Verwendung der Kernenergie als radioaktive Substanzen anfallen. Über diese Problematik wird noch besonders zu berichten sein. Frühere Vorschläge, das Meer allgemein als Abfallager dieser Stoffe zu verwenden, werden heute als unverantwortlich und unzweckmäßig verworfen.

#### Anpassung von technischen Verfahren an geschlossene Kreisläufe

Die Technik von morgen wird sich mehr und mehr den Prozessen mit geschlossenen Kreisläufen annähern. Die Rohstoffverarbeitung und die Rohstoffanwendung wird entweder eine Abfallverwertung oder aber eine natürliche Ablagerung bedingen. Produkte, die diese Anforderungen nicht erfüllen, werden in der Zukunft zumindest als Massenprodukt auf lange Sicht nicht mehr produziert werden können.

Für viele Arten von Großtechnik sind heute bereits Annäherungen an geschlossene Kreisläufe in dem oben definierten Sinn erreicht oder

vorauszusehen. Aus dem vorausgegangenen etwas düsteren Bild des Verhältnisses der Technik zur Umwelt darf man keineswegs den Schluß ziehen, daß ein angemessenes Wachstum nicht mehr möglich ist. In Wirklichkeit liegt die vielfach lösbare Problematik darin, daß eine fehlende Komponente der bisherigen Verfahren zu ergänzen ist, nämlich die Anpassung der technischen Prozesse an die Umwelt.

In der Energietechnik haben wir in Form der elektrischen Kreisläufe bereits eine ideale Verwirklichung dieser Anpassung erreicht, wenngleich diese Anpassung sich nur auf den elektrischen Teil des Kreislaufs bezieht. Eine Erweiterung und Anpassung der elektrischen Energietechnik ist insofern notwendig, als durch Koppelung mit wärmetechnischen Kreisläufen die Abfallwärme und damit auch die Menge des verbrauchten Brennstoffs erheblich vermindert werden kann. Da heute und wahrscheinlich auch in der Zukunft die größere Menge der Energie für die Wärmeerzeugung und nicht für die Erzeugung von elektrischer Energie verwendet wird, ergibt sich die Möglichkeit, die Wärmeerzeugung mit der elektrischen Energieerzeugung zu koppeln, so daß die Elektrizität weitgehend ein Beiprodukt der sowieso notwendigen Wärmeerzeugung wird. Die Wärme kann in Zukunft von großen Wärmequellen, z.B. von Kernreaktoren, produziert und durch Wärme-Kreisläufe über größere Entfernungen zu mittleren und kleineren Verbrauchern transportiert werden. Möglichkeiten bestehen zum Beispiel darin, die fühlbare Wärme von Kernreaktoren durch heißes Wasser oder durch die Spaltung des Methans mit Hilfe von Wasserdampf in chemische Energie umzusetzen. Das im letzteren Falle entstehende Gemisch aus Kohlenmonoxid und Wasserstoff hat einen höheren Energiegehalt als die Ausgangsprodukte. Das Gasgemisch nach bekannten Verfahren transportiert und am Ort des Energiebedarfs durch einen katalytischen Rekombinationsprozeß wieder in die ursprünglichen chemischen Substanzen, nämlich Methan und Wasser, rückverwandelt werden. Die dabei freiwerdende chemische Energie kann in Form von fühlbarer Wärme an Ort und Stelle genutzt werden. Die rekombinierten Produkte werden dann mit einer Rückleitung zu der Wärmequelle zurückgeführt, so daß ein vollständig geschlossener Kreislauf für die Wärmeübertragung entsteht. Die so übertragene fühlbare Wärme kann am Ver-

brauchsstandort auch für die Koppelung von Stromerzeugung und Wärmedarbietung verwendet werden. Diese Koppelung bedeutet Energieersparnis, indem das obere Temperaturniveau der angebotenen Wärme für die Elektrizitätserzeugung verwendet wird und die Abwärme für die Deckung des Wärmebedarfs dient. Ein solches System, das chemische Energie, hergestellt durch fühlbare Wärme, in einem verzweigten Netz transportiert, kann den größten Teil des Energiemarktes, nämlich die Wärme für die Hausheizung, den Dampf für die technischen Prozesse und Elektrizität, gleichzeitig darbieten. Durch diese Kombination ist aus heutiger Sicht die stärkste Ersparnis auf dem Energiemarkt möglich, die gleichzeitig zu einer Minimalisierung der Abfallwärme führt.

Auch die Zerlegung des Wassers in Wasserstoff und Sauerstoff durch verschiedene technische Prozesse stellt für die Zukunft einen attraktiven Kreislauf dar. Wasserstoff kann aus Wasser durch Elektrolyse gewonnen werden. Es zeichnet sich aber ab, daß auch andere rein chemische Kreisprozesse, die lediglich fühlbare Wärme verwenden, entwickelt werden können, um Wasserstoff und Sauerstoff herzustellen. Sollte diese Entwicklungen zu einem positiven Ergebnis führen, dann könnte Wasserstoff als ein idealer Energieträger universell eingesetzt werden. Die Verbrennung des Wasserstoffs führt wieder zu Wasser, der umweltfreundlichsten chemischen Verbindung. Der notwendige Sauerstoff wird bei der Produktion von Wasserstoff automatisch mitproduziert, so daß auch auf weiteste Sicht eine Beeinträchtigung der Sauerstoffatmosphäre durch eine noch so stark expandierende Energietechnik nicht zu befürchten ist. Aber nicht nur als Energieträger, sondern auch als Rohstoff für eine große Anzahl technischer Verfahren kann Wasserstoff eingesetzt werden.

Allerdings sind auch diese drei hier vorgeschlagenen und beschriebenen Kreisläufe: die Kreisläufe mit der Energieübertragung von heißem Wasser, von chemischer Energie und der Wasserstoffkreislauf mit dem Problem der Abfallwärme behaftet, oder anders ausgedrückt, diese Kreisläufe gestatten zwar eine wesentliche Einschränkung der Abfallwärme jedoch ist eine vollständige Lösung des Problems nicht möglich. Daraus ergibt sich, daß hieraus eine prinzipielle Begrenzung des Wachstums abzuleiten ist.

Bemerkenswert ist, daß in der Öffentlichkeit häufig angenommen wird, daß die Verwendung der Sonnenenergie diese Problematik weitgehend entschärfen oder sogar vollständig eliminieren könnte. Der heute allerdings noch sehr phantastisch anmutende Vorschlag, mit Hilfe eines Erdsatelliten Sonnenenergie in großem Umfang zu gewinnen und sie durch elektromagnetische Wellen im Kurzwellenbereich auf die Erdoberfläche zu leiten, ist jedoch im Hinblick auf die Abfallwärme von dem gleichen Schwierigkeitsgrad wie bei jeder anderen Energietechnik. Auch in diesem Fall wird Energie zusätzlich zu der normalen Sonnenenergiemenge auf der Erdoberfläche freigesetzt. Auch die bis heute noch nicht bekannte Technologie einer Umwandlung von Sonnenenergie in der Äquatorgegend der Erde und die Überleitung dieser Energie zu Ländern der nördlichen Halbkugel führt zu einer ähnlichen Problematik, ebenso z.B. die Ausnutzung der geothermischen Energie, deren Verwendungsmöglichkeiten heute noch nicht geklärt sind.

Aus dem bisher Gesagten muß man wohl die Schlußfolgerung ziehen, daß die bisher verwendeten konventionellen Energieträger und auch die regenerativen Energiequellen keine Lösung des zukünftigen Energieproblems bringen können. Die konventionellen Energieträger sind nicht unbegrenzt vorhanden und können nicht in geschlossenen Kreisläufen verwendet werden. Die regenerativen Energien können aus wirtschaftlichen Gründen nur in einem mäßigen Umfang eingesetzt werden. Es bleibt also nur der Schluß, daß die Kernenergie auf lange Sicht die einzig verfügbare Energie darstellt.

Die chemische Industrie wird sich, wie bereits erwähnt, in immer stärkerem Maße bemühen müssen, ihre Produktion in Form von geschlossenen Kreisläufen einzurichten. Schon heute ist ein chemisches Werk eine weitgehende Verzweigung von Produktionseinheiten, in denen das Abfallprodukt eines Prozesses nach Möglichkeit als Rohstoff für einen anderen Prozeß angewendet wird.

Nicht nur aus Umweltgründen sondern auch aus Gründen der Rohstoffersparnis wird in Zukunft eine starke Tendenz bestehen, alle Rohstoffe im Kreislauf zu verwenden. Allerdings ist vorauszusehen, daß

das zu einem höheren Energiebedarf führen wird.

In diese Überlegungen ist auch die Verarbeitung des Mülls mit einzu-  
beziehen. Es wird notwendig sein, den größten Teil des Mülls wieder  
als Rohstoff zugänglich zu machen. Man darf dabei nicht übersehen,  
daß die hierfür erforderlichen Verfahren kostspielig und schwierig  
sind.

Es sind allerdings auch andere Bereiche der Technik bekannt, für  
die nach dem heutigen Stand des Wissens die Entwicklung von ge-  
schlossenen Kreisläufen kaum denkbar ist. Ein Beispiel mag die Ver-  
wendung von Treibstoffen für den Verkehr sein. Bisher ist nur der  
Vorschlag der Verwendung von Wasserstoff als Treibstoff in einem  
geschlossenen Kreislauf gemacht worden, was möglich erscheint, da  
ja die Verbrennung von Wasserstoff in Motoren wiederum als Abfall-  
produkt lediglich Wasser erzeugt. Aber die Handhabung von Wasser-  
stoff, entweder als Flüssigkeit, als Gas oder an Feststoffen ab-  
sorbiert, scheint auf unüberwindliche Schwierigkeiten zu stoßen.  
Vom Standpunkt des heutigen Wissens wird also der Verkehr auch in  
Zukunft voraussichtlich flüssige Kohlenwasserstoffe verwenden wie  
bisher.

Die im Vorangegangenen gemachte Schlußfolgerung, daß nur die Kern-  
energie in den nächsten Jahrhunderten die Bedingungen einer umwelt-  
freundlichen Technik erfüllen kann, bedarf noch einer kritischen  
Betrachtung des Abfallproblems, das sich durch diese neuartige  
Technologie ergibt. Alle denkbaren Verwendungen von Kernenergie  
basieren auf dem Verbrauch von Uran und Thorium für die Spaltreak-  
toren und von Lithium und schwerem Wasserstoff für die Fusionsreak-  
toren. Wie bereits vielfach in der Öffentlichkeit dargestellt, kann  
man wegen des Brutprozesses der Kernreaktoren und der Fusionsreak-  
toren die Vorräte an nuklearen Brennstoffen für viele Jahrhunderte  
vielleicht sogar für Jahrtausende als gesichert ansehen. Unter Brut-  
prozessen verstehen wir dabei die Erzeugung von Kernbrennstoffen  
aus Nichtkernbrennstoffen, den sogenannten Brutstoffen, durch An-  
lagerung von überschüssigen Neutronen.

Im Bewußtsein der Öffentlichkeit entsteht oft der Eindruck, daß die Verwendung der Nukleartechnik im Hinblick auf die Umwelt besonders problematisch ist. Wie in anderen technischen Bereichen, so müssen wir allerdings auch hier einen akzeptablen geschlossenen Kreislauf für die nuklearen Rohstoffe fordern. Das heißt, neben den Produktions- und Verarbeitungsmethoden von Spalt- und Brutstoffen muß die Weiterverarbeitung und Ablagerung aller radioaktiven Stoffe, die bei den Prozessen erzeugt werden, einwandfrei gewährleistet sein. Die erste Kategorie dieser Stoffe, die sogenannten Spaltprodukte, die bei der Kernspaltung des Urans oder anderer Kernbrennstoffe entstehen, werden mit Hilfe von chemischen Verfahren aus den verwendeten Brennelementen des Reaktors ausgeschieden. Es läßt sich zeigen, daß eine etwa vierhundertjährige Aufbewahrung die Spaltprodukte durch radioaktiven Zerfall in einen Zustand versetzt, der im Hinblick auf sein Gefährdungsniveau etwa dem natürlichen Uran entspricht. Nehmen wir also hier wiederum die natürlichen Maßstäbe als Vorbild für die Gefährdung, so erkennen wir, daß eine solche Ablagerung zu einem "natürlichen" Zustand, wenn auch nach einem notwendig langen Zeitraum, führt. Die eigentliche Problematik ergibt sich durch die Produktion der Abfallstoffe einer zweiten Kategorie, der Transurane, die in geringem Umfang als Nebenprodukt bei der Kernspaltung entstehen. Problematisch sind diese Abfallstoffe insbesondere wegen ihrer sehr langen Lebensdauer, die bis zu 10 Millionen Jahre beträgt. Nach dem Stand des heutigen Wissens bietet sich die Möglichkeit an, diese Stoffe in den Kernreaktoren selbst umzuwandeln und sie durch weitere neutronenphysikalische Prozesse letzten Endes vollständig zu spalten. Allerdings ergibt sich in diesem Zusammenhang heute noch eine praktische Schwierigkeit: Etwa 1<sup>o</sup>/oo bis 5<sup>o</sup>/oo der erzeugten Transurane werden aufgrund des nicht ganz vollständigen Trennverfahrens in den Spaltprodukten verbleiben, so daß deren Ablagerung zwar nach einem Zeitraum von 400 Jahren zur Erreichung des natürlichen Zustandes - vergleichbar mit dem Natururan - führt, die langlebigen Abfallstoffe aber dennoch übrigbleiben. Es muß deshalb darauf geachtet werden, daß in Kernspaltungsreaktoren möglichst nur solche Prozesse angewandt werden, bei denen die Erzeugungsrate der schweren Atomkerne möglichst gering ist, um zu

gewährleisten, daß durch deren Anwesenheit in den radioaktiven Abfällen die Radioaktivität des Natururans langfristig nicht wesentlich überschritten wird.

### Schlußfolgerungen

Die Grenzen des Wachstums sind nicht so sehr in der Rohstofftechnik zu finden, sondern die eigentliche, prinzipielle Grenze ist die Bewältigung des Abwärmeproblems. Allerdings ergeben Abschätzungen, daß auf der Erde 10 Milliarden Menschen mit einem Lebensstandard existieren können, der den heutigen Lebensstandard des amerikanischen Menschen noch übertrifft, ohne daß eine Gefährdung der natürlichen Zustände zu befürchten ist.



Die Verminderung des Restrisikos in Druckwasser-Kernkraftwerken

D. Smidt

Institut für Reaktorentwicklung  
Kernforschungszentrum Karlsruhe

Zusammenfassung

Das Restrisiko für das Auftreten einiger schwerer Reaktorunfälle wird in Anlehnung an die Rasmussen-Studie dargestellt. Der Vergleich mit den Verhältnissen in der Bundesrepublik ergibt, daß vor allem wegen der anderen Bauweise der Notkühlsysteme, die eingehend beschrieben wird, Coreschmelzunfälle hier deutlich unwahrscheinlicher werden. Andererseits bedingt die größere Bevölkerungsdichte der BRD im Vergleich zu den USA ungünstigere Standorte und damit schwerwiegendere Auswirkungen hypothetischer großer Unfälle. Im Rahmen der sich daraus ergebenden unterschiedlichen Anforderungen spielt die Sicherheit des Reaktordruckbehälters eine wesentliche Rolle und wird deshalb eingehend diskutiert. Die für das BASF-Kernkraftwerk von der RSK geforderte und von der Kraftwerk-Union entwickelte Berstsicherung wird in diesem Zusammenhang begründet und beschrieben. Sie stellt, jedenfalls für dichtbevölkerte Standorte, einen Beitrag zur weiteren Reduktion des nuklearen Restrisikos dar.

## 1. Einleitung

Als Restrisiko eines Kernkraftwerkes bezeichnet man heute allgemein das Risiko für einen Reaktorunfall, der in seinen Auswirkungen über den schwerwiegendsten Auslegungsstörfall hinausgeht. Für diesen sind bestimmte maximal zulässige Dosisrichtwerte, z.B. 10 rem Ganzkörperdosis nach Entwurf SSVO, Stand 1.1.1974, festgelegt; es geht demnach um das Risiko, in der Folge eines Unfalles diese Grenzwerte zu überschreiten. Als schwerwiegendster Auslegungsstörfall wird der plötzliche Bruch der größten Reaktorkühlmittel-führenden Rohrleitung bei Beherrschung der Folgen durch Notkühlung und Sicherheitsbehälter definiert, obwohl als Ergebnis verbesserter Sicherheitseinrichtungen und Analysemethoden hier die max. zulässigen Dosisrichtwerte nicht erreicht werden.

Auch für Unfälle mit schwereren Konsequenzen wird meist als auslösendes Ereignis das Versagen der druckführenden Umschließung des Reaktorkühlmittels (Kühlmittelverluststörfall KVS) angenommen. Im Zusammenhang damit können dann zusätzlich

- die Notkühlung und der Sicherheitsbehälter gleichzeitig ebenfalls versagen,
- zunächst nur die Notkühlung versagen, später als Folge der damit eintretenden Kernschmelze nach verschiedenen Mechanismen auch der Sicherheitsbehälter,
- die Notkühlung und damit der Kern intakt bleiben, jedoch der Sicherheitsbehälter-Abschluß versagen.

In den ersten beiden Fällen kann, wenn auch im unterschiedlichen Zeitmaßstab, ein wesentlicher Teil des radioaktiven Inventars der Anlage freigesetzt werden; im letzten Fall liegt die Freisetzung immer noch um etwa drei Größenordnungen über dem für den Auslegungstörfall ermittelten Wert. Neben den vom KVS ausgehenden Unfällen ist, wenn man von äußeren Einwirkungen absieht, noch der Fall der Transienten bei Versagen des Abschaltsystems zu untersuchen.

Soweit es sich um echt voneinander unabhängige Vorgänge handelt, kann das Risiko, daß zusammen mit dem KVS zusätzlich Sicherheits-einrichtungen ausfallen, nach probabilistischen Methoden bestimmt werden. Daneben muß aber auch untersucht werden, ob ursächliche Zusammenhänge zwischen den verschiedenen Ereignissen möglich sind. In den folgenden Abschnitten soll die Höhe des Restrisikos für diesen Unfall diskutiert werden. Dabei soll die vor einigen Monaten erschienene "Rasmussen-Studie" (Entwurf) /1/ berücksichtigt werden, in der dieses Thema mit bisher unübertroffener Gründlichkeit untersucht wird. Eines ihrer interessantesten Ergebnisse ist, daß Kernschmelzunfälle mit einer wesentlich größeren Wahrscheinlichkeit auftreten, als im allgemeinen angenommen (z.B.  $6 \cdot 10^{-5}$ /Jahr beim Druckwasserreaktor), daß aber ihre Auswirkungen um 2 bis 3 Größenordnungen geringer als die bisherigen Erwartungen (z.B. /2/) sind. Beide Aussagen bedürfen der Kritik und sind nicht unmittelbar auf die Verhältnisse in der Bundesrepublik übertragbar.

Die zur Verfügung stehende Zeit und der zur Verfügung stehende Raum erlauben keinen der Rasmussen-Studie adäquaten Umfang der quantitativen Analyse; vielmehr kann nur versucht werden, die Zusammenhänge und die Unterschiede deutlich zu machen. Daraus sollen dann diejenigen Maßnahmen begründet werden, die der deutschen Reaktorsicherheitskommission (RSK) als besonders geeignet erscheinen, das Restrisiko weiter zu vermindern, und die auch bereits zu gewissen Unterschieden zwischen der amerikanischen und der deutschen Genehmigungspraxis und der sich daraus ergebenden technischen Ausführung amerikanischer und deutscher Kernkraftwerke geführt haben.

## 2. Ausfallrisiko der Gegenmaßnahmen gegen den KVS

Die beiden erstgenannten Typen schwerer Unfälle enthalten die Kombination des KVS mit dem Versagen der Gegenmaßnahmen. Man kann die KVS dabei in drei Klassen einteilen je nachdem, ob

- ein kleines Leck auftritt, das nicht zu einem Trockengehen des Reaktorkerns führt, sondern durch die verschiedenen Einspeisesysteme weitgehend kompensiert werden kann,
- ein großes Leck (z.B. doppelendiger Bruch einer Hauptkühlmittelleitung) zu einem zeitweisen Trockengehen des Kernes führt, der erst nach dem Druckabbau wieder geflutet wird,
- ein größerer Bruch im Reaktobehälter auftritt, der nicht mehr kühlungstechnisch beherrscht wird.

Die Gegenmaßnahmen versagen (oder kommen nicht zur Wirkung), wenn

- das Leck in der Umschließung des Kühlmittels nach Ort und Größe so beschaffen ist, daß es von der Notkühlung nicht abgedeckt wird,
- der KVS die Notkühlung und weitere Sicherheitssysteme im ursächlichen Zusammenhang außer Funktion setzt,
- menschliches Versagen stark ins Spiel kommt,
- die Sicherheitssysteme im probabilistischen Sinne durch gleichzeitige Fehler an mehreren unabhängigen Komponenten nicht zur Verfügung stehen,
- sie aufgrund nicht ausreichend beachteter physikalischer Sachverhalte falsch ausgelegt sind.

Der erste Punkt betrifft die Art und Weise, wie die Kühlmittelumschließung versagt und wird in Abschn.3 behandelt werden. Die anderen Punkte aber sind ein Problem der Zuverlässigkeit und richtigen Auslegung der Sicherheitseinrichtungen, insbesondere der Notkühlung selbst und ihrer Abhängigkeit von menschlichen Eingriffen.

Tritt der KVS ein, so hat das Notkühlsystem die Aufgabe, den Kern geflutet zu halten, bzw. wieder zu fluten und die Nachwärme kurz- und langfristig abzuführen. Das Sicherheitsbehälter-Sprühsystem hat nach amerikanischer Auffassung die Aufgabe, die Druckabsenkung im

Sicherheitsbehälter zu beschleunigen, Spaltprodukte (insbesondere Jod 131) auszuwaschen und ggf. den Sicherheitsbehälter langfristig zu kühlen. Nach deutscher Auffassung ist nicht unbedingt sichergestellt, ob es diese Funktionen wirkungsvoll erfüllen kann. Im Genehmigungsverfahren wird ihm deshalb kein Kredit gegeben. Schließlich müssen verschiedene Klappen und Ventile geschlossen werden, um den Sicherheitsbehälter gegenüber der Außenwelt zu isolieren.

## 2.1 Notkühlsystem

Ein Notkühlsystem (von insgesamt 4) des von der Kraftwerk-Union (KWU) erstellten Reaktors Biblis A ist in Abb.1 dargestellt. Es besteht aus dem innerhalb des Sicherheitsbehälters stehenden Druckspeicher sowie dem außerhalb aufgestellten Flutbehälter mit der Sicherheitseinspeisepumpe (Hochdruck) und der Nachkühlpumpe, die im Niederdruckzustand das Kühlwasser im Reaktor nachfördert und umwälzt. Ein Nachkühler führt in diesem Zustand die Nachwärme ab. Alle Ventile, die ein Notkühlsystem mit den anderen drei verbinden, sind normalerweise geschlossen. Bei einem kleineren Leck laufen die Sicherheitseinspeisepumpen an und versuchen bei 110 bar das Leck zu kompensieren. Bei einem größeren Leck beginnen, nachdem der Kühlmitteldruck auf 27 bar abgesunken ist, die Druckspeicher über zwei hintereinander geschaltete Rückschlagklappen (7, 8 bzw. 9, 10) mittels komprimierten Stickstoffs Wasser in das Reaktorsystem zu drücken. Inzwischen laufen die Pumpen an; zunächst kommt die (Hochdruck) Sicherheitseinspeisepumpe (2) zur Wirkung; kann sie das Leck nicht kompensieren, tritt die Nachkühlpumpe (1) in Funktion. Die Sicherheitseinspeisepumpe fördert über ein Dreiwegeventil (6), das das Notkühlwasser auf die beiden Stränge verteilt.

Beide Pumpen saugen zunächst aus dem Flutbehälter an; ist dessen Vorrat erschöpft, wird die Nachkühlpumpe auf den Sicherheitsbehältersumpf umgeschaltet. Dazu muß zunächst mindestens eines der beiden Ventile 3, 4 geschlossen werden, um den Flutbehälter abzutrennen, dann ist das Sumpfventil 5 zu öffnen. Auch ein Ansaugen des

Kühlmittels aus dem heißen Strang ist möglich, wenn die motorbetätigten Rückschlagventile 8 und 11 geöffnet werden. Nun ist die langfristige Nachkühlung über den Nachkühler möglich. Bei kleinen Lecks kompensieren die Sicherheitseinspeisepumpen den Kühlmittelverlust. Bei großen Brüchen in der Hauptkühlmittelleitung tragen diese jedoch nichts Wesentliches bei und sind daher für die Funktion der Notkühlung neben den Nachkühlpumpen (Niederdruckeinspeisung) nicht erforderlich.

Jedes der 4 so angeordneten Systeme ist einem der 4 Kühlkreisläufe des Reaktors zugeordnet, und speist je sowohl in die Kühlmittel Eintrittsleitung (kalter Strang) als auch in die Kühlmittelaustrittsleitung (heißer Strang) des Reaktors ein. Nominell hat jedes 50% der für die Notkühlung des Reaktors erforderlichen Kapazität, so daß mindestens 2 Systeme tatsächlich gebraucht werden, um den KVS zu beherrschen. Von den 4 Druckspeichern werden 3 gebraucht, denen man als passiven Komponenten (Behälter, Rohrleitung, Rückschlagklappen) aber eine größere Verfügbarkeit zuordnet als aktiven Komponenten (Pumpen, Ventile). Einer speist ggf. zur Hälfte auf den gebrochenen Strang. Auf die tatsächliche Leistungsfähigkeit wird unten noch eingegangen werden. Die Stromversorgung der Notkühleinrichtungen erfolgt über 4 Redundanzgruppen von Diesel-Generatorsätzen (4x50%).

In verschiedenen Punkten unterscheidet sich dies KWU-Notkühlsystem wesentlich von dem Westinghouse-System (W-System) Surry 1, wie es der Rasmussen-Studie zugrunde liegt.

Das KWU-System ist, einer RSK-Forderung entsprechend, unvermascht, d.h. jedes der 4 Notkühlsysteme der beschriebenen Art ist in allen Komponenten komplett und autark. Es ist außer über normalerweise geschlossene Service-Leitungen nicht mit den anderen Systemen verbunden, "vermascht". Auch die Regel- und Steuerkreise sind unabhängig voneinander ausgeführt. Das W-System Surry 1 (Abb.2) ist dagegen vermascht ausgeführt. Jeder Notkühlkreis ist mit jedem verbunden und hat teilweise Pumpen und Leitungen gemeinsam, so daß bei einem partiellen Ausfall Umschaltungen in einem komplexen System mit

den entsprechenden Fehlermöglichkeiten vorgenommen werden müssen.

Surry 1 ist eine 3-Loop-Anlage. Bei einem großen Bruch der Hauptkühlmitteleitung speisen zunächst die 3 Druckspeicher über je eine eigene Anschlußstelle in die 3 Kühlmitteleintrittsleitungen des Reaktors ein ("Kalte Stränge"). Mindestens zwei (einer speist ggf. wieder auf den gebrochenen Strang) von ihnen werden benötigt. Drei parallelgeschaltete (Hochdruck-) Sicherheitseinspeisepumpen fördern aus einem einzigen Flutbehälter sodann auf eine den Sicherheitsbehälter durchdringende Leitung, die sich auf drei Einspeisestellen in den drei kalten Strängen verzweigt.

Für die langfristige Einspeisung stehen zwei Nachkühlpumpen zur Verfügung, die das umgewälzte Wasser je nach Stellung einer großen Anzahl von Ventilen über sechs Einspeisestellen verteilen können. Hier können, je nach Lage des Bruches, auch die in den heißen Strängen vorhandenen Einspeisestellen benutzt werden. Auch hier ist die Funktion der Sicherheitseinspeisepumpen nur bei kleinen Lecks erforderlich.

Zunächst sollen die bei dieser Anlage ablaufenden Vorgänge eingehender betrachtet werden. Dazu muß zunächst festgestellt werden, daß die Sicherheitseinspeisepumpen während des Betriebes als Hochdruckförderpumpen für den Primärkreis dienen (Volumenregelsystem), wobei normalerweise eine im Betrieb, die beiden anderen im Standby sind. Bei einem Notkühlfall müssen die folgenden Operationen ablaufen:

- Die Ventile 7, 8 in der Ansaugleitung müssen geöffnet werden.
- Die Ventile 19, 20 an den Einspeiseleitungen des Volumenregelsystems müssen geschlossen werden.
- Die nicht in Betrieb befindlichen Pumpen müssen anlaufen.
- Die Ventile 13, 14 müssen geschlossen werden.
- Die Ventile 9, 10, 11, 12 am Borinjektionssystem müssen geöffnet werden.

Dann erfolgt die Einspeisung in die kalten Stränge. Die Einspeisung durch das Niederdrucksystem kann ohne weitere Ventilbetätigungen erfolgen.

Für den Übergang zum Nachkühlbetrieb mit Wasser aus dem Gebäudesumpf müssen die Ventile 21 geschlossen und 15, 16 geöffnet werden (geschieht von Hand). Über die Ventile 24 und 27 kann im Nachkühlbetrieb auch in die heißen Stränge eingespeist werden. Die zur Wärmeabfuhr erforderlichen Nachkühler sind hier jedoch nicht in das Notkühl-, sondern in das Sicherheitsbehälter-Sprühsystem integriert. Sie kühlen das Sprühwasser, das dann von den Nachkühlpumpen aus dem Sumpf des Reaktorgebäudes angesaugt und in den Reaktor gefördert wird. Für die Umwälzung im Sicherheitsbehälter-Sprühsystem stehen 4 Pumpen zur Verfügung, von denen 2 innerhalb und 2 außerhalb (Wartung) des Sicherheitsbehälters aufgestellt sind. Die Nachkühlung funktioniert also nur, wenn die Umwälzung im Notkühlsystem und die Umwälzung im Sicherheitsbehälter-Sprühsystem ausreichend sichergestellt sind. Dazu müssen eine von 2 Nachkühlpumpen und 2 von 4 Sicherheitsbehälter-Nachkühlern einsatzfähig sein. Diese Schaltungsweise erklärt bestimmte Ereignisabläufe der Rasmussen-Studie, bei denen es zur Coreschmelze im Reaktorbehälter kommt, wenn die Sicherheitsbehälter-Nachkühlung versagt, eine zunächst merkwürdig anmutende Ursache-Wirkungs-Verknüpfung.

Die Redundanz der Einspeise- und Nachkühlssysteme ist hier geringer. Fehlerhafte Ventilbetätigungen und Fehler in der Steuerung und Regelung wirken sich nicht nur auf ein Teilsystem, sondern auf das Gesamtsystem aus. Wegen der größeren Komplexität des Systems wird die Analyse auf ursächliche Verknüpfungen (common-mode-Fehler) schwieriger. Die Rasmussen-Studie bewertet die Ausfallwahrscheinlichkeit der Notkühlung mit etwa  $4 \cdot 10^{-2}$  je Bedarfsfall, wovon annähernd  $2/3$  dem Injektionssystem,  $1/3$  dem Nachkühlsystem angelastet werden. Das Betriebsgutachten für die KWU-Anlage Biblis A /3/ nennt dagegen einen Wert von  $2,8 \cdot 10^{-4}$ , also um praktisch zwei Größenordnungen günstiger. Die Begründung für diesen Unterschied stützt sich auf drei Punkte:

1. Die größere Redundanz und geringere Komplexität der unvermaschten deutschen Systeme. Sie wird im einzelnen durch die folgende Gegenüberstellung belegt:

- Bei Biblis A sind von 4 kompletten Systemen 2 für den Not- und Nachkühlbetrieb erforderlich, ferner 3 von 4 Druckspeichern. Bei den neueren KWU-Anlagen ist dem heißen und kalten Strang jedes Loops je ein besonderer Druckspeicher zugeordnet. Beispielsweise kann beim KVS ein System wegen Wartungsarbeiten und ein System durch einen nicht näher spezifizierten Einzelfehler ausfallen. Die Analyse hat gezeigt, daß von den beiden verbliebenen Systemen auch noch eines halbseitig in den gebrochenen Kühlmittelstrang einspeisen darf und dennoch eine ausreichende Funktionsfähigkeit erhalten bleibt. Hier wirkt sich die jeweils doppelte Einspeisung über den kalten und heißen Strang aus, die für die deutschen Systeme charakteristisch ist. Für die Notkühlfunktion müssen nur die Pumpen anlaufen, Ventilbetätigungen sind zunächst nicht erforderlich.
- Bei dem W-System Surry 1 müssen 2 von 3 Druckspeichern wirksam sein. Da einer evtl. in den gebrochenen Strang speist, werden also alle benötigt. Von den 3 Einspeisepumpen werden bei größeren Lecks 2, sonst 1 gebraucht. Wegen der Doppelfunktion der Sicherheitseinspeisepumpen für das Volumenregelsystem müssen im Notkühlfall eine große Anzahl von Ventilbetätigungen zur Umschaltung von der einen auf die andere Funktion vorgenommen werden, die oben im einzelnen genannt worden sind. Die Betriebsvorschrift läßt an den Einspeisepumpen Reparatur- und Wartungsarbeiten bis 24 h zu; in solchen Intervallen ist keinerlei Redundanz vorhanden.

Nach den Ergebnissen der Rasmussen-Studie gehen neben den Einspeisepumpen vor allem die dem vermaschten System gemeinsamen Leitungsteile und Armaturen (Einzelfehler, ein gemeinsamer Flutbehälter, gemeinsame Ansaugleitung mit Armaturen, gemeinsame Leitung mit Armaturen durch die Sicherheitsbehälterwand) und zum Teil auch Doppelfehler mit ihren Ausfallwahrscheinlichkeiten besonders stark in die Systemzuverlässigkeit ein.

2. Einen nennenswerten Anteil an seiner hohen Ausfallwahrscheinlichkeit schreibt Rasmussen der Zerstörung von Notkühleinrichtungen während des KVS durch die Schwungradexplosion zu. Bei bestimmten Bruchlagen könnte das ausströmende Kühlmittel die Hauptumwälzpumpe(n) als Turbine antreiben und bringt sie auf eine derartige Umdrehungszahl, daß das Pumpenschwungrad durch die Zentrifugalkraft auseinanderfliegen könnte. Bei der Anlage Biblis A sind deshalb Einrichtungen vorgeschrieben worden, die in einem solchen Falle das Schwungrad wirksam abkuppeln.
3. Als dominante Ursache für das Ausfallen der Nachkühlfunktion nennt die Rasmussen-Studie menschliches Versagen bei der manuellen Umschaltung vom Injektions- auf Nachkühlbetrieb. In der Tat wird diese Aktion bei den älteren US-Anlagen, zu denen Surry 1 gehört, manuell durchgeführt. Bei neueren Anlagen, ebenso wie bei den deutschen Anlagen, ist diese Aktion automatisiert.

Neben der Ausfallwahrscheinlichkeit der Notkühlung ist schließlich noch kurz die Frage ihrer Unwirksamkeit aufgrund physikalischer Sachverhalte zu diskutieren. Aufgrund nicht bekannter oder nicht hinreichend beachteter Phänomene könnte evtl. das Notkühlwasser den Kern gar nicht erreichen. Die amerikanische Notkühldiskussion der letzten Jahre ging weitgehend um dieses Problem. Auch schienen die sog. "Semiscale Tests" in Idaho Indizien in dieser Richtung zu erbringen, die jedoch auf einer Fehlinterpretation beruhten.

Zwei Effekte könnten die Not- bzw. Nachkühlung vor allem unwirksam machen:

- Eine Deformation der Brennstäbe (Aufplatzen bzw. Aufweiten, sog. "Ballooning"), die eine nicht mehr kühlfähige Coregeometrie zur Folge hat,
- eine Behinderung der Abströmung des Dampfes, der beim Wiederauffüllen des durch den KVS trockengelegten Cores entsteht: Dampfblockade oder "Steam Binding". Die Dampfblockade könnte durch Wasserpfropfen in den Rohrleitungen bewirkt werden und führt zu längerfristig trockenen Bezirken im Core.

Nach den Notkühlanalysen für Biblis A erreichen nur einzelne "heiße" Brennstäbe unter pessimistischen Annahmen in der Spitze Temperaturen von mehr als  $900^{\circ}\text{C}$ . (Ergebnisse des in jedem Falle geforderten "Schadensumfangsberichtes".) Nach den Experimenten sind dabei keine erheblichen Deformationen zu erwarten. Also kann dieser Punkt ausgeschlossen werden.

Das "steam binding" wird vor allem durch die Heißeinspeisung, bei der durch besondere konstruktive Vorkehrungen das Wasser den Kern in feinverteilter Form von oben erreicht (Kondensationswirkung), stark reduziert. Für die Abströmung des Restdampfes reicht dann nach pessimistischen Annahmen das Leck aus:

## 2.2 Das Sicherheitsbehälter-Sprühsystem

In der Rasmussen-Studie hat das Sicherheitsbehälter-Sprühsystem zwei Funktionen:

- Es soll Spaltprodukte auswaschen und den Sicherheitsbehälter kühlen. Dadurch wird verhindert, daß selbst bei einem durch Versagen der Notkühlung geschmolzenen Core nicht durch Wasserstoffbildung (und Verbrennung) und/oder durch  $\text{CO}_2$ -Bildung (aus dem Beton) der Sicherheitsbehälter durch Überdruck versagt.
- Es übernimmt durch seine Nachkühler die Wärmeabfuhr aus dem Notkühlsystem (Eigenschaft von Surry 1).

Da das Notkühlsystem bei Rasmussen eine verhältnismäßig hohe Ausfallwahrscheinlichkeit hat, ist das Sicherheitsbehälter-Sprühsystem von besonderer Wichtigkeit, um die Folgen eines Core-Schmelzunfalls in möglichst wenig schädliche Richtung zu lenken. Am wenigsten schädlich in diesem Sinne ist ein langsames Durchschmelzen durch den Sicherheitsbehälterboden (bei Rasmussen als  $\epsilon$  bezeichnet) im Gegensatz zu einem Sicherheitsbehälterversagen durch Überdruck ( $\gamma$ ) und ( $\delta$ ) oder gar durch eine Dampfexplosion im Reaktordruckbehälter ( $\alpha$ ).

Die Ausfallwahrscheinlichkeit des Sicherheitsbehälter-Sprüh- und Kühlsystems ergibt sich in der Rasmussen-Studie etwa zu  $10^{-4}$  je Bedarfsfall. Im Vergleich dazu ist die Sicherheitsphilosophie der in der BRD genehmigten Anlagen ganz auf die Funktionsfähigkeit des Notkühlsystems zugeschnitten und verlangt von diesem eine sehr geringe Ausfallwahrscheinlichkeit. Es erschien in der dichtbevölkerten BRD wenig sinnvoll, es überhaupt auf eine Core-Schmelze ankommen zu lassen, solange es noch bessere technische Gegenmaßnahmen zu ihrer Verhinderung gibt. Das Sicherheitsbehälter-Sprühsystem wird damit reduziert auf die Funktion der Spaltproduktauswaschung und der Kurzzeitkühlung zur Druckabsenkung. Die für die Langzeitkühlung des Sicherheitsbehälters erforderlichen Wärmeaustauscher sind fortgefallen. Sollte es dennoch doch zu einer Coreschmelze kommen, so verschiebt sich die Wahrscheinlichkeit der Folgeereignisse stärker in Richtung auf die schwerwiegenden  $\alpha$ ,  $\gamma$ ,  $\delta$ . Es wird in Abschn.4 untersucht werden, inwieweit an dieser Stelle eine Verminderung des Restrisikos möglich ist.

### 2.3 Versagen der Sicherheitsbehälter-Abschlußfunktion

Ein Sicherheitsbehälter ist kein völlig passives System, vielmehr müssen beim KVS aktive Systeme (Klappen, Ventile) den Abschluß bewirken. Die entsprechenden Betätigungsorgane sind redundant ausgeführt. In /4/ wird für den Druckwasserreaktor Stade eine Ausfallwahrscheinlichkeit für den Sicherheitsbehälterabschluß von  $8 \cdot 10^{-3}$  (davon  $3 \cdot 10^{-3}$  für bodennahe Freisetzung) ermittelt. In der Folge wurde die Zuverlässigkeit der Konstruktion vor allem durch Verkleinerung der Lüftungsklappen deutlich erhöht (Funktion nur noch die Unterdruckhaltung, kein Luftwechsel mehr).

### 3. Risiko und Auswirkungen sehr schwerer Unfälle

#### 3.1 Ergebnisse der Rasmussen-Studie und deren Bewertung

Nach der Rasmussen-Studie werden mit überwiegender Wahrscheinlichkeit Unfälle mit großer Auswirkung auf die Umgebung durch den KVS in Verbindung mit anderen Ausfällen von Sicherheitseinrichtungen verursacht. Der andere mögliche Auslöser, nicht beherrschte Leistungstransienten, tritt dagegen zurück. Für den Druckwasserreaktor werden sieben hinsichtlich ihrer Auswirkungen über den Auslegungsstörfall hinausgehende Klassen von Unfällen (Freisetzungsklassen) definiert:

- Die gefährlichste Freisetzungsklasse, PWR-1, wird z.B. durch eine Coreschmelze im Reaktordruckbehälter bewirkt, die über eine Dampfexplosion diesen zerstört, wobei ein Sprengstück den Sicherheitsbehälter penetriert. Die Freisetzung von 80% der Edelgase, 60% der Halogene und beträchtlichen Anteilen anderer Spaltprodukte beginnt 1,5 Stunden nach dem Unfall und dauert 0,5 Stunden (Zeitdauer für die Kernschmelze).
- Die ungefährlichste Freisetzungsklasse der großen Unfälle, PWR-7, ist das Durchschmelzen des Cores durch den Sicherheitsbehälter, wobei  $2 \cdot 10^{-3}$  der Edelgase,  $1 \cdot 10^{-4}$  der Halogene und entsprechend kleine Anteile der anderen Spaltprodukte freigesetzt werden. Die Freisetzung beginnt erst nach 10 Stunden und dauert 10 Stunden.

Zwei weitere Klassen 8 und 9 betreffen den Auslegungsstörfall. Alle anderen Unfalltypen gruppieren sich dazwischen und sollen hier nicht im einzelnen diskutiert werden.

Die Gesamthäufigkeit für den PWR-1 beträgt  $7 \cdot 10^{-7}$ /Jahr mit einer Schwankungsbreite von einer Größenordnung. Ein großer Anteil zu dieser Freisetzungsklasse mit  $4 \cdot 10^{-7}$ /Jahr entfällt auch auf den sog. "Interfacing System LOCA" (Loss of Coolant Accident), bei dem die Rückschlagklappen der Sicherheitsbehälter-Durchdringungen des Notkühlsystems versagen und der KVS direkt nach außerhalb des Sicherheitsbehälters erfolgt. (Die Studie zeigt, daß durch Überwachungs-

maßnahmen das Risiko für diesen Unfall wesentlich vermindert werden kann, eine in der BRD übliche Maßnahme. Außerdem wirkt sich auch hier das Vorhandensein von 4 unabhängigen, unvermaschten Notkühl-systemen vorteilhaft aus.) Mit  $9 \cdot 10^{-8}$ /Jahr tragen die Transienten bei, der Rest entfällt auf den KVS durch Bruch im Primärkreis. Für den PWR-7 beträgt die Gesamthäufigkeit  $6 \cdot 10^{-5}$ /Jahr und ist praktisch ausschließlich auf den KVS durch Leitungsbruch (vor allem kleiner Bruch) zurückzuführen, bei dem das Notkühl-system versagt. Verwendet man die genannte Ausfallwahrscheinlichkeit  $4 \cdot 6 \cdot 10^{-2}$  je Bedarfsfall für das Notkühl-system und Bruchhäufigkeiten von  $10^{-3}$ /Jahr für kleine,  $10^{-4}$ /Jahr für große Brüche, so kommt man durch Multiplikation einfach auf die genannte Gesamthäufigkeit. Man kann verallgemeinern aus der Rasmussen-Studie folgern, daß die Wahrscheinlichkeit, daß eine Coreschmelze zu gefährlicheren Beschädigungen des Sicherheitsbehälters durch Druckaufbau, Wasserstoffverbrennung oder eine Dampfexplosion führt, etwa um 1 bis 2 Größenordnungen geringer ist als für das einfache Durchschmelzen.

Unterstellt man die genannten Zahlenwerte für die Zuverlässigkeit der deutschen Notkühl-systeme, so würde hier die Häufigkeit für den PWR-7 um etwa zwei Größenordnungen niedriger als nach der Rasmussen-Studie liegen, der PWR-1 wäre wegen der anderen Funktion der Sicherheitsbehälter-Sprühsysteme noch etwa eine Größenordnung darunter. Damit wäre ein gewisser Erfolg der hier schon recht früh begonnenen Zuverlässigkeitsuntersuchungen zu verzeichnen, die zu einer Optimierung der Systeme geführt haben.

Die Auswirkungen der Unfälle werden in der Rasmussen-Studie unter Berücksichtigung der Bevölkerungsverteilung durchschnittlicher US-Standorte, der Wahrscheinlichkeit verschiedener Wetterlagen, des thermischen Lifts (bei bodennaher Freisetzung größerer Spaltprodukt-mengen erfahren diese durch Erwärmung einen Auftrieb), der Wahrscheinlichkeit des Aufenthaltes in Gebäuden und der Evakuierung mit 2 Stunden Halbwertszeit berechnet. Abb.3 zeigt das Ergebnis, das erheblich unter den bisher publizierten Werten (z.B. WASH-740) liegt.

Die bisher genehmigten deutschen Standorte haben eine 3 bis 6-fach dichtere Besiedlung, die sich möglicherweise auch auf die Notfallplanungen auswirkt.

### 3.2 Das Druckbehälterbersten

Die Häufigkeit für ein Leck im Reaktordruckbehälter, das von der Notkühlung nicht mehr beherrscht wird, wird in der Rasmussen-Studie mit  $1 \cdot 10^{-7}$ /Jahr angesetzt. Es führt zum PWR-7; für den PWR-1 liegt die entsprechende Häufigkeit fast 4 Größenordnungen darunter. An dieser Stelle ergeben sich zwei Fragen:

- Sind die angegebenen Häufigkeiten vertretbar?
- Sind nicht wesentlich schwerwiegendere Folgen zu erwarten?

Die zweite Frage soll zuerst behandelt werden, da die Antwort sehr rasch möglich ist.

Ein Riß im Reaktordruckbehälter von einer Größe, die durch das Notkühlssystem nicht mehr beherrscht werden kann, ist praktisch immer überkritisch, d.h. er wächst spontan weiter und führt zum Bersten. Die RSK glaubt, im Gegensatz zur Studie nicht ausschließen zu können, daß in diesem Fall auch Sprengstücke den Sicherheitsbehälter penetrieren. Wegen des großen Energieinhaltes des hochgespannten heißen Kühlmittels dürfte dies sogar noch wesentlich wahrscheinlicher sein als bei einer Dampfexplosion im Druckbehälter, die den einzigen derartigen Mechanismus der Rasmussen-Studie darstellt. Da bei letzterer eine Verzögerung von 1,5 Stunden angenommen wird, kann die sofortige Beschädigung des Sicherheitsbehälters beim Bersten des Druckbehälters gefährlichere Auswirkungen haben als PWR-1, der gefährlichste Unfall der Studie. Hier steht, unabhängig von der Wahrscheinlichkeit eines solchen Ereignisses, die deutsche Auffassung im Widerspruch zur Studie.

Die für das Druckbehälterversagen eingesetzte Häufigkeit von  $10^{-7}$ /Jahr wird in /5/ statistisch zu begründen versucht. Eine eingehende Diskussion findet sich auch in der ACRS-Studie /6/. Über den Zeitraum von 1963-1972 wurde für die USA das Verhalten von 5120 nicht-nuklearen Druckbehältern über 22 692 Betriebsjahre dokumentiert. Dabei traten ein unkritischer Fehler und kein kritischer Fehler auf. Diese Statistik wurde außerdem bis 1943 zurückextrapoliert auf dann 68 317 Druckbehälter mit 725 000 Betriebsjahren, wobei nach den Versicherungsunterlagen ebenfalls kein Bersten festgestellt wurde. Alle berücksichtigten Druckgefäße wurden nach ASME, Section I oder Section VIII hergestellt und betrieben. Schließlich wird der besseren Wiederholungsprüfung (vor allem 100% Ultraschallprüfung in einem 10-jährigen Zyklus) Kredit gegeben und führt so mit bestimmten Annahmen über die zeitliche Verteilung der Wahrscheinlichkeitsdichte (Konstanz zwischen zwei Prüfindervallen) durch Extrapolation zu den genannten Zahlen.

Eine Häufigkeit dieser Größenordnung hat zweifellos im Rahmen der Rasmussen-Studie nur eine geringe Bedeutung gegenüber derjenigen von Coreschmelzen-Unfällen. Nach einer persönlichen Mitteilung von Rasmussen müßte die Wahrscheinlichkeit um den Faktor 100 höher liegen, um relevant zu sein. Wird jedoch umgekehrt das Risiko der Coreschmelzen-Unfälle um zwei Größenordnungen reduziert, so wie dies bei den deutschen Anlagen angestrebt wird, so gewinnt auch so, selbst wenn man die Häufigkeit von  $10^{-7}$ /Jahr unterstellt, das Behälterversagen relativ zu den Coreschmelzen-Unfällen an Bedeutung.

Die RSK hat ebenfalls festgestellt, daß die Wahrscheinlichkeit für ein Versagen eines Reaktordruckbehälters außerordentlich gering ist /7/. Neben einem ausgedehnten Qualitätsgewährleistungsprogramm während der Konstruktion und Fertigung stützt sich diese Aussage vor allem auf eine in den letzten Jahren nachdrücklich vorangetriebene Strategie der Wiederholungsprüfungen, die in ihren Anforderungen teilweise (z.B. in der Häufigkeit) über die Anforderungen des ASME-Codes hinausgeht und stellenweise zu Umkonstruktionen an dem Druckbehälter führte. Die wesentlichen Bestandteile dieser Prüf-

strategie sind die Wasserdruckprobe und die Ultraschallprüfung.

Um die Relevanz dieser Prüfverfahren bewerten zu können, sollen einige wichtige Aussagen der elastischen Bruchmechanik referiert werden. Hiernach hängt die Bruchfestigkeit von der Bruchzähigkeit des Materials ab, wie sie z.B. in einem statistischen oder dynamischen Versuch mit einer gekerbten Probe gemessen wird. Die Resultate werden angegeben durch eine Größe  $K_{IC}$ , den kritischen Wert der Spannungsintensität am Grund der Kerbe. Es gibt beträchtliches Beweismaterial dafür, daß die zum Bruch führende kritische Länge  $a_{max}$  eines Anrisses im Material (in der wichtigsten Dimension) bei dickwandigen Stahlteilen hoher Festigkeit durch die Gleichung

$$a_{max} = \text{const} \left( \frac{K_{IC}}{\sigma} \right)^2$$

gegeben wird, wo  $\sigma$  die aufgebrachte Spannung ist. Durch diese Beziehung würde die Größe eines Materialfehlers definiert, der zum Bruch führt. Das Problem ist hier jedoch die Kenntnis des tatsächlichen Spannungszustandes an der Rißspitze /14/.

Es ist besonders wichtig zu bemerken, daß hierdurch lokale Gegebenheiten der Fehlergeometrie, des Materials und des Gesamt-Spannungszustandes einschließlich der Eigenspannungen eine wesentliche Rolle spielen. Die durch  $K_{IC}$  gekennzeichnete Materialzähigkeit hängt von einer ganzen Anzahl von Parametern ab:

- Temperatur
- Neutronenfluenz
- Ermüdung durch lokale thermische Spannungszyklen bis in den plastischen Bereich
- herstellungsbedingte Inhomogenitäten
- mögliche kumulative Wirkung der genannten Einflußgrößen.

Auf diesem Hintergrund gesehen soll die Wasserdruckprobe den Behälter einer stärkeren Beanspruchung, als sie im Betrieb vorkommt, unterwerfen: Der Druck ist höher und die Temperatur ist niedriger.

Dadurch werden die Spannungen höher und jedenfalls für "gesundes Material" die Bruchzähigkeit geringer.

Die Ultraschallprüfung ist zu einem sehr wirksamen Instrument entwickelt worden. Bei der üblichen sog. Einkopfmethode wird ein Ultraschallimpuls ausgesendet und bei Vorhandensein eines Fehlers nach entsprechender Laufzeit das rückgestreute Signal empfangen, dessen Intensität nicht nur von der Größe sondern auch von der Orientierung des Fehlers abhängt. In der BRD wird zusätzlich die Verwendung der Tandemtechnik (Abb.4) gefordert. Hier wirkt ein Kopf als Sender, der andere empfängt auf dem gezeichneten Wege das Signal. Je nach dem Abstand der beiden Köpfe wird eine bestimmte Tiefenzone erfaßt. Für Fehler senkrecht zur Oberfläche, die auch senkrecht zur Hauptspannungsrichtung stehen und darum besonders gefährlich sind, gelangt nicht ein gestreutes, sondern ein reflektiertes Signal zum Empfänger und macht daher hier die Methode besonders empfindlich. Die RSK-Leitlinien fordern eine Empfindlichkeitskalibrierung auf der Basis eines idealisierten Fehlers von 3mm Durchmesser für die Einkopfmethode, 10 mm Durchmesser für die Tandemmethode /8/. Die Erfüllbarkeit dieser Forderungen wurde im Grundsatz erstmals an der Anlage Biblis A (1973/74) demonstriert. Durch die fernbediente Führung der Meßköpfe ist allerdings eine größere Starrheit der Fahrweise bedingt und störende Einflüsse (wie z.B. Abweichungen von der Planparallelität der Oberflächen) können nicht so flexibel kompensiert werden, wie bei der Prüfung von Hand, wo der Prüfer ein Fehlersignal durch Veränderung der Stellung der Meßköpfe optimieren kann. Es konnte jedoch statistisch gezeigt werden, daß bei typischen Druckbehältern diese Störungen die zugrunde gelegten US-Anzeigen der 10 mm-Fehler nur mit etwa 3% Wahrscheinlichkeit beeinflussen und zudem durch geeignete Auswerteverfahren kompensiert werden können. Wegen des großen Abstandes zur kritischen Rißgröße wird dies als ausreichend angesehen.

Während so die Ultraschallprüfung die Detektierung vorhandener Fehler erlaubt, können Materialeigenschaften wie  $K_{IC}$  nur durch zerstörende Prüfmethode ermittelt werden und mögliche Veränderungen

während des Betriebes sind in der Wiederholungsprüfung nicht detektierbar. Eingehängte repräsentative Materialproben unter höherem Neutronenfluß erlauben jedoch voreilend die indirekte Erfassung einiger wesentlicher Effekte. Die Wasserdruckprobe ist darüber hinaus allerdings ein Grenztest, der die Materialeigenschaften integral mit erfaßt. Allmähliche Veränderungen werden durch die Einhängeproben der Tendenz nach erkannt werden.

Auf diesem Hintergrund, der die Sicherheit der Druckbehälter belegt, sollen aber doch einige kritische Anmerkungen zu dem in der Rasmussen-Studie benutzten Wert  $1 \cdot 10^{-7}$ /Jahr gemacht werden. Die zugrunde liegende Statistik ist wegen der geringen Zahl der betrachteten Ereignisse schlecht. Der zu erwartende Schwankungsbereich ist groß. Die Annahmen über die zwischen zwei Prüfzyklen konstanten Verteilungsfunktionen, die hier eingehen, sind durch nichts belegt. Ein Behälter, dessen Zähigkeit durch verschiedene Einflüsse in Teilbereichen mit der Zeit abnimmt, dürfte sogar ziemlich sicher ein anderes Verhalten erwarten lassen. Gerade das macht auch die Extrapolation einer Statistik über 10 Jahre auf die 40 Betriebsjahre eines Reaktorbehälters problematisch und macht die Information aus den Einhängeproben so bedeutsam. Die benutzte Statistik bezieht sich auf Druckbehälter aus anderen Stählen und deshalb auch unter anderen Spannungsverhältnissen. Während hier für Druckbehälter mit gleicher Bauart und Verwendungszweck Stähle verhältnismäßig geringer Festigkeit üblich waren, werden Reaktorbehälter aus durch Legierung zu höherer Festigkeit gezüchteten Stählen gefertigt. In den konventionellen Druckbehältern dieser Bauart sind dementsprechend geringere Spannungen zulässig und die bruchmechanisch kritischen Risse mußten schon darum weit größer sein. Auch die geringeren Wandstärken (Leckvor-Bruch-Kriterium) der konventionellen Behälter machen die Übertragbarkeit etwas problematisch. In Europa waren legierte Stähle höherer Festigkeit auch früher schon eingesetzt. Die Praxis zeigt hier durchaus Versagensfälle /9, 10/.

Da es eine echte und in jeder Hinsicht übertragbare Reaktordruckbehälterstatistik noch lange nicht geben wird, könnte die Zuver-

lässigkeit der Behälter nur auf indirektem Wege quantifiziert werden. Dazu müßten u.a. Wahrscheinlichkeiten bestimmt werden, daß

- eine Störung bestimmter Größe tatsächlich auftritt
- eine Störung bestimmter Größe zum Bruch führt
- eine Störung bestimmter Größe detektiert wird
- die Druckprobe den gefährlichsten Belastungszustand des Behälters ergibt (Wärmespannungen werden hier ja nicht richtig simuliert)
- lokale Änderungen der Zähigkeit innerhalb spezifizierter Grenzen bleiben
- Risse nicht zwischen zwei Prüfperioden unkontrolliert wachsen (z.B. auch durch Kumulation der verschiedenen Versprödungsmechanismen).

Ansätze zu einer solchen Wahrscheinlichkeitsbetrachtung haben Jordan und O'Neil /11/ gemacht. In einer entsprechenden Fehlerbaumanalyse spielen die von Menschen gewährleistete Qualitätsprüfung und die damit gegebene Möglichkeit menschlichen Versagens eine bedeutendere Rolle als bei der mehr gebräuchlichen Analyse automatisierter Systeme. Auch werden gelegentlich neue Erkenntnisse bedeutsam, wie die Entdeckung der Zähigkeitsabnahme in Verbindung mit Gefügelockerungen und Mikrorißbildung in der durch die Schweißnähte wärmebeeinflussten Zone durch Kußmaul /10/. Obwohl gezeigt werden kann, daß das Risiko gering ist, ist eine Quantifizierung nur in einem großen Spielraum möglich.

Die RSK glaubt, daß im Zusammenhang mit dem Druckbehälterversagen eine weitere Reduzierung des Restrisikos möglich und unter gewissen Umständen sinnvoll ist. Die Auswirkungen eines Druckbehälterversagens sind besonders schwerwiegend und der Druckbehälter ist das einzige bedeutsame Bauteil, das nicht durch redundante und/oder diversitäre Einrichtungen abgesichert ist. Die Fertigung in wachsender Stückzahl an teilweise über die ganze Welt verstreuten Fabrikationsanlagen stellt ständig wachsende Anforderungen an die Organisation und Qualität der Fertigungsüberwachung. Daneben ergeben sich auch betriebsökonomische Probleme. Die Zahl der erforderlichen Prüfer wächst ständig und wird noch erhöht durch die Begrenzung der Dosisbelastung. Dadurch können Engpässe entstehen, die zu übermäßigen

Stillstandzeiten zwingen. Das Vorhandensein zusätzlicher Sicherheitseinrichtungen könnte auf lange Sicht hier eine gewisse Entspannung bringen.

#### 4. Die weitere Verminderung des Restrisikos

Die unter dem Stichwort "entmaschtes Notkühlsystem" zusammengefaßten Maßnahmen zur Erhöhung der Zuverlässigkeit des Notkühlsystems haben, wie gezeigt, einen wesentlichen Beitrag zur Reduzierung des Restrisikos geleistet. Weitere Verbesserungen sind prinzipiell in zwei Bereichen möglich:

- "nach" dem Notkühlsystem durch weitere Maßnahmen zur Folgenbegrenzung nach dessen Versagen,
- "vor" dem Notkühlsystem durch Reduktion der Versagenswahrscheinlichkeit und/oder der Versagensgröße für die Umschließung des Kühlmittels.

Auch die Kapazität und Wirkungsweise der Notkühlssysteme könnte noch weiter verbessert werden (zusätzliche Druckspeicher, verbesserte Einspeisung u.a.).

##### 4.1 Folgenbegrenzung nach Versagen (oder Unwirksamkeit) des Notkühl-systems

Obwohl ein KVS mit Versagen oder Unwirksamkeit des Notkühlsystems sehr unwahrscheinlich ist, könnte man Maßnahmen zur Folgenbegrenzung vorsehen.

Als erstes wäre eine Ertüchtigung des Sicherheitsbehälter-Sprühsystems möglich; bei den deutschen Anlagen etwa durch Erhöhung der Kapazität und Ergänzung durch Kühler, vor allem dann, wenn der Standort ungewöhnlich ist.

Eine aufwendigere Lösung wäre der Einsatz eines "Core-Catchers", also einer Einrichtung, die speziell auf das langfristige Halten eines geschmolzenen Cores ausgelegt ist. Ein Forschungsprogramm zu diesem Thema ist im Gange /12/. Die Schwierigkeit bei derartigen Konstruktionen ist die Beherrschung einer komplexen, fast nicht durch Experimente abstützbaren Physik, da wärmeerzeugende Schmelzen nur schwer zu simulieren sind. Erschwerend kommt die Gefahr von Dampfexplosionen infolge der Wasserstoffbildung hinzu.

So erscheint es zweifelhaft, ob das Risiko durch solche Maßnahmen um mehr als ein bis zwei Größenordnungen reduziert werden kann und ob eine solche Reduktion noch ausschlaggebend ist. Eine gezielte Verbesserung der Notkühlsysteme scheint im Vergleich dazu die sinnvollere Maßnahme zu sein.

#### 4.2 Reduktion von Versagenswahrscheinlichkeit und/oder Versagensgröße der Kühlmittelumschließung

An dieser Stelle sieht die RSK wesentlich wirksamere Möglichkeiten zur Verminderung des Restrisikos. Erste Überlegungen begannen im Jahre 1969 im Zusammenhang mit dem Antrag der Badischen Anilin- und Sodafabrik (BASF), auf ihrem Werksgelände in Ludwigshafen ein Kernkraftwerk, das vor allem Prozeßdampf erzeugen sollte, zu errichten. Der Standort, dessen Bevölkerungszahl im 10 km-Umkreis das etwa Fünffache derjenigen üblicher Standorte in Deutschland und das 15-fache des der Rasmussen-Studie zugrunde liegenden US-Standortes beträgt und bei dem Evakuierungsmaßnahmen in hinreichender Zeit undurchführbar erscheinen, schien besondere Maßnahmen zur Reduktion des Restrisikos zu erfordern.

Als geeignete Möglichkeiten standen im Vordergrund der Betrachtung - ein verbessertes Sicherheitsbehälter-Sprühsystem, das nach dem KVS eine rasche Druckreduktion erlaubt. Damit werden die Wirksamkeit des Sicherheitsbehälters erhöht und der Einfluß eventueller

Undichtigkeiten reduziert. Nach der Rasmussen-Studie wäre dies ein sinnvoller Weg, gegen den jedoch von einigen Seiten Zweifel geäußert werden, deren Überprüfung zur Zeit erfolgt.

Zeitweilig wurde für Druckreduktion sogar ein Eiskondensator in Kombination mit dem üblichen Volldruck-Sicherheitsbehälter vorgesehen,

- ein Spannbeton-Trümmerschutzzylinder, der im Falle eines Druckbehälterberstens die Integrität des Sicherheitsbehälters gewährleisten sollte. Obwohl dadurch eine Coreschmelze nicht vermieden und eine langfristige Penetration des Sicherheitsbehälters nicht ausgeschlossen werden kann, erschien die so bewirkte Risikoverminderung ein lohnenswerter Fortschritt zu sein. In der Terminologie der Rasmussen-Studie wäre ein Störfall schlimmer als der PWR-1 in den PWR-7 abgeschwächt worden und für Katastrophenschutzmaßnahmen wäre Zeit gewonnen.

Die weitere Untersuchung durch KWU und BASF ergab, daß ein einfacher Trümmerschutzzylinder nicht in vernünftigen Grenzen realisierbar ist. Besonders problematisch war die Beherrschung der dynamischen Kräfte und des Druckbehälterdeckels. Die Entwicklung führte schließlich zum Konzept einer Berstsicherung, die den Druckbehälter eng umschließt ("Nullweg-Berstsicherung"). So werden die dynamischen Kräfte reduziert. Die Abströmquerschnitte für das Kühlmittel werden sehr gering (vergleichbar denen beim Bruch der Kühlmittelleitung); damit kann das weitgehende Intaktbleiben des Cores und der Druckbehältereinbauten und damit die langfristige Nachkühlfähigkeit des Kerns nachgewiesen und so die vollständige Beherrschbarkeit des Druckbehälterberstens erzielt werden. In einem weiteren Schritt wurde die Ummantelung dann auch noch auf die Dampferzeuger und die Rohrleitungen also auf das gesamte Primärsystem ausgedehnt. Als wichtige Voraussetzung gilt, daß die Wiederholungsprüfung der druckführenden Teile nicht eingeschränkt werden darf.

Abb.5 zeigt das Prinzip der vorgesehenen Anordnung. Der Reaktor-druckbehälter ist auf dem Boden eines Betonbehälters aufgelagert, der in axialer und Umfangsrichtung mit Spannseilen versehen ist.

Die Auflagerung ist so ausgelegt, daß sie radiale Wärmedehnungen zuläßt. Der Druckbehälterdeckel wird über 32 Pendelstützen abgefangen. Bei Erwärmung des Druckbehälters auf Betriebstemperatur werden die axialen Spannseile vorgespannt, so daß die Axialspannungen in der Druckbehälterwand gegen Null gehen. Der Zwischenraum zwischen Beton- und Stahlbehälter wird durch stahlgekapselte Blöcke aus einem temperaturbeständigen Isolierbeton eng ausgefüllt, die jedoch für eine evtl. erforderliche US-Wiederholungsprüfung von außen ausgebaut werden können.

Die Verbindung zu jedem der 4 Dampferzeuger wird durch ein zweigeteiltes Rohr hergestellt, also ein Rohr, das durch ein horizontal eingeschweißtes Trennblech in einen heißen und einen kalten Strang aufgeteilt wird. Das zweigeteilte Rohr ist von ringförmigen Stahlringen umgeben, die Umfangsspannungen aufnehmen können und für die Wiederholungsprüfung entfernbar oder seitlich um eine Teilung verschiebbar sind.

Die Umwälzpumpe ist gegenüber der üblichen Ausführung auf den Kopf gestellt und in den Boden des Dampferzeugers integriert. Ähnlich wie der Druckbehälter ist auch der Dampferzeuger durch einen Betonbehälter mit Spannseilen umgeben. Axiale Spannungen im zweigeteilten Rohr werden durch Spannseile aufgenommen, die nach Art einer Schlinge um Dampferzeuger- und Druckbehältermantel gelegt sind und ebenfalls durch die Wärmedehnung vorgespannt werden.

Mit der Wärmedehnung des Reaktordruckbehälters schiebt sich auch der Stutzen des zweigeteilten Rohres nach oben, es selbst verlängert sich. Dadurch, daß sich der Dampferzeuger auf einer schiefen Ebene bewegen kann, werden Biegespannungen weitgehend vom zweigeteilten Rohr ferngehalten.

Mit Beschluß vom 9.3.1974 /13/ hat die RSK dieses Konzept für grundsätzlich geeignet erachtet, die für den speziellen Standort geforderte weitere Risikoverminderung zu bringen. Als Vorbedingung für die endgültige Zustimmung hat sie jedoch eine größere Zahl von analytischen und experimentellen Nachweisen gefordert. Da diese einen

aufschlußreichen Einblick in die Problematik einer solchen Neuentwicklung geben, sollen einige besonders wichtige von ihnen beschrieben werden.

#### 4.2.1 Betriebliche Belastung der Reaktorkomponenten und der Berstsicherung

Die Berstsicherung bewirkt teilweise eine Einspannung der Reaktorkomponenten. Gegenüber der üblichen Bauweise wird die Spannungsverteilung in den druckführenden Teilen verändert. Die völlig andere Massenverteilung bewirkt u.U. auch Änderungen im Schwingungsverhalten. Deshalb wurden u.a. analytische und teilweise experimentelle Nachweise gefordert über

- die Belastung von Druckbehälter, Dampferzeugern und zweigeteiltem Rohr durch Wärmedehnung, Temperaturverteilung, Einspannverhältnisse und Schwingungen,
- Inspizierbarkeit von Druckbehälter und Berstsicherung (insbesondere Spannseile), Auswechselbarkeit der Isolierbetonteile und der Berstsicherungskomponenten auch im Langzeitbetrieb,
- Korrosion, Maßhaltigkeit, Formbeständigkeit der Berstsicherungskomponenten (Konstanz des Spaltes zwischen Berstsicherung und Druckbehälter),
- Leckageüberwachung,
- Verhalten der Umwälzpumpen,
- Verhalten der Auflagerung (Rollenlager) des Dampferzeugers.

#### 4.2.2 Verhalten beim KVS

Es soll der Nachweis geführt werden, daß mit der Berstsicherung alle Brüche der druckführenden Umschließung bis hin zum plötzlichen

Bersten des Druckgefäßes im gleichen Sinne beherrscht werden, wie der übliche Auslegungsstörfall, also durch die Notkühlung. Neben der Größe der möglichen Abströmquerschnitte spielt die Ermittlung der dynamischen Belastungen dabei eine besondere Rolle. Dabei geht es einerseits um stoßartige Belastung auf die Berstsicherung und auf den Druckbehälter, andererseits um die Belastung der Behältereinbauten und die Erhaltung einer nachkühlfähigen Kerengeometrie. Einige wichtige Punkte sind

- die Stoßbelastung zwischen Druckbehälter und Berstsicherung,
- die Erhaltung der Kernintegrität,
- das dynamische Verhalten der Spannseile und Pendelstützen,
- die Temperaturbelastung der Berstsicherung,
- Belastungen beim Bruch des zweigeteilten Rohrs,
- Belastungen beim Bruch des Dampferzeugers
- Effekte beim Bruch nicht berstgeschützter Anschlußleitungen,
- Notkühlung beim Bruch des zweigeteilten Rohrs, also bei evtl. Freilegung von  $2 \times 2$  F.

#### 4.2.3 Einwirkungen von außen

Der Standort im Werksgelände einer chemischen Fabrik macht einen gegenüber den sonstigen Anforderungen /8/ erhöhten Schutz gegen chemische Explosionen erforderlich. Die veränderte Bauweise mit sehr großen aneinander gekoppelten Massen verändert das dynamische Verhalten bei einem Erdbeben. Schließlich bedarf auch das Sabotageproblem besonderer Aufwendungen.

#### 4.3.4 Gegenwärtiger Stand (1.12.1974)

Ein großer Teil der analytischen Nachweise ist vom Antragsteller bereits eingereicht worden und befindet sich in der Prüfung. Die experimentellen Untersuchungen laufen. Je nach ihrem Ergebnis sollte dann im Jahr 1975 eine Entscheidung gefällt werden.

5.

Der Autor ist den Herren Prof.Dr. A. Birkhofer, LRA Garching, Dr. W. Keller, KWU-Erlangen, Prof.Dr. K. Kußmaul, MPA Stuttgart und Dipl.Ing. A. Müller, GfK Karlsruhe für die kritische Durchsicht des Manuskriptes und zahlreiche Anregungen dankbar.

#### Literatur

1. Reactor Safety Study. An Assessment of Accident Risks in U.S. Commercial Nuclear Power Plants, WASH-1400 (Draft), (August 1974)
2. Report on the Theoretical Possibilities and Consequences of Major Accidents in Large Nuclear Power Plants, WASH-740 (March 1957)
3. Gutachten über die Sicherheit des 1200-MWe-Kernkraftwerkes Biblis, Block A für das atomrechtliche Genehmigungsverfahren, Betriebsgutachten, Band I, TÜV Bayern, März 1974
4. K.H. Lindackers, W. Stoebel, Probability Analysis Applied to Light-Water Reactors: Loss-of-Coolant-Accidents, Nucl.Safety, Vol.14, No.1, p.14-20 (1973)
5. Technical Report on Analysis of Pressure Vessels Statistics from Fossil-Fueled, Power Plant Service and Assessment of Reactor Vessel Reliability in Nuclear Power Plant Service, WASH-1318 (May 1974)
6. Report on the Integrity of Reactor Vessels for Light Water Power Reactors, The Advisory Committee on Reactor Safeguards, USAEC, WASH-1285 (January 1974), Nachdruck in Nucl.Eng.Design 28, 147-195 (1974)

7. Bundesanzeiger Nr. 48, 9.März 1974
8. Bundesanzeiger Nr. 144, 7.August 1974
9. O. Kellermann, H.G. Seipel, Analysis of the Improvement in Safety Obtained by a Containment and by other Safety Devices for Water-Cooled Reactors, IAEA SM-89/8 T.P.P.89
10. O. Kellermann, E. Kraegeloh, K. Kußmaul, D. Sturm, Considerations about the Reliability of Nuclear Pressure Vessels-Status and Reserach Planning, Paper 1-2, Part I, Design and Analysis, 2nd Int. Conf. for Pressure-Vessels Technology, San Antonio, Texas 1-4 Oct. 1973
11. J. Jordan, R.A.O'Neil, Periodic Inspection of Pressure Vessels, Proc.I.Mech.Conference, London (1972)
12. BMFT-Forschungsvorhaben "Coreschmelze"
13. Bundesanzeiger Nr. 116, 28. Juni 1974
14. K. Wellinger, E. Kraegeloh, K. Kußmaul, D. Sturm, Die Bruch-  
gefahr bei Reaktordruckbehältern und Rohrleitungen, Nucl.Eng.  
Des. 20, 215-235 (1972).

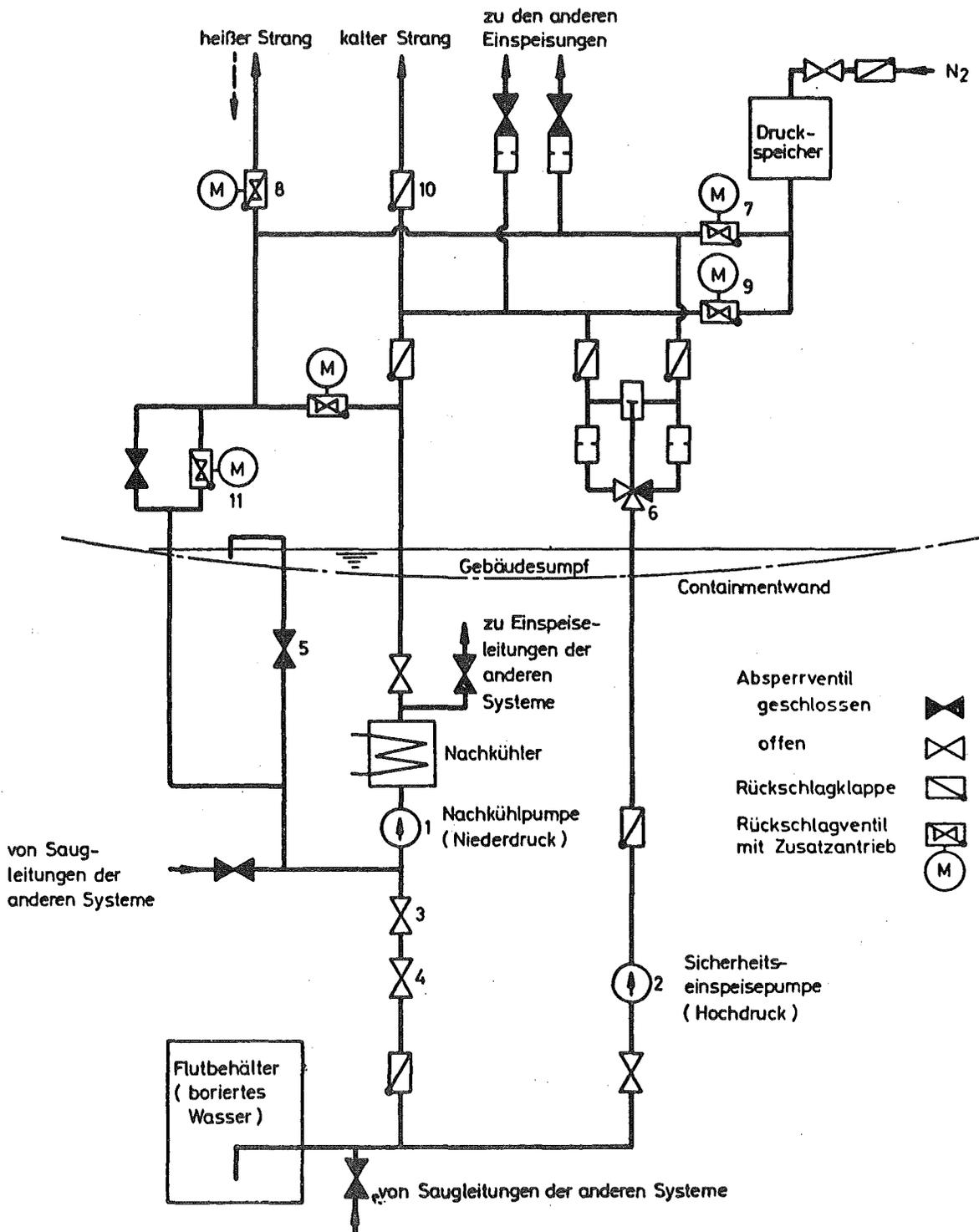


Abb.1: Notkühlsystem der Anlage Biblis A (1 von 4 gleichartigen Systemen).

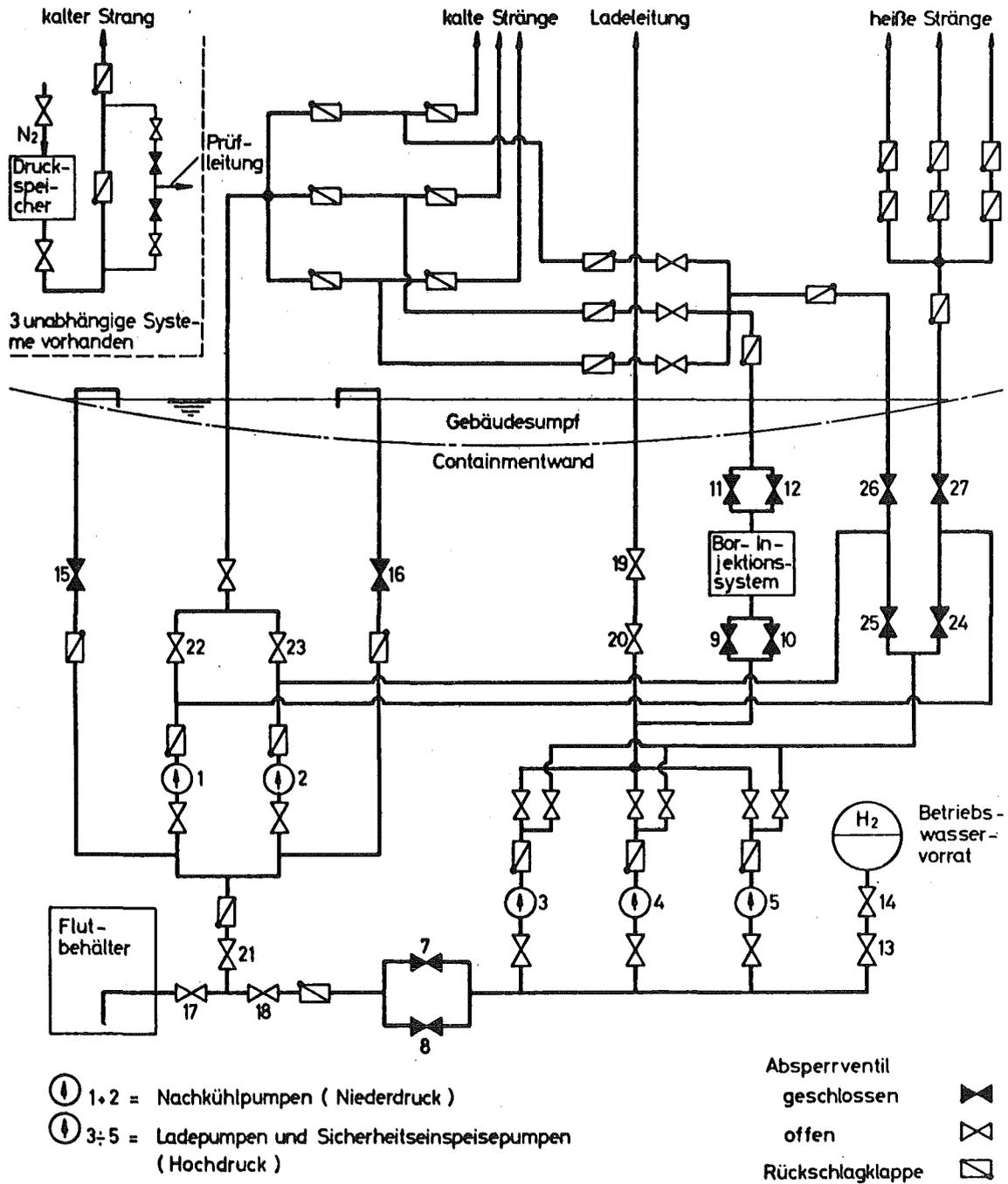


Abb.2: Notkühlsystem der Anlage Surry-1

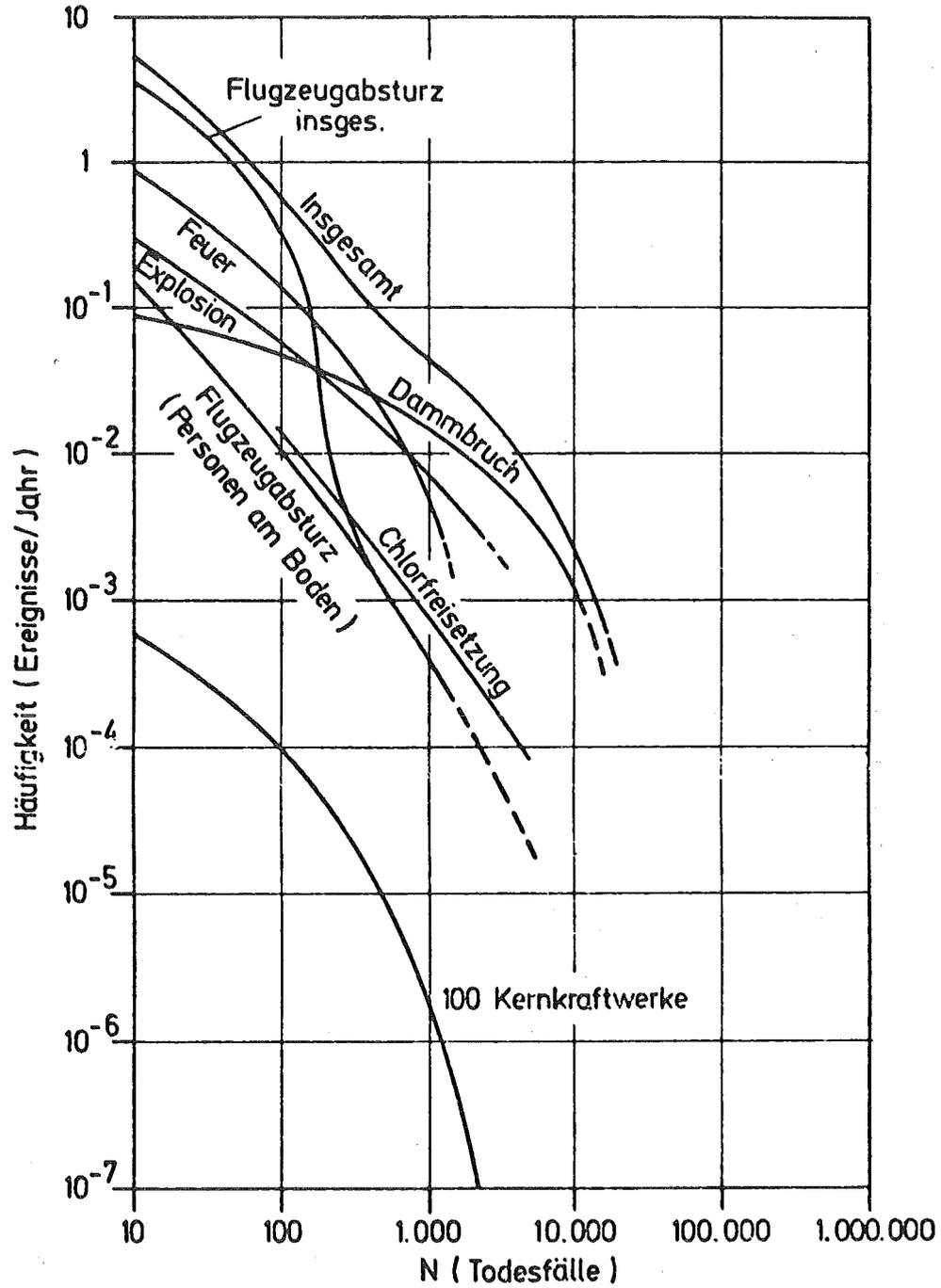


Abb.3a: Häufigkeit von durch Menschen bewirkten großen Unfällen

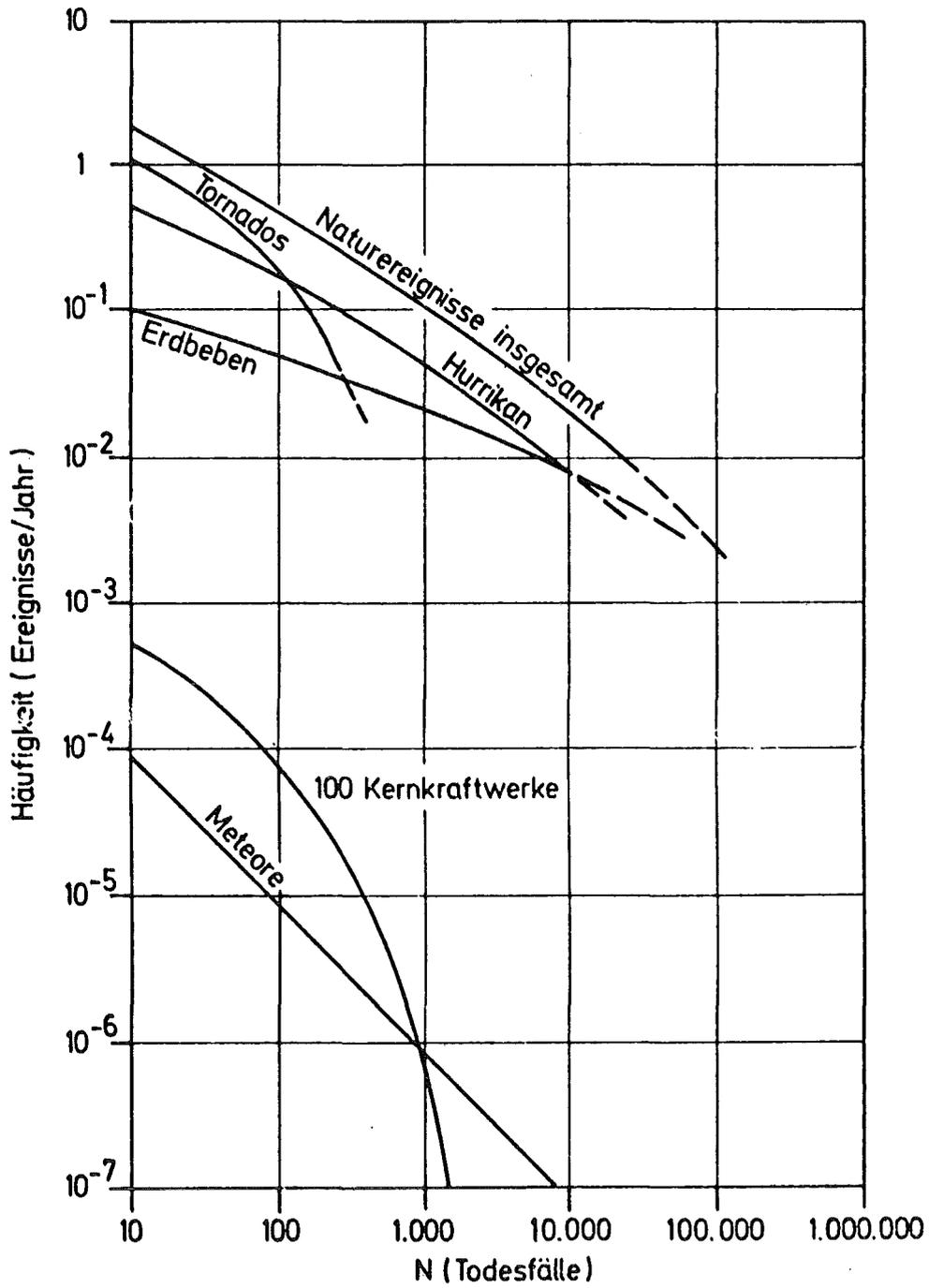


Abb.3b: Häufigkeit von Naturkatastrophen

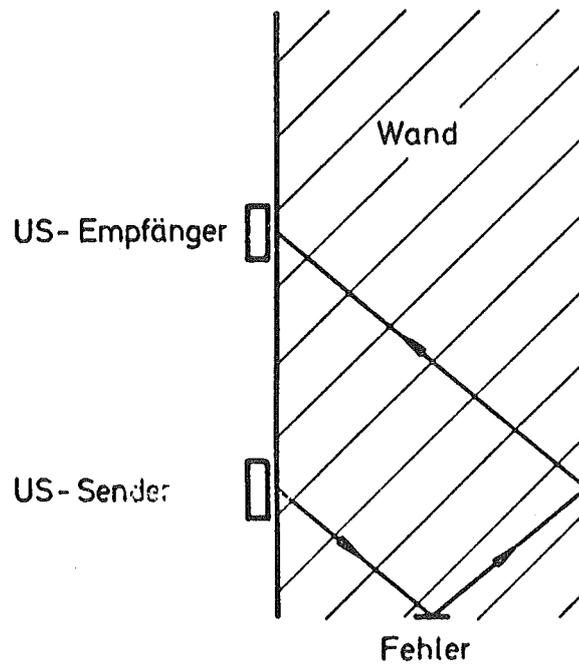


Abb.4: Prinzip der Tandemmethode für  
Ultraschallprüfung.

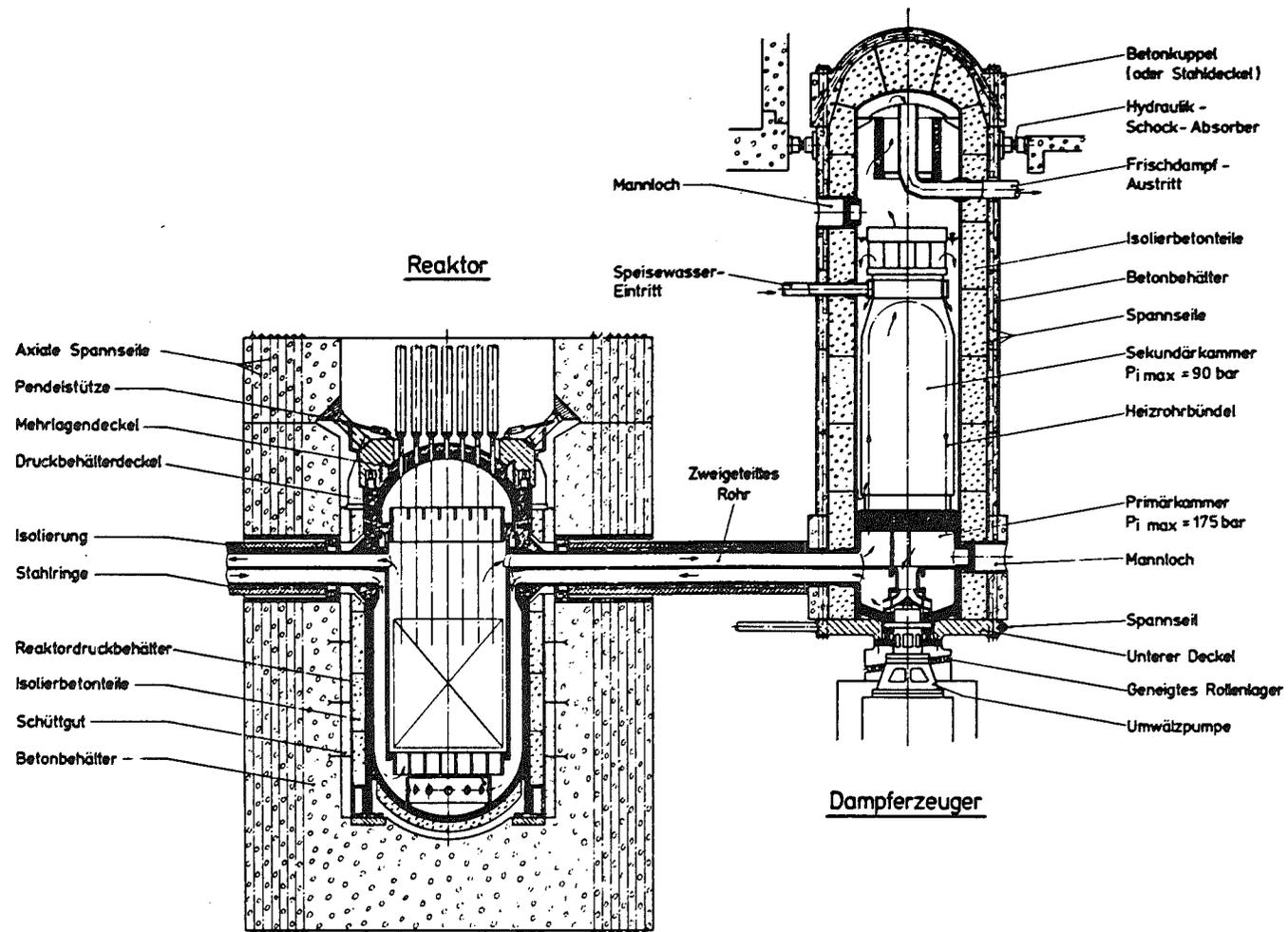


Abb.5: Vereinfachte Anordnung des BASF-Kernkraftwerkes

Spektrometrie schneller Neutronen in der  
Reaktorphysik und Kerntechnik

---

H. Bluhm, G. Fieg, F. Kappler, D. Rusch, H. Werle  
Institut für Neutronenphysik und Reaktortechnik  
Kernforschungszentrum Karlsruhe

I n h a l t

1. Einführung
2. Meßmethoden
  - 2.1.  $4\pi$ -Rückstoßprotonen-Proportionalzählrohre
  - 2.2. Halbleiter-Sandwich-Spektrometer
  - 2.3. Flugzeitmethode und NE 213-Pulshöhenspektrometrie
3. Vergleichsmessungen mit  $^{252}\text{Cf}$ -Spontanspaltungs-Neutronen  
(Standardspektrum)
4. Anwendungen
  - 4.1. Spektren der Spaltneutronen und radioaktiver Neutronenquellen
  - 4.2. Urankugel-Transmissionsmessungen
  - 4.3. Wirkungsquerschnitts-Untersuchungen an Einmaterial-Anordnungen
    - 4.3.1.  $^{238}\text{U}$ -Block
    - 4.3.2. Eisen
    - 4.3.3. Lithium-Kugel
5. Schlußfolgerungen

## 1. Einführung

Mit der Entwicklung schneller Brutreaktoren ab etwa 1960 hat die Spektroskopie schneller Neutronen einen neuen Aufschwung erhalten. Es wurden bereits bekannte Verfahren verbessert und neue Methoden entwickelt.

Viele der ersten Spektrumsmessungen wurden in schnellen Anordnungen durchgeführt, die Leistungsreaktoren relativ ähnlich waren und daher sehr komplizierte Materialzusammensetzungen hatten. Vergleiche mit Rechnungen zeigen i.a. außerhalb der Fehlergrenzen liegende Abweichungen, deren Ursache aber nur in Ausnahmefällen geklärt werden konnte. Man ist daher nach einigen Jahren zunehmend dazu übergegangen, die den Rechnungen zugrunde liegenden Daten und Methoden an - dem jeweiligen Untersuchungsziel speziell angepaßten - Anordnungen zu studieren. Darüberhinaus wurden die für die gesamte Reaktorphysik grundlegenden Spektren der prompten und verzögerten Spaltneutronen neu bestimmt. Für Importance-Messungen in schnellen Reaktoren ist eine genaue Kenntnis der Spektren der verwendeten Neutronenquellen notwendig. Aus diesem Grunde wurden die Spektren einer Reihe verschiedener Neutronenquellen, die auch für andere Anwendungen von Bedeutung sind, mit den verbesserten Methoden ebenfalls neu bestimmt.

Neue Anwendungsgebiete der Spektrometrie schneller Neutronen ergaben sich in den letzten Jahren vor allem im Zusammenhang mit der Untersuchung von Fusions-Reaktoren und in der Medizin durch den zunehmenden Einsatz der Neutronentherapie und nuklearer Herzschrittmacher.

## 2. Meßmethoden

Neutronenspektrometer dienen zur Bestimmung der Energieverteilung des Neutronenflusses. Bei der Flugzeit-Methode wird die Neutronenenergie aus der Zeit bestimmt, die ein Neutron braucht, um eine bestimmte Entfernung zu durchfliegen. Bei den anderen Spektrometern wird die Neutronenenergie aus der Energie geladener Kernreaktions-Produkte über die erzeugte Sekundärladung als Ladungs- bzw. Spannungsimpuls bestimmt. Aus der gemessenen Impulshöhenverteilung  $f(I)$  erhält man, bei bekanntem Zusammenhang zwischen Impulshöhe  $I$  und Energie der Reaktionsprodukte  $E_r$ , die Energieverteilung der Reaktionsprodukte gemäß

$$F(E_r) = f(I) \frac{dI}{dE_r} \quad (2.1)$$

Zwischen der Energieverteilung der Reaktionsprodukte und der des Neutronenflusses  $\Phi(E_n)$  gilt folgender Zusammenhang:

$$F(E_r) = T \cdot N \cdot \int_0^{\infty} \sigma(E_n) \cdot r(E_r, E_n) \cdot \Phi(E_n) dE_n \quad (2.2)$$

$T$  ist die Meßzeit,  $N$  die effektive Anzahl von Targetkernen,  $\sigma(E_n)$  der Reaktionsquerschnitt und  $r(E_r, E_n)$  die Antwortfunktion des Spektrometers für monoenergetische Neutronen.

$r(E_r, E_n)$  hängt von der Art des Spektrometers, von Form und Größe der Detektoren und i.a. auch davon ab, aus welcher Richtung die Neutronen auf den Detektor treffen. Unter gewissen Voraussetzungen über die Form von  $r(E_r, E_n)$  kann mittels (2.2)  $\Phi(E_n)$  aus  $F(E_r)$  berechnet werden. Bei  $^3\text{He}$ - und  $^6\text{Li}$ -Halbleiterspektrometern sind die Antwortfunktionen näherungsweise Deltafunktionen. Aus (2.2) erhält man für diesen Fall

$$\Phi(E_n) = \frac{1}{T \cdot N} \cdot \frac{1}{\sigma(E_n)} F(E_r) \Big|_{E_r=E_n+Q} \quad (2.3)$$

Dabei ist  $Q$  die Reaktionsenergie.

Bei Rückstoßprotonen-Detektoren sind, wegen der Isotropie des Streuprozesses im Schwerpunktssystem, die durch monoenergetische Neutronen hervorgerufenen Rückstoßprotonen im Energieintervall zwischen Null und der betrachteten Neutronenenergie gleichmäßig verteilt. Wenn man zunächst von sekundären Effekten absieht, erhält man bei dieser Form der Antwortfunktionen

$$\Phi(E_n) = - \frac{1}{T \cdot N} \cdot \frac{E_n}{\sigma(E_n)} \frac{dF(E_r)}{dE_r} \Big|_{E_r=E_n} \quad (2.4)$$

Bei Delta-Funktions-ähnlichen Antwortfunktionen wird  $\Phi(E_n)$  also aus der gemessenen Energieverteilung der Reaktionsprodukte  $F(E_r)$  selbst, bei Rückstoßprotonendetektoren dagegen aus der Steigung dieser Verteilung berechnet.

#### 2.1. 4 $\pi$ -Rückstoßprotonen-Proportionalzählrohre

Mit wasserstoffhaltigen Gasen gefüllte Proportionalzählrohre haben seit Beginn der experimentellen Neutronenphysik eine wichtige Rolle als Neutronendetektoren gespielt. Bis 1964 war man jedoch allgemein der Auffassung, daß einfache, für unter allen Winkeln emittierte Rückstoßprotonen empfindliche, 4 $\pi$ -Zählrohre zur Messung der Energieverteilung kontinuierlicher Neutronenspektren ungeeignet seien.<sup>\*)</sup> Diese Auffassung wurde 1964 durch Benjamin et al. /2.1/ widerlegt, der mit kleinen, kugelförmigen Zählrohren differentielle Neutronenspektren schneller Reaktoren

---

<sup>\*)</sup> A.T.G. Ferguson, "Gas Recoil Counters", in "Fast Neutron Physics" (Edts.: J.B. Marion and J.L. Foulter), 1960, Part I, S.207: "Since in a simple counter, monoenergetic neutrons give rise to a pulse-height spectrum extending uniformly from zero pulse height to a maximum, such a counter is of little use for the interpretation of complex spectra".  
K.H. Beckurts, K. Wirtz, "Neutron Physics", 1964, S.60: "End and wall effects play an important role in this (typical proportional) counter and the pulse height spectrum deviates sharply from the simple rectangular form. For this reason, the determination of unknown neutron spectra is hardly possible".

im Energiebereich zwischen etwa 30 keV und 1 MeV bestimmte. Auch die anderen Fortschritte auf dem Gebiet der  $4\pi$ -Rückstoßprotonen-Spektrometrie standen in engem Zusammenhang mit physikalischen Untersuchungen an schnellen Brutreaktoren und betrafen vor allem die Erweiterung des Meßbereiches und die Verbesserung der Auswerte-Verfahren.

1962 gelang es Bennett /2.2/ den  $\gamma$ -Untergrund über die Impulsform weitgehend zu diskriminieren und dadurch den Meßbereich wasserstoffgefüllter Zählrohre zu kleinen Energien hin bis unterhalb 1 keV zu erweitern. Unterhalb etwa 5 keV Protonenenergie ist jedoch auch bei Wasserstoff der in (2.1) eingehende Energieverlust pro Ionenpaar  $w = \frac{dE_p}{dI}$  nicht mehr konstant. Trotz intensiver Bemühungen /2.3/ ist bisher der Verlauf von  $w$  in diesem Energiebereich nicht genügend gesichert, so daß zuverlässige Spektrumsmessungen nur oberhalb etwa 5 keV möglich sind.

Nach oben ist der Meßbereich durch die mit der Energie stark zunehmende Reichweite der Protonen und die dadurch verursachte Deformation der idealen, kastenförmigen Antwortfunktionen durch Wand- und Endeffekte beschränkt. Die obere Grenze bei Messungen in nahezu isotropen Feldern, z.B. im Core schneller Reaktoren, liegt bei etwa 2-3 MeV. Wenn die Neutronen im wesentlichen nur in eine Richtung fliegen, kann der Meßbereich nach oben durch Verwendung geeigneter Zählrohre bis zu 10 MeV erweitert werden /2.4/.

Bei der Berechnung des Neutronenspektrums aus der gemessenen Impulshöhenverteilung muß die Deformation der idealen Antwortfunktion insbesondere durch End- und Wandeffekte berücksichtigt werden. Darüberhinaus muß in bestimmten Energiebereichen auch die Energieabhängigkeit von  $w$  korrigiert werden. Das führt dazu, daß statt der einfachen Differentialgleichung (2.4) die Integralgleichung (2.2) für die Auswertung herangezogen werden muß. Dazu wurden in Argonne /2.5/ und Aldermaston /2.6/ numerische Verfahren entwickelt, die weitgehend verwendet werden.

## 2.2. Halbleiter-Sandwich-Spektrometer

Nachdem Anfang der sechziger Jahre Si-Oberflächensperrschichtzähler mit gutem Auflösungsvermögen für die Spektroskopie geladener Teilchen hergestellt werden konnten, wurde es auch möglich, kompakte sandwichartig aufgebaute Halbleiterspektrometer mit  ${}^6\text{Li}$  oder  ${}^3\text{He}$  als Targetmaterial für die Messung schneller Neutronenspektren zu entwickeln. Der Vorteil von Oberflächensperrschichtzählern gegenüber Gas-Proportionalzählrohren liegt vor allem in der etwa zehnmal geringeren Energie, die im Mittel für die Erzeugung eines Elektron-Loch-Paares aufgebracht werden muß, sowie in ihrem wesentlich größeren Bremsvermögen. Letzteres erlaubt die Konstruktion von äußerst kompakten Spektrometern, was vor allem für die Messung von In-Core-Spektren von erheblichem Vorteil sein kann, da kleine Spektrometer auch nur geringe Störungen des zu untersuchenden Systems mit sich bringen.

Von allen möglichen Neutronenreaktionen, bei denen geladene Teilchen entstehen, sind nur die  ${}^3\text{He}(n,p)t$  und die  ${}^6\text{Li}(n,\alpha)t$ -Reaktion für die Verwendung in solchen Spektrometern geeignet. Um sowohl Rückstoßkerne von elastischen Neutronenstößen als auch Ereignisse, bei denen nicht die gesamte freiwerdende Energie in den Detektoren abgegeben wird, vom Nachweis auszuschließen, ist eine Koinzidenzmessung zwischen zwei Detektoren notwendig. Dadurch werden nur solche Reaktionen registriert, bei denen ein Teilchen im Detektor 1 und das andere Teilchen im Detektor 2 Energie abgegeben hat. Die mit beiden Detektoren gemessene Energie wird aufsummiert, und nach Subtraktion des Q-Wertes der verwendeten Reaktion erhält man die Energie des die Reaktion auslösenden Neutrons:

$$E_n = E_1 + E_2 - Q$$

Die Koinzidenzmessung bringt jedoch energieabhängige Zählverluste mit sich, die bei der Auswertung von gemessenen Spektren berücksichtigt werden müssen. Die Funktion, die diese energieabhängigen

Zählverluste der Sandwichspektrometer beschreibt, bezeichnet man als "geometrische Empfindlichkeit", da ihr Verlauf ganz entscheidend vom geometrischen Aufbau des Spektrometers mitbestimmt wird. Daneben gehen jedoch noch andere Größen, wie die Diskriminator-schwellen in der Detektorelektronik, die Targetdicke und die Winkelverteilung des Neutronenfeldes in die Bestimmung der "geometrischen Empfindlichkeit" ein. Ihre genaue Berechnung ist daher eine wichtige Voraussetzung für die erfolgreiche Verwendung des Spektrometers /2.7 - 2.9/.

Die Gesamtempfindlichkeit des Spektrometers ist ein Produkt aus der "geometrischen Empfindlichkeit"  $\epsilon_g$ , des Reaktionsquerschnitts  $\sigma(E)$  und der Gesamtzahl von Targetkernen  $N$  im Spektrometer:

$$\epsilon = N \sigma(E) \cdot \epsilon_g$$

Das energetische Auflösungsvermögen  $W_{tot}$  der Sandwichspektrometer wird definiert als die Halbwertsbreite der Antwortfunktion für monoenergetische Neutronen. Es ist bedingt durch die Detektor ( $W_{det_i}^2$ )- und Vorverstärkereigenschaften ( $W_{ampi}^2$ ) sowie durch die Streuung der Energieverluste der Reaktionsprodukte im Targetmaterial ( $W_{target}^2$ ) und in den Kontaktschichten der Halbleiter:

$$W_{tot}^2 = \sum_{i=1}^2 [W_{det_i}^2 + W_{ampi}^2] + W_{target}^2$$

Hohe Empfindlichkeit und gutes energetisches Auflösungsvermögen sind einander widersprechende Forderungen. Es ist daher erforderlich, für jedes Meßproblem einen geeigneten Kompromiß zwischen beiden zu finden.

Ein detaillierter Vergleich von  $^3\text{He}$  und  $^6\text{Li}$  als Targetelemente in Sandwichspektrometern zeigt, daß  $^3\text{He}$  erhebliche Vorteile gegenüber  $^6\text{Li}$  besitzt /2.10/:

- 1) Die  ${}^3\text{He}(n,p)t$ -Reaktion besitzt einen glatten resonanzfreien Wirkungsquerschnitt, dessen relativer Verlauf auf etwa 5% genau bekannt ist. Die  ${}^6\text{Li}(n,\alpha)t$ -Reaktion besitzt dagegen bei 250 keV eine ausgeprägte Resonanz und der Verlauf des Wirkungsquerschnitts ist nur auf etwa 15% genau bekannt. Außerdem ist der Betrag des  ${}^3\text{He}(n,p)t$ -Querschnitts oberhalb 500 keV etwa 3-5mal größer.
- 2) Die Energieauflösung des  ${}^3\text{He}$ -Spektrometers ist bei gleicher Empfindlichkeit prinzipiell besser als beim  ${}^6\text{Li}$ -Spektrometer, da bei der  ${}^3\text{He}(n,p)t$ -Reaktion nur Teilchen mit einer Elementarladung entstehen und da  ${}^6\text{Li}$  bisher nur in Form seiner chemischen Verbindungen ( $\text{LiF}$ ,  $\text{Li}_2\text{CO}_3$ ) eingesetzt werden kann. Die Gasförmigkeit von  ${}^3\text{He}$  erlaubt außerdem eine Messung der Energieverluste der Reaktionsprodukte im Targetmaterial.
- 3) Sandwichspektrometer mit  ${}^3\text{He}$  können bei gleicher Energieauflösung etwa 20-30mal empfindlicher sein als Spektrometer mit  ${}^6\text{Li}$ . Dadurch können mit einem Detektorpaar erheblich mehr Spektren mit guter Statistik gemessen werden, bevor Strahlenschäden die Si-Sperrschichtzähler unbrauchbar machen. Letzteres tritt bei einer integralen Neutronendosis von etwa  $10^{12}$  bis  $10^{13}$  Neutronen pro  $\text{cm}^2$  ein.

Den Vorteilen des Halbleiterspektrometers mit  ${}^3\text{He}$  steht jedoch ein wichtiger Nachteil gegenüber. Ihre Empfindlichkeit gegenüber dem stets unvermeidbaren  $\gamma$ -Untergrund ist infolge des geringeren Q-Wertes der Reaktion (764 keV für  ${}^3\text{He}(n,p)t$ ; 4,78 MeV für  ${}^6\text{Li}(n,\alpha)t$ ) erheblich größer als derjenige von  ${}^6\text{Li}$ -Spektrometern. Je nach Sperrschichtdicke der verwendeten Detektoren kann das mit  ${}^3\text{He}$ -Spektrometern gemessene Neutronenspektrum bis zu Energien von 1 MeV vom  $\gamma$ -Untergrund stark gestört oder völlig überdeckt sein.

Zur Lösung dieses Problems wurde das Gasvolumen zwischen den Halbleiterdetektoren als Proportionalzähler ausgebildet und als  $dE/dx$ -Zähler betrieben /2.11/. Infolge ihrer wesentlich geringeren spezifischen Ionisation werden Elektronen beim Durchqueren des Gasvolumens viel geringere Energieverluste erleiden als Protonen und Tritonen gleicher Energie. Eine Analyse der Proportionalzählerimpulse gestattet daher die Trennung von  $\gamma$ - und Neutronenspektrum im  $^3\text{He}$ -Spektrometer. Der Diskriminierungseffekt wird noch dadurch verstärkt, daß man Proportionalzählerimpuls und Summenimpuls (beide Halbleiterdetektoren plus Proportionalzähler) miteinander multipliziert. Auf diese Weise ist es möglich, Neutronenspektren auch in Gegenwart starker  $\gamma$ -Felder zu messen. Durch die Addition des Proportionalzählerimpulses zu den Impulsen der beiden Halbleiterdetektoren werden gleichzeitig die Energieverluste der Reaktionsprodukte im Targetmaterial korrigiert und dadurch das Auflösungsvermögen erheblich verbessert. Das Blockschaltbild der für die Messungen verwendeten Elektronik ist in Abb.2.1 dargestellt. Die Addition und Multiplikation der Halbleiterimpulse und Proportionalzählerimpulse sowie die anschließende Entscheidung, ob ein Ereignis akzeptiert wird, geschieht mit Hilfe eines Digitalrechners.

Bei einem Überblick über  $^3\text{He}$  und  $^6\text{Li}$  Halbleitersandwichspektrometer muß auch eine besondere Form des  $^6\text{Li}$ -Spektrometers erwähnt werden, bei der nur das Tritonenspektrum ausgewertet wird /2.12, 2.13/. Ähnlich wie beim Protonenrückstoßspektrometer gehört zu jeder Neutronenenergie eine rechteckförmige Tritonenenergieverteilung, aus der man mittels Entfaltung die Neutronenenergieverteilung erhält. Der Vorteil dieser Methode, die für Neutronenenergien unterhalb etwa 500 keV anwendbar ist, besteht nun darin, daß man mit einer relativ schlechten Tritonenenergieauflösung eine sehr gute Neutronenenergieauflösung erhält. Dies ist auf die Tatsache zurückzuführen, daß die Ableitung der maximalen Tritonenenergie  $E_{t_{\max}}$  nach der Neutronenenergie  $E_n$  im Grenzfall

$E_n \rightarrow 0$  gegen Unendlich strebt. Da man bei dieser Methode nur die Tritonen verwendet, ist die Auflösung prinzipiell wesentlich besser als bei der Summentechnik und das Neutronenspektrum kann daher mit dieser Methode bis etwa 5 keV herunter gemessen werden.

### 2.3. Flugzeitmethode und NE 213-Pulshöhenspektrometrie

Wird bei den bisher beschriebenen Spektrometern die Energie der geladenen Reaktionsprodukte bestimmt, um die Neutronenenergie zu erhalten, so ist bei der Flugzeitmethode primär der Zeitpunkt des Detektorereignisses von Interesse, weil die Energie des Neutrons aus der Zeit bestimmt wird, die es von seinem Ursprung bis zum Detektor braucht. Hierdurch wird die Flugzeitmethode von thermischen bis zu relativistischen Energien einsetzbar. Der Startzeitpunkt der Neutronen kann mit geladenen Reaktionsprodukten bestimmt werden, wie z.B. durch den Nachweis der  $\alpha$ -Teilchen aus der  ${}^3\text{He}(d,n){}^4\text{He}$ -Reaktion. Beim Doppel-Szintillationsspektrometer wird Anfang und Ende des Neutronenfluges durch Streuung an Wasserstoff markiert /2.14/. Wesentlich günstigere Meßbedingungen, d.h. Zählraten und Signal-zu-Untergrund-Verhältnis, erhält man aber mit der gepulsten Quelle, da in der Zeit, in der die Detektorereignisse registriert werden, keine störenden Quellneutronen erzeugt werden.

Dem Vorteil der unspezifischen Verwendung des Detektorereignisses als Zeitmarke steht der Nachteil gegenüber, daß umgekehrt auch jede Zeitmarke als Detektorereignis fehlinterpretiert werden kann. Aus der Vielzahl möglicher Flugzeitdetektoren werden daher diejenigen bevorzugt, bei denen die Diskriminierung der von Neutronen stammenden Signale am sichersten gelingt. Dies sind die Detektoren auf der Basis von  $(n,\alpha)$ -Reaktionen und die Rückstoßprotonen-Detektoren. Es gibt zwei Hauptlinien der Entwicklung von Flugzeit-Detektoren: moderierende Detektoren /2.15/, /2.16/, deren Ansprechwahrscheinlichkeit möglichst

flach verläuft, wobei durch die Moderation die Zeitauflösung in die Größenordnung 0,1 bis 1,0  $\mu$ s fällt, sowie Detektoren, bei denen zugunsten hoher Zeitauflösung die Neutronen vorwiegend über Einzelstöße registriert werden /2.17/. Eine Zeitauflösung von 2 ns ist dann im MeV-Bereich ein typischer, leicht erreichbarer Wert, der im wesentlichen durch die Detektorgröße gegeben ist.

Wenn die Neutronen die Stelle, an der das Ausflußspektrum bestimmt werden soll, alle zur Zeit  $t=0$  verlassen, dann ist das Detektorsignal  $S_j$  im Zeitkanal  $j$  eines Analysators, der die Grenzen  $t_j$  und  $t_{j+1}$  hat:

$$S_j = \int_{t_j}^{t_{j+1}} \varphi(E) \cdot \eta(E) \cdot \mu(E) dt \quad (2.5)$$

Darin ist mit  $E=E(t)$ , der Neutronenenergie,

- $\varphi(E)$  = Neutronenfluß am Detektor
- $\eta(E)$  = Ansprechwahrscheinlichkeit des Detektors
- $\mu(E)$  = Transmission der Flugstrecke

Die Fehler in der Bestimmung von  $\varphi(E)$  resultieren dann hauptsächlich aus den Fehlern in der Bestimmung des Signals (Statistik und Untergrundbestimmung) und der Ansprechwahrscheinlichkeit. Die Transmission  $\mu(E)$  wird nahe bei 1 gehalten, und zwar bei Flugstrecken ab 10 m durch Evakuieren. Mittelbare Fehler ergeben sich aus der Zeitauflösung, die durch die Pulsbreite des Neutronengenerators, die Detektoren und nicht zuletzt durch die das Neutronenspektrum erzeugende Anordnung begrenzt werden kann. Die Emission der Neutronen aus der Anordnung muß im allgemeinen Fall mit einer normierten zeit- und energieabhängigen Funktion  $\epsilon(t_e, E)$  beschrieben werden. Die Zeit des Detektorereignisses,  $t_d$ , setzt sich zusammen aus der Emissionszeit  $t_e$  und der Flugzeit  $t_f$ :  $t_d = t_e + t_f$ . Damit wird Gl.2.5 um eine Faltung komplizierter: ( $E$  durch  $t_f$  ersetzt)

$$S_j = \int_{t_j}^{t_{j+1}} \int_0^{t_d} \epsilon(t_d - t_f, t_f) \cdot \varphi(t_f) \cdot \eta(t_f) \cdot \mu(t_f) dt_f dt_d \quad (2.6)$$

Die Emissionsfunktion  $\epsilon$  ist meist nur in grober Näherung bestimmbar, daher wird man durch Vergrößern der Flugstrecke die Entfaltung zu vermeiden suchen. Wenn die Halbwertsbreite der Emissionsfunktion der Zeitauflösung bei dem Neutronenpuls-generator und dem Detektor vergleichbar ist, kann man wieder auf Gleichung (2.5) zurückgehen, wobei der Zeitnullpunkt energieabhängig verschoben wird.

Auf der Basis dieser Näherung wurde mit maßgeschneiderten Anordnungen ein Ensemble von drei Flugzeitdetektoren für den Meßbereich 10 eV bis 15 MeV etabliert /2.17/. Die Detektoren ergänzen sich in ihren Eigenschaften. Ein B10-Vaseline-Detektor als Eichnormal für den Bereich 100 eV bis 1 MeV besitzt eine flache Ansprechwahrscheinlichkeit, deren Verlauf wenig empfindlich gegen Datenunsicherheiten bei ihrer Berechnung ist. Ein  ${}^6\text{Li}$ -Glasszintillator wird bei Routine-Messungen im Bereich 10 eV bis 2 MeV eingesetzt und ein NE 213-Flüssigkeitsszintillator für Rückstoßprotonen dient zur Messung im Bereich von 250 keV (Schwelle) bis 15 MeV.

Der Fehler in der Form eines Spektrums muß getrennt für die Feinstruktur und die Grobstruktur betrachtet werden. Bei der Feinstruktur dominiert die Zeitauflösung und die Statistik, allgemeine Angaben sind daher nicht möglich. Die Grobstruktur ist durch die Ansprechwahrscheinlichkeit mit einem festen Fehleranteil und durch die Signalbestimmung mit einem veränderlichen Fehleranteil behaftet, der bis zu 2% pro Energiedekade gesenkt werden kann. Da ein wichtiger Teil der Ansprechwahrscheinlichkeit beider Detektoren aus einem Vergleich gemessener Spektren stammt, muß der Fehler der Ansprechwahrscheinlichkeit mit ebenfalls 2% pro Energiedekade angegeben werden. Eine Routinemessung hat also,

bezogen auf den Wert bei 1 keV, bei 10 MeV einen mittleren Fehler von 8%.

Bei multiplizierenden Anordnungen kann man die Emissionsfunktion durch eine energieunabhängige Näherung ersetzen und auf der Basis von Gl.(2.6) das gemessene Signal iterativ entfalten. Ein Anwendungsbeispiel findet sich in /2.18/.

Die Abmessungen des Flüssigkeitsszintillators sind so gewählt, daß er auch als Rückstoßprotonen-Spektrometer eingesetzt werden kann /2.16/. Registriert man biparametrisch die Pulshöhen und die Zeit des Detektorereignisses, so kann man nach dem Entfalten der Pulshöhenspektren das Neutronenspektrum als Funktion der Zeit angeben, und zwar mit einer Zeitauflösung von 2,5 ns Halbwertsbreite. Stellt man den Detektor in einen Flugkanal, so kann das Neutronenspektrum sowohl nach der Flugzeit- als auch der Pulshöhen-Methode bestimmt werden. Wegen der unterschiedlichen Fehlerquellen ist eine wechselseitige Verbesserung beider Methoden möglich. Der Meßbereich nach der Pulshöhen-Methode ist 400 keV bis 15 MeV, wenn oberhalb 6 MeV sich kein ausgeprägter Peak im Neutronenspektrum befindet. Die Fehler sind mit einem Fehlerband von  $\pm 7\%$  abzuschätzen, sie sind beim gegenwärtigen Stand der Entfaltungstechnik noch zum Teil systematischen Ursprungs. Die Auflösung ist mit 20% bei 3 MeV mäßig. Die wichtigste Anwendung dieses Spektrometers ist die Bestimmung von zeitabhängigen Ausflußspektren /2.20/, die bei der Berechnung sehr empfindlich auf Änderungen im inelastischen Wirkungsquerschnitt reagieren. Darüberhinaus erschließt die hohe Ansprechwahrscheinlichkeit Messungen bei kleinen Fluenzen.

#### Literatur

- 2.1 Benjamin, P.W. et al.: AWRE Report No. NR 2/64 (1964)
- 2.2 Bennett, E.F.: Rev. Sci. Instr. 35 (1962) 1153

- 2.3 Breitung, W.: KFK 1623 (1972)
- 2.4 Werle, H.: Nucl. Instr. Meth. 99 (1972) 295
- 2.5 Bennett, E.F. and Yule, T.J.: ANL-7763 (1971)
- 2.6 Benjamin, P.W.: AWRE Report No. 09/68 (1968)
- 2.7 Ryclin, R.A.: EUR 2712.e (1966)
- 2.8 Silk, M.G., Windsor, M.E.: Journal of Nucl. Energy 21, No. 1 (1967) 17
- 2.9 Bluhm, H., Stegemann, D.: Nucl. Instr. Meth. 70 (1969) 141
- 2.10 Bluhm, H.: KFK 1798 (1973)
- 2.11 Bluhm, H.: Nucl. Instr. Meth. 115 (1974) 325
- 2.12 De Leeuw, G., De Leeuw, S.: Fast Reactor Physics, Vol.I, IAEA Proc., Wien (1968) 277
- 2.13 Rickard, I.C.: Nucl. Instr. Meth. 82 (1970) 287
- 2.14 Rickard, I.E., PhD Thesis, Imperial College of Science and Technology, London (1967)
- 2.15 Neill, J.M., Huffman, D., Preskitt, C.A., Young, J.C.: Calibration and use of a 5-inch diameter Lithium glass detector, Nucl. Instr. Meth. 82 (1970) 162
- 2.16 Coates, M.S., Gayther, D.B., Goode, P.D., Tripp, D.J.: Time-of-flight measurements of the neutron spectrum in a subcritical fast reactor assembly, Nucl. Energy 22 (1968) 547
- 2.17 Kappler, F.W., Rusch, D., Wattercamps, E.D.: Detection efficiency of fast neutron time-of-flight detectors and reliability check by measuring tailored source spectra, Nucl. Instr. Meth. 111 (1973) 83

- 2.18 Fieg, G., Korthaus, E., Pieroni, N., Rusch, D., Schmidt, A., Wattecamps, E., Werle, H.: Das Neutronenspektrum der Anordnung SNEAK 7A, gemessen an der SUAK, KFK 1273/2 (1973)
- 2.19 Burrus, W.R., Verbinski, V.V.: Fast-neutron spectroscopy with thick organic scintillators, Nucl. Instr. Meth. 67 (1969) 181
- 2.20 Pieroni, N., Rusch, D., Wattecamps, E.: Measurement of time-dependent fast neutron spectra with an NE 213 scintillator, Nucl. Instr. Meth. 115 (1974) 317

3. Vergleichsmessungen mit  $^{252}\text{Cf}$ -Spontanspaltungs-Neutronen  
(Standardspektrum)

Die Frage eines "Standardspektrums", an dem möglichst viele Techniken überprüft werden können, ist lange Zeit diskutiert worden /3.1/. In letzter Zeit scheint sich die Auffassung durchzusetzen /3.2, 3.3/, daß dafür am ehesten das spontan-spaltende  $^{252}\text{Cf}$  geeignet ist.

- 1)  $^{252}\text{Cf}$  hat eine hohe spezifische Neutronenausbeute von  $2,2 \cdot 10^6$  n/s $\cdot\mu\text{g}$ , so daß nur sehr wenig Material für eine Quelle benötigt wird, wodurch die Deformation des  $^{252}\text{Cf}$ -Spaltneutronenspektrums durch das Quellmaterial sehr klein gehalten werden kann.
- 2) Der Aufwand zur Herstellung einer Quelle ist klein, verglichen mit anderen vorgeschlagenen Standardspektren.
- 3) Die meisten der gebräuchlichen Methoden können damit überprüft werden.

4) Zumindest im Bereich von etwa 0,7 - 10 MeV scheint das Spektrum mit einer Genauigkeit von  $\pm 5\%$  bekannt zu sein. Das zeigen übereinstimmend alle neueren Messungen.

Werle und Bluhm /3.4/ bestimmten das Spektrum mit Protonenrückstoß-Proportionalzählrohren im Bereich 0,1 - 10 MeV und mit  $^3\text{He}$ -Halbleiterspektrometern zwischen 0,1 und 4 MeV. Die gemessenen Spektren stimmen innerhalb der Meßgenauigkeit von etwa 5-10% im Bereich unterhalb etwa 6 MeV mit einer Maxwell-Verteilung,  $\chi(E) \sim \sqrt{E} \cdot \exp(-E/T)$  (Mittlere Energie  $\bar{E} = 1,5 T$ ), überein. Oberhalb 6 MeV liegen die Protonenrückstoß-Ergebnisse unterhalb der Maxwell-Verteilung.

Knitter et al. /3.5/ benutzten die Flugzeit-Methode und fanden im Energiebereich von 0,15 bis 15 MeV keine merklichen Abweichungen von einer Maxwell-Verteilung.

Die wohl gründlichste neuere Untersuchung wurde von Green et al. /3.6/ ebenfalls mit der Flugzeit-Methode durchgeführt. Sie finden kleine, jedoch markante Abweichungen von einer Maxwell-Verteilung (Abb.3.1). Im Bereich zwischen 0,7 und 9 MeV sind die Abweichungen kleiner als 5%, unterhalb 0,7 MeV und oberhalb 9 MeV steigen die Abweichungen auf etwa 10% an.

In Tabelle 3.1 sind die durch Anpassung einer Maxwell-Verteilung an die gemessenen Spektren gefundenen mittleren Neutronenenergien angegeben.

Tabelle 3.1 Mittlere (Maxwell)-Neutronenenergien  $\bar{E}$  für  $^{252}\text{Cf}$ -Spaltneutronen

	Methode	E (MeV)
Smith /3.7/	Mittelwert über differenzielle Messungen vor 1971	2,19
Werle und Bluhm /3.4/	Protonen-Rückstoß $^3\text{He}$ -Halbleiter	2,155 $\pm$ 0,12 2,130 $\pm$ 0,08
Green et al. /3.6/	Flugzeit	2,105 $\pm$ 0,08
Knitter et al. /3.5/	Flugzeit	2,13 $\pm$ 0,08

Die angegebenen Fehler stellen den Gesamtfehler dar. Bei Green et al. ist kein Fehler angegeben, es wurde daher der von Knitter et al. angegebene Wert übernommen, da dieselbe Methode benutzt wurde.

Aus den Ergebnissen dieser neueren Messungen kann geschlossen werden, daß das  $^{252}\text{Cf}$ -Spaltneutronenspektrum im Bereich 0,1-0,7 MeV innerhalb etwa  $\pm 10\%$ , zwischen 0,7 und 9 MeV innerhalb  $\pm 5\%$  und zwischen 9 und 15 MeV mit einer Genauigkeit von  $\pm 20\%$  bekannt ist. Diese Fehlerangaben sind gleichzeitig repräsentativ für die Genauigkeit, mit der zur Zeit schnelle Neutronenspektren gemessen werden können.

#### Literatur

- 3.1 Fabry, A., Vandeplas, P.: Proc. Fast Reactor Physics, Vol. I, S. 389, Wien, 1968
- 3.2 Proc. IAEA Consultants Meeting on Prompt Fission Neutron Spectra, Wien, 1971
- 3.3 Proc. IAEA Second Panel on Neutron Standard Reference Data, Wien, 1972
- 3.4 Werle, H., Bluhm, H.: J. Nucl. Energy 26 (1971) 165
- 3.5 Knitter, H.H. et al.: ATKE 22 (1973) 84
- 3.6 Green, L. et al.: Nucl. Sci. Eng. 50 (1973) 257
- 3.7 Smith, A.B.: Ref. /3.2/, S.3

#### 4. Anwendungen

##### 4.1. Spektren der Spaltneutronen und radioaktiver Neutronenquellen

##### Spektren der prompten Spaltneutronen von $^{235}\text{U}$ und $^{239}\text{Pu}$

Die meisten differentiellen Messungen ergaben, daß die Spektren der Spaltneutronen von  $^{235}\text{U}$  und  $^{239}\text{Pu}$  bei Spaltung mit thermischen Neutronen innerhalb der Meßgenauigkeit durch eine Maxwell-Verteilung dargestellt werden können. Darüberhinaus stimmen praktisch alle daraus ermittelten Werte für die mittleren (Maxwell)-Neutronenenergien innerhalb der Fehlergrenzen mit den von Smith /4.1/ kompilierten Mittelwerten (Tab.4.1) der differentiellen Ergebnisse überein. 1968 und 1969 erschienen zwei Arbeiten /4.2, 4.3/, in denen die mittleren Spaltneutronenenergien dieser Isotope mit einer Reihe von Aktivierungsdetektoren bestimmt wurden und die im Widerspruch zu den differentiellen Messungen 1) eine um etwa 10% höhere mittlere Energie für  $^{235}\text{U}$ -Spaltneutronen und 2) einen wesentlich näher bei eins liegenden Wert für das Verhältnis der mittleren Energien von  $^{239}\text{Pu}$ - zu  $^{235}\text{U}$ -Spaltneutronen ergaben. Da diese Differenzen einen erheblichen Einfluß auf einige wichtige Parameter schneller Reaktoren haben, war man an der Klärung dieser Diskrepanzen sehr interessiert. Daher bestimmten Werle und Bluhm /4.4/ die Spaltneutronenspektren von  $^{235}\text{U}$  und  $^{239}\text{Pu}$  erneut mit Protonenrückstoß-Zählrohren und  $^3\text{He}$ -Halbleiter-Spektrometern im Bereich zwischen 0,1 und 10 MeV (Abb.4.1).

Die aus diesen Messungen ermittelten mittleren Neutronenenergien und deren Verhältnis sind zusammen mit den älteren Ergebnissen in Tabelle 4.1 zusammengestellt.

Die neueren Messungen bestätigen im wesentlichen die älteren differentiellen Resultate. Eine Ausnahme bildet das mit dem  $^3\text{He}$ -Halbleiterspektrometer bestimmte Verhältnis der mittleren Energien von 1,029 /4.4/. Die Ursache für diese Diskrepanz

mit den anderen differentiellen Messungen konnte nicht geklärt werden. Angesichts der insgesamt vorliegenden Ergebnisse können jedoch die von Smith /4.1/ angegebenen mittleren Energien, innerhalb von  $\pm 5\%$ , und das von ihm angegebene Verhältnis, innerhalb etwa  $\pm 2\%$ , als gesichert gelten.

Tabelle 4.1 Mittlere (Maxwell)-Neutronenenergien  $\bar{E}$  für  $^{235}\text{U}$ - und  $^{239}\text{Pu}$ -Spaltneutronen

Autor	$\bar{E}$ (MeV)		$\frac{\bar{E}(^{239}\text{Pu})}{\bar{E}(^{235}\text{U})}$
	$^{235}\text{U}$	$^{239}\text{Pu}$	
Smith /4.1/ Mittelwert über diff.Messungen vor 1971	1,979	2,084	1,084
Grundl /4.2/ Akt. Detektoren	2,20		1,039
Mc Elroy /4.3/ Akt. "	2,24		-
Smith /4.5/ Flugzeit	1,95		1,075
Werle und Proton-Rückstoß	$1,956 \pm 0,12$	$2,136 \pm 0,12$	$1,092 \pm 0,04$
Bluhm /4.4/ $^3\text{He}$ -Halbleiter	$2,020 \pm 0,08$	$2,075 \pm 0,08$	$1,029 \pm 0,03$

Spektren der verzögerten Spaltneutronen von  $^{235}\text{U}$ ,  $^{238}\text{U}$  und  $^{239}\text{Pu}$

Die bei der Spaltung neben den prompten Neutronen auftretenden verzögerten Neutronen können in sechs Gruppen unterteilt werden. Jede dieser Gruppen ist, wie in Tabelle 4.2 für die thermische Spaltung von  $^{235}\text{U}$  dargestellt, durch eine Halbwertszeit  $T_i^{1/2}$ , eine relative Häufigkeit  $a_i$  und eine Neutronenenergieverteilung  $\chi_i(E)$  charakterisiert.

Obwohl die Energieverteilung der verzögerten Neutronen einen erheblichen Einfluß auf das kinetische Verhalten schneller Reaktoren hat, gab es vor 1971 nur zwei Messungen /4.6, 4.7/, und zwar beide für thermische Spaltung von  $^{235}\text{U}$ , die sich darüberhinaus noch teilweise erheblich unterscheiden.

Tabelle 4.2 Halbwertszeiten  $T_i^{1/2}$  und relative Häufigkeiten  $a_i$  der verzögerten Neutronen bei der thermischen Spaltung von  $^{235}\text{U}$

Gruppe	$T_i^{1/2}$ (sec)	$a_i$
1	55.72	.033
2	22.72	.219
3	6.22	.196
4	2.30	.395
5	0.61	.115
6	0.23	.042

Es wurden deshalb die Spektren verzögerter Neutronen für  $^{235}\text{U}$ ,  $^{238}\text{U}$  und  $^{239}\text{Pu}$  bei Spaltung mit 14 MeV-Neutronen und bei thermischer Spaltung ( $^{235}\text{U}$ ,  $^{239}\text{Pu}$ ) mit Rückstoßprotonen-Zählrohren im Energiebereich zwischen 0,1 und 1,2 MeV bestimmt /4.8/.

Abb.4.2 zeigt die gemessenen Gruppenspektren  $\chi_i(E)$  für thermische Spaltung von  $^{235}\text{U}$  und im Vergleich dazu die Ergebnisse von Batchelor und Hyder /4.6/. Aus den Gruppenspektren läßt sich entsprechend  $\chi(E) = \sum_i a_i \chi_i(E)$  das stationäre Spektrum zusammensetzen. Das stationäre Spektrum ist in Abb.4.3 zusammen mit den Ergebnissen der älteren Arbeiten dargestellt.

Die neueren Messungen bestätigen die Ergebnisse von Batchelor.

Die aus den gemessenen Spektren gewonnenen mittleren Neutronenenergien zeigt Tab.4.3. Wieder zeigt sich eine gute Übereinstimmung mit Batchelor und deutliche Diskrepanzen gegenüber Burgy /4.7/. Überraschend ist, daß sich die Spektren sowohl der verschiedenen Isotope als auch die bei thermischer und 14 MeV-Spaltung nur wenig unterscheiden.

Tabelle 4.3 Mittlere Energien der Gruppenspektren (Fehler 5-10%)

Isotop	Gruppe	Mittlere Energien (keV)				
		1	2	3	4	5
$^{235}\text{U}$ (therm.)		277	484	447	432	-
$^{235}\text{U}$ (14 MeV)		286	458	432	480	-
$^{238}\text{U}$ (14 MeV)		278	468	443	425	382
$^{239}\text{Pu}$ (14 MeV)		296	481	411	430	-
$^{235}\text{U}$	Batchelor and Hyder /4.6/	$250 \pm 20$	$460 \pm 10$	$405 \pm 20$	$450 \pm 20$	-
	Burgy et al. /4.7/	$300 \pm 60$	$670 \pm 10$	$650 \pm 90$	$910 \pm 90$	$400 \pm 70$

$^9\text{Be}(\alpha\text{-n})$ -Neutronenquellen

Trotz der Entwicklung leistungsfähiger Neutronengeneratoren spielen radioaktive Neutronenquellen nach wie vor auf einigen Gebieten, z.B. Kalibrierung von Neutronendetektoren, Importance-Messungen in schnellen Reaktoren, eine wichtige Rolle. Für diese Anwendungen ist eine genaue Kenntnis des Neutronenspektrums notwendig. Eine der gebräuchlichsten Reaktionen ist  $^9\text{Be}(\alpha, n)$  wegen der hohen Neutronenausbeute. Bei  $\alpha$ -Energien unterhalb etwa 7 MeV, wie sie für radioaktive Emitter typisch sind, entstehen die meisten Neutronen über die Reaktion  $^9\text{Be}(\alpha, n) ^{12}\text{C}$  mit Energien zwischen 1 und etwa 12 MeV. Schon in älteren Arbeiten fand man jedoch Hinweise, daß ein merklicher Teil der Neutronen Energien unterhalb 1 MeV hat, der aus energetischen Gründen nicht von der oben angegebenen Reaktion stammen kann. St. Romain et al. /4.9/ bestimmten für zwei  $\alpha$ -Energien die mittlere Energie dieser niederenergetischen Neutronen und schlossen daraus, daß diese Neutronen durch die Reaktion  $^9\text{Be}(\alpha, \alpha') ^9\text{Be}^* \rightarrow ^8\text{Be} + n$  hervorgerufen werden. Eine Bestätigung

dieser Vermutung gelang erst in den letzten Jahren durch die Messung der Ausbeute und der Energieverteilung dieser niederenergetischen Neutronen sowohl für monoenergetische  $\alpha$ -Teilchen als auch für einige radioaktive Neutronenquellen. Werle /4.10/ bestimmte den relativen Anteil und die Energieverteilung dieser niederenergetischen Neutronen für Am-Be- und Ra-Be-Quellen. Obst et al. /4.11/ bestimmten die Ausbeute und die Energieverteilung der Neutronen oberhalb 0,5 MeV für monoenergetische  $\alpha$ -Teilchen bis 6,4 MeV unter verschiedenen Winkeln. Werle et al. /4.12/ ergänzten die Ergebnisse von Obst et al. dadurch, daß der Energiebereich der  $\alpha$ -Teilchen bis 7,44 MeV und der gemessene Neutronenenergiebereich bis hinunter zu 100 keV erweitert wurde. Diese Messungen zeigten, daß die Reaktion  ${}^9\text{Be}(\alpha, \alpha') {}^9\text{Be}^* \rightarrow {}^8\text{Be} + n$ , im Gegensatz zur  ${}^9\text{Be}(\alpha, n) {}^{12}\text{C}$ -Reaktion, auch für monoenergetische  $\alpha$ -Teilchen ein Neutronenkontinuum liefert. Für  $\alpha$ -Energien unterhalb etwa 7 MeV, wie sie für radioaktive Quellen typisch sind, reicht das Kontinuum bis etwas über 2 MeV und hat im Bereich um 0,3 MeV ein ausgeprägtes Maximum. Abb.4.4 zeigt als Beispiel den niederenergetischen Teil des Spektrums einer Am-Be-Quelle, der mit Rückstoßprotonen-Zählrohren bestimmt wurde /4.12/. Die Form dieser Energieverteilung ist bei Quellen mit anderen  $\alpha$ -emittierenden Isotopen ähnlich, jedoch steigt der relative Anteil der niederenergetischen Neutronen, wie Tabelle 4.4 zeigt, stark mit der  $\alpha$ -Energie an.

Tabelle 4.4 Relativer Anteil niederenergetischer Neutronen  
( $< 1,5$  MeV) einiger gebräuchlicher  $^9\text{Be}(\alpha\text{-n})$ - Quellen

Quelle	$\alpha$ -Energie [MeV]	Autor	$\alpha$ -Aktivität [C]	Anteil ( $< 1,5$ MeV) [%]
$^{241}\text{Am-Be}$	5,5	Werle /4.10/	5 und 0,4	$22 \pm 5$
			1,5	$18 \pm 5$
		Werle et al. /4.12/	0,74	$17,5 \pm 4$
			berechnet aus gemessenen Wirkungsquerschn.	$15 \pm 4$
$^{226}\text{Ra-Be}$	4,8-7,7	Werle /4.10/	0,1	$33 \pm 8$
$^{227}\text{Ac-Be}$	4,9-7,4	Geiger et al. /4.13/	.003	$38 \pm 3$

#### 4.2. Urankugel-Transmissionsmessungen

Die in Abschnitt 2 beschriebenen Methoden zur Messung der Neutronenspektren sind auch für den Einsatz bei bestimmten differentiellen Experimenten zur Messung von Neutronenwirkungsquerschnitten geeignet. Insbesondere bieten sich hierfür Kugelschalentransmissionsmessungen zur Bestimmung von inelastischen Streuquerschnitten an. Solche Messungen würden zwar in früheren Jahren auch bereits durchgeführt /4.14/, jedoch meist mit Detektoren, die nicht zur differentiellen Bestimmung des Transmissionspektrums geeignet waren. Daher war es oft schwierig, elastisch und inelastisch gestreute Neutronen voneinander zu trennen. In den letzten Jahren wurden die inelastischen Streuquerschnitte fast ausschließlich mit Hilfe der Flugzeitmethode bestimmt. Hierbei werden primär die individuellen inelastischen Anregungsquerschnitte entweder aus dem durch Streuung zu den verschiedenen Anregungsniveaus des Kerns entstandenen Neutronenspektrum

oder aus dem  $\gamma$ -Emissionsspektrum bestimmt. Der totale inelastische Streuquerschnitt ergibt sich dann aus der Summe dieser Partialquerschnitte. Diese Methode hat jedoch gegenüber der Kugelschalen-Transmissionsmessung folgende Nachteile:

- a) Zur Bestimmung des Querschnitts aus den Meßdaten ist eine Relativmessung notwendig.
- b) Auch zur Ermittlung des totalen inelastischen Streuquerschnitts muß der Verlauf der Spektrometerempfindlichkeit bekannt sein.
- c) Bei Auswertung des  $\gamma$ -Emissionsspektrums muß das Zerfallsschema bekannt sein und bei radioaktiven Proben verschwinden die Emissionslinien der untersten Anregungsniveaus meist im natürlichen  $\gamma$ -Untergrund.

Die meisten neueren Messungen mit Hilfe der Flugzeitmethode verwendeten eine monoenergetische Neutronenquelle und werten das Spektrum der gestreuten Neutronen aus. Die Eigenschaften der dabei verwendeten Plastiksintillatoren bestimmen die untere Grenze des Meßbereichs, die bei etwa 150 keV liegt. Der große Vorteil der nsec-Flugzeittechnik ist ihr ausgezeichnetes Auslösungsvermögen, das jedoch nur für Energien unterhalb etwa 1 MeV voll genutzt werden kann, da hohe Empfindlichkeit der Meßanordnung und gutes energetisches Auflösungsvermögen einander widersprechende Forderungen bei der Flugzeitmethode sind. Bei der Bestimmung von inelastischen Streuquerschnitten für  $^{238}\text{U}$  ist das Kriterium für die Auflösung die Trennung von elastisch und inelastisch zum 1. Niveau (44,7 keV) gestreuten Neutronen. Dies ist bei den augenblicklich verwendeten Neutronengeneratoren bis etwa 1,2 MeV Neutronenenergie möglich.

Demgegenüber ist das energetische Auflösungsvermögen der in Abschnitt 2.2 beschriebenen  $^3\text{He}$ -Spektrometer bei gleicher Empfindlichkeit nahezu unabhängig von der Neutronenenergie. 30-40 keV

scheinen im gesamten Energiebereich erreichbar zu sein.

Aufgrund dieser Überlegungen und angeregt durch die Ergebnisse der in Abschnitt 4.3 beschriebenen integralen Messungen wurde ein Kugelschalen-Transmissionsexperiment mit abgereichertem Uran zur erneuten differentiellen Bestimmung der inelastischen Streuquerschnitte von  $^{238}\text{U}$  aufgebaut. Die Transmissionsmessung hat den Vorteil, daß der totale inelastische Querschnitt direkt bestimmt werden kann und nicht erst aus der Summe der partiellen Querschnitte berechnet werden muß, so daß sich deren relativ große Fehlersumme nicht auf den totalen Querschnitt überträgt.

Qualitativ läßt sich das Kugelschalen-Transmissionsexperiment folgendermaßen beschreiben: In sehr großer Entfernung von der monoenergetischen Neutronenquelle befindet sich im Zentrum einer Kugelschale ein Spektrometer mit isotroper Empfindlichkeit. Das Verhältnis der Zählraten mit und ohne Kugelschale im primären Neutronenpeak bezeichnet man als Transmission. Sie ist ein Maß für die inelastische Streuung in der Kugelschale. Hierbei wird angenommen, daß alle inelastisch gestreuten Neutronen im Spektrometer genügend gut von ungestreuten und elastisch gestreuten Teilchen getrennt werden können.

Für die theoretische Interpretation der Experimente nimmt man meistens an, daß sich die Quelle im Zentrum der Kugelschale und der Detektor außerhalb befindet. Unter der Voraussetzung, daß Quelle und Detektor isotrop sind und daß die Energieverluste bei elastischen Stößen vernachlässigbar sind, gilt nämlich das Reziprozitätstheorem, welches besagt, daß die Transmission in beiden Fällen gleich ist /4.15/. Für sehr dünne Kugelschalen gilt

$$T = e^{-\Sigma_x x} \quad (4.1)$$

wobei  $\Sigma_x$  der makroskopische inelastische Wirkungsquerschnitt und  $x$  die Dicke der Kugelschale bedeuten. Infolge der sphäri-

schen Symmetrie sind nämlich die Zählverluste aufgrund von elastischen Streuprozessen in der Kugelschale gleich Null. Um eine genügende Meßgenauigkeit zu erhalten, ist es jedoch notwendig, dickere Kugelschalen zu verwenden. Dann ist aber die Vergrößerung der mittleren Weglänge der Neutronen in der Kugelschale durch elastische Streuung nicht mehr vernachlässigbar. Die Theorie zur Interpretation der Transmissionsmessungen an dickeren Kugelschalen wurde von Bethe et al. /4.16/ entwickelt. Betrachtet man nur erste und zweite nichtelastische Stöße in der Kugelschale, so gilt:

$$T = 1 - \Sigma_x \cdot X + \frac{1}{2} \Sigma_x X^2 \left[ \frac{\bar{\Sigma}_t - \Sigma_{et}}{\Sigma_{tr}} \cdot L \right] \quad (4.2)$$

Berücksichtigt man auch nichtelastische Stöße höherer Ordnung, so erhält man die genauere Formel:

$$1-T = (1-T_0) \frac{\Sigma_x}{\Sigma_{tr}} \left[ \bar{1} + \frac{\Sigma_{et}}{\Sigma_{tr}} (1-P_1) + \frac{(1-P_1)(1-P_2)\Sigma_{et}^2}{\Sigma_{tr}(\Sigma_x + \Sigma_{et}P_m)} \right] \quad (4.3)$$

Dabei bedeuten:

$\Sigma_t$  = totaler makroskopischer Wirkungsquerschnitt

$\Sigma_{et} = (\Sigma_t - \Sigma_x)(1-\bar{\mu})$  = elastischer Transportquerschnitt

$\bar{\mu}$  = mittlerer Cosinus des Streuwinkels im Laborsystem

$$L = \left( \frac{3}{2} + \ln \left( \frac{2r_2}{x} \right) \right)$$

$r_2$  = äußerer Radius der Kugelschale

$$T_0 = e^{-\Sigma_{tr} \cdot x}$$

$\Sigma_{tr} = \Sigma_x + \Sigma_{et}$  = Transportquerschnitt

$P_i$  = Entkommwahrscheinlichkeit nach dem i-ten Stoß

Für die endlichen Abmessungen des Spektrometers sowie für die endliche Entfernung zwischen Detektor und Neutronenquelle sind

weitere Korrekturterme notwendig, die jedoch für das hier beschriebene Experiment sehr klein waren und deshalb nicht weiter diskutiert werden sollen.

Die hier verwendete Urankugelschale hatte einen Durchmesser von 10,9 cm und eine Dicke von 1 cm. Sie befand sich in einer Entfernung von 18 cm vom Target eines 3 MeV Van de Graaff-Neutronengenerators. Als neutronenproduzierende Reaktionen wurden die  ${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$  und die  $T(p,n){}^3\text{He}$ -Reaktion verwendet. Beide Targets waren wassergekühlt und konnten mit Protonenströmen bis zu 100  $\mu\text{A}$  beschossen werden. Diese Wasserkühlung und die ungünstige Anordnung des Strahlrohrs führten zu einem relativ hohen Neutronenuntergrund außerhalb des Primärpeaks.

Als Detektoren wurden kleine kugelförmige Protonenrückstoßspektrometer mit 1 und 4 atm  $\text{H}_2$ -Füllung sowie kleine  ${}^3\text{He}$ -Halbleiter-Sandwich-Spektrometer mit einer Auflösung von etwa 35 keV verwendet. Die notwendige Isotropie der Spektrometer ist bei den Protonenrückstoßzählern durch ihren geometrischen Aufbau gewährleistet und wurde für die  ${}^3\text{He}$ -Spektrometer durch Drehen des Detektors um  $90^\circ$  während der Messung hergestellt.

In Abb.4.5 ist das Ergebnis einer Messung mit einem Kugelzähler mit 2 atm Wasserstofffüllung dargestellt. Dabei wurden die Messungen mit und ohne Kugelschale im Peak aufeinander normiert, um den Unterschied zwischen dem Transmissionsspektrum und dem Primärspektrum deutlich zu machen. Man erkennt im Transmissionsspektrum einen zweiten Peak, der von inelastischen Streuungen zum 1. Niveau des  ${}^{238}\text{U}$ -Kerns herrührt.

Abb.4.6 zeigt ein Ergebnis der Messungen mit dem  ${}^3\text{He}$ -Spektrometer bei 1,33 MeV Neutronenenergie. Auch hier erkennt man mehrere Gruppen von inelastisch gestreuten Neutronen bei 45 keV, 147 keV, 700 keV, 1000 keV und 1120 keV, jedoch ist die Trennung zwischen elastisch und inelastisch gestreuten Neutronen nicht mehr voll-

ständig.

Eine erste Auswertung der Meßergebnisse wurde mit Hilfe der oben angegebenen Formel (4.2) durchgeführt, die für dieses Experiment eine sehr gute Näherung darstellt. Zur Bestimmung der Transmission wurden die Primärpeaks über Bereiche integriert, die keine inelastisch gestreuten Neutronen enthielten. Im Falle der  $^3\text{He}$ -Messungen bedeutete dies, daß die so bestimmte Transmission unterhalb der tatsächlichen lag. Hierfür wurden mit Hilfe von Monte Carlo-Rechnungen Korrekturen berechnet, die jedoch meist sehr klein waren. Dennoch ist diese Korrektur nicht ganz richtig, da sie die Abhängigkeit der Neutronenenergie vom Winkel zwischen Neutronenflugrichtung und Protonenstrahl nicht berücksichtigte.

Die in diesem Sinne vorläufigen Ergebnisse für den totalen inelastischen Wirkungsquerschnitt sind in Abb.4.7 zusammen mit den älteren KEDAK-Daten und den aus integralen Messungen gewonnenen Werten dargestellt. Daneben enthält Abb.4.7 noch die Meßwerte, die man erhält, wenn man in die Integration des Transmissionsspektrums auch das 44,7 keV Niveau einschließt. Man erkennt, daß im Energiebereich unterhalb 250 keV die gemessenen Werte erheblich unterhalb der KEDAK-Daten und auch noch unterhalb des aus integralen Experimenten abgeleiteten Querschnitts liegen. Da die Meßdaten der Abb.4.7 aus den oben dargestellten Gründen möglicherweise noch Anteile des elastischen Streuquerschnitts enthalten, ist es nützlich, die untere Grenze des Querschnittsverlaufs zu kennen. Diese ergibt sich für Neutronenenergien oberhalb 800 keV aus den ebenfalls in Abb.4.7 dargestellten Werten, die unter Einschluß des 44,7 keV Niveaus gewonnen wurden. Sie liegen etwas unterhalb der aus den integralen Experimenten gewonnenen Kurve. Eine Entfaltung des Transmissionsspektrums zeigt deutlich, daß der inelastische Anregungsquerschnitt des 44,7 keV Niveaus auch bei 2 MeV noch große Werte besitzt und nicht, wie auf KEDAK angenommen wurde, bei 1,5 MeV Null wird.

Es wurde jedoch auch bereits bei den in /4.17/ beschriebenen systematischen Änderungen der Querschnitte zur Interpretation der integralen Experimente darauf hingewiesen, daß ein größerer totaler inelastischer Querschnitt, der jedoch hohe Anteile des 44,7 keV Anregungsquerschnitts enthält, in seiner Moderationswirkung mit einem niedrigeren Querschnitt, der keine Streuung zum 44,7 keV Niveau enthält, äquivalent ist. Aufgabe weiterer Untersuchungen wird es daher sein, neben der genaueren Berechnung des Beitrags der elastischen Streuung eine Neuberechnung der integralen Experimente mit dem hier bestimmten Querschnitt durchzuführen.

#### 4.3. Wirkungsquerschnitts-Untersuchungen an Einmaterial-Anordnungen

Das Ziel dieser Arbeiten ist die Überprüfung und Verbesserung von Wirkungsquerschnitten durch Vergleich von gemessenen und gerechneten Neutronenspektren an relativ großen, speziellen Anordnungen. Um daraus eindeutige und möglichst weitgehende Informationen über den zu untersuchenden Wirkungsquerschnitt zu erhalten, müssen folgende Punkte beachtet werden:

- 1) Die Anordnung sollte nur aus dem zu untersuchenden Element, wenn möglich Isotop bestehen.
- 2) Die Geometrie sollte zur Vermeidung methodischer Schwierigkeiten in den Rechnungen möglichst einfach sein.
- 3) Der Fluß sollte sich in dem Energiebereich konzentrieren, der untersucht werden soll, und die Spektren sollten empfindlich von dem zu untersuchenden Querschnitt abhängen.
- 4) Es sollten Messungen an einer Serie von gleichartigen Anordnungen oder an verschiedenen Positionen durchgeführt werden. Dieses Vorgehen erlaubt eine Prüfung der Konsistenz der festgestellten Diskrepanzen zwischen Rechnung und

Messung.

- 5) Wenn möglich, sollen die Spektren absolut gemessen werden. Diskrepanzen zwischen Messung und Rechnung lassen sich dann viel eindeutiger interpretieren.

#### 4.3.1. $^{238}\text{U}$ -Block

Die erste Einmaterialanordnung, an der Spektrumsmessungen mit dem Ziel durchgeführt wurden, Neutronenwirkungsquerschnitte zu überprüfen, war ein großer prismatischer Block aus abgereicher-tem Uran. Dieser Block wurde vor der thermischen Säule des Forschungsreaktors FR2 aufgebaut und bestand aus einem 15,2 cm dicken Natururankonverter (Querschnitt 60,9 x 45,7 cm) und dem Hauptteil aus abgereichertem Uran (0,4%  $^{235}\text{U}$ ; Querschnitt 81,3 x 83 cm; Länge 106,7 cm) (Abb.4.8). Die Neutronenspektren wurden an verschiedenen Orten auf der zentralen Achse des Blocks mit kugelförmigen Protonenrückstoß- und  $^3\text{He}$ -Halbleiterspektrometern gemessen /4.17/. Zur Berechnung der Spektren wurden ein- und zweidimensionale  $S_n$ -Codes und 208 bzw. 26 Energiegruppen verwendet. Durch einen detaillierten Vergleich der mit beiden Codes gewonnenen Ergebnisse konnte gezeigt werden, daß eindimensionale Buckling-korrigierte Rechnungen für die Beschreibung der Spektren an allen Orten auf der zentralen Achse des Uranblocks geeignet sind.

Die Kerndaten, die dem 208-Gruppensatz, der den Energiebereich von 1 keV bis 10,5 MeV in 196 Feingruppen unterteilt, zu Grunde liegen, entstammen der Kerndatenbibliothek KEDAK (1971). Ausgehend von diesen Daten wurden  $S_g$ -Rechnungen zur systematischen Untersuchung der Empfindlichkeit der Spektren gegen Querschnittsänderungen durchgeführt. Bei einer Änderung aller Kerndaten innerhalb vernünftiger Grenzen stellte sich heraus, daß die Spektren sehr empfindlich gegen Änderungen von  $\Sigma_{\text{capt}}$  und  $\Sigma_{\text{in}}$  sind, während alle anderen Daten die Spektren nur schwach beein-

flussen. Es konnte auch gezeigt werden, daß die Verwendung der Transportnäherung für die elastische Streuung an  $^{238}\text{U}$  zu vernachlässigbaren Fehlern in den Spektren führt.

Die gemessenen Spektren in 71 cm Entfernung von der Quelle sind zusammen mit der 208-Gruppen- $S_0$ -Rechnung in Abb.4.8 dargestellt.

Die verwendeten KEDAK-Daten zeigt die Abb.4.9. Aus den Empfindlichkeitsuntersuchungen muß man schließen, daß die großen Diskrepanzen zwischen den experimentellen und den theoretischen Spektren bei 1,6 MeV bzw. zwischen 10 und 60 keV hauptsächlich auf den totalen inelastischen Streuquerschnitt von  $^{238}\text{U}$  zurückzuführen sind, der im Energiebereich von 800 keV bis 2 MeV zu hoch ist. Die Einführung des reduzierten inelastischen Streuquerschnitts von Abb.4.9 in die Rechnung führt bereits zu einer wesentlich besseren Übereinstimmung zwischen 30 keV und 2 MeV. Zur weiteren Verringerung der verbleibenden Diskrepanzen sind jedoch die in Abb.4.9 gezeigten zusätzlichen Veränderungen des totalen inelastischen Streuquerschnitts und des Einfangquerschnitts von  $^{238}\text{U}$  notwendig. Hervorzuheben ist insbesondere die starke Reduktion des Einfangquerschnitts unterhalb 30 keV, die die einzige vernünftige Erklärungsmöglichkeit für Diskrepanzen zwischen Experiment und Theorie in diesem Energiebereich ist und sich in guter Übereinstimmung mit neuesten differentiellen Messungen /4.18/ befindet.

Da die Schlußfolgerungen jedoch nicht im ganzen Energiebereich so eindeutig sind, müssen den empfohlenen Querschnitten von Abb.4.9 gewisse Fehler zugeordnet werden; diese lassen sich abschätzen aus dem Einfluß anderer vernünftiger Kerndatenänderungen zur Erklärung der Diskrepanzen. Im Falle des totalen inelastischen Streuquerschnitts von  $^{238}\text{U}$  sind dies Streumatrixänderungen, die die empfohlenen Werte zwischen 1 und 2 MeV um bis zu 20% und unterhalb 1 MeV um bis zu 5% wieder anheben können. Es muß daher betont werden, daß unter Beachtung der ge-

nannten Variationsmöglichkeiten von 20% bzw. 5% aus den hier beschriebenen Spektrumsmessungen in erster Linie konsistente totale inelastische Streuquerschnitte und Matrizen abgeleitet wurden.

Die adjustierten Querschnitte wurden auf die Neuberechnung einiger gegen  $^{238}\text{U}$ -Querschnitte empfindlicher Anordnungen angewendet und führten durchweg zu erheblich besseren Übereinstimmungen zwischen experimentellen und theoretischen Ergebnissen als die KEDAK-Daten. Die hier abgeleiteten Resultate bestätigen auch die von Kiefhaber /4.19/ aus Kritikalitätsberechnungen für eine Reihe verschiedener Reaktoren gewonnenen Ergebnisse, die ebenfalls in Abb.4.9 eingetragen sind.

#### 4.3.2. Eisen

Es wurden bisher zwei Meßreihen durchgeführt. In der ersten Meßreihe wurden zylindrische Anordnungen untersucht. Die 14 MeV-Neutronenquelle befand sich im Zentrum einer Stirnfläche und gemessen wurde das auf der anderen Stirnseite in axialer Richtung austretende Leckage-Spektrum. In der zweiten Meßreihe wurden die Ausflußspektren von Eisenkugeln untersucht, in deren Zentrum sich eine  $^{252}\text{Cf}$ -Spaltneutronenquelle befand.

#### Zylinder, 14 MeV-Neutronenquelle

Abb.4.10 zeigt das mit einem NE 213-Szintillator nach der Flugzeit-Methode gemessene Ausflußspektrum eines Eisenzylinders mit 30 cm Durchmesser und 30 cm Länge und im Vergleich dazu (mit dem Monte Carlo Code KAMCCO /4.20/) berechnete Spektren. In den ersten Rechnungen /4.21/ wurde die inelastische Streuung mit dem Verdampfungsmodell behandelt. Die beim Vergleich mit den Messungen festgestellte Diskrepanz oberhalb 6 MeV von etwa einer Größenordnung war u.a. Anlaß für die Einführung von Preequilibrium-Neutronen /4.22/. Trotz kleiner verbleibender Diskrepanzen ist die dadurch erzielte Verbesserung erheblich.

Kugeln,  $^{252}\text{Cf}$ -Spaltneutronen

Die Ausflußspektren von insgesamt sechs (Durchmesser 15, 20, 25, 30, 35, 40 cm) Eisenkugeln mit einer  $^{252}\text{Cf}$ -Quelle im Zentrum wurden mit Protonenrückstoßzählrohren im Energiebereich 0,1 bis 5 MeV und mit  $^3\text{He}$ -Halbleiterdetektoren zwischen 0,2 und 8 MeV bestimmt. Da das Spektrum oberhalb etwa 0,9 MeV praktisch nur vom inelastischen Streuquerschnitt bestimmt wird, erlaubt ein Vergleich der gemessenen und gerechneten Spektren eine sehr genaue Prüfung dieses Querschnitts. In Abb.4.11 sind die Protonenrückstoßergebnisse und DTK-Rechnungen mit auf KEDAK beruhenden Daten für die Eisenkugel mit 35 cm Durchmesser dargestellt. Messung und Rechnung sind jeweils auf ein Quellneutron bezogen, so daß die Absolutwerte miteinander verglichen werden können. Insgesamt stimmen Messung und Rechnung sehr gut überein. Oberhalb 0,9 MeV gibt es geringe Abweichungen im Gebiet um 1 MeV, bei 1,6 sowie 3 MeV. Die großen Abweichungen oberhalb 4,5 MeV sind sicher zum Teil auf systematische Fehler in diesen letzten beiden Meßpunkten zurückzuführen. Die genauere Analyse für alle sechs Kugeln führt zu folgendem Ergebnis:

Energiebereich (MeV)	$\sigma_{in}$ (KEDAK)
> 4,5	≈ 10% zu klein
3	5% zu klein
1,3 - 2,2	3-4% zu klein
1,1 und 0,9	3% zu groß

Die Ergebnisse mit dem  $^3\text{He}$ -Spektrometer bestätigen im wesentlichen diese Schlußfolgerungen aus den Protonenrückstoß-Messungen.

#### 4.3.3. Lithium-Kugel

Die beiden neutronenphysikalischen Probleme des Fusionsreaktors auf der Basis der Deuterium-Tritium-Reaktion sind die Bruterate für das Tritium im Lithium-Blanket und die Leistungsverteilung. Bei beiden Problemen ist die Kenntnis des Neutronenspektrums am wichtigsten, danach die der Kerndaten.

Um die Berechnungen möglichst zu vereinfachen, wurde - wie bei den Eisenuntersuchungen - eine Kugelgeometrie verwendet. Die Lithium-Kugel besteht aus metallischem Lithium natürlicher Isotopenzusammensetzung. Sie wurde durch Schmelzen in einem Stahl-Kugelbehälter von 1 m Durchmesser und 6 mm Wandstärke geformt. Zum Einführen des Beschleunigerstrahlrohrs und zum Messen gibt es drei Kanäle mit einer Wandstärke von 0,5 mm und ca. 50 mm Durchmesser. Die Meßkanäle werden, soweit es die jeweilige Messung erfordert, mit passenden lithiumgefüllten Zylindern von ebenfalls 0,5 mm Wandstärke gefüllt.

Gerichtete Neutronenspektren an ausgewählten radialen Positionen und unter definierten Winkeln zum Radiusvektor werden mit der Flugzeitmethode bestimmt, skalare Neutronenspektren im Energiebereich 50 keV bis 1,5 MeV werden mit den kugelförmigen Rückstoßprotonen-Proportionalzählrohren gemessen. Die zwischen ersten experimentellen Ergebnissen und  $S_{16}$ -Rechnungen mit DTK gefundenen Abweichungen zeigt Abb.4.12 am Beispiel des radial gerichteten Flusses bei  $r = 32$  cm. Die Skalarflüsse als Funktion des Radius weichen ebenfalls stark von den experimentellen ab. Die Suche nach der Herkunft der Diskrepanzen ist im Gange, wobei die konkurrierende Berechnung der Spektren mittels der Monte Carlo-Methode, die ein ganz anderes Streumodell verwendet, eine wesentliche Hilfe darstellt. Die damit erzielten Ergebnisse sind wesentlich näher bei den experimentellen als die mittels der  $S_N$ -Methode berechneten.

Literatur

- 4.1 Smith, A.B.: Proc. Cons. Meet. Prompt Fission Neutron Spectra, IAEA, Wien, 1972, S.3
- 4.2 Grundl, J.: Nucl. Sci. Eng. 31 (1968) 191
- 4.3 Mc Elroy, W.: Nucl. Sci. Eng. 36 (1969) 109
- 4.4 Werle, H., and Bluhm, H.: J. Nucl. Energy 26 (1971) 165
- 4.5 Smith, A.B.: Nucl. Sci. Eng. 44 (1971) 439
- 4.6 Batchelor, R. and Hyder, H.R.Mck.: J. Nucl. Energy 3 (1956) 7
- 4.6a Keepin, G.R.: in Proc. Delayed Fission Neutrons, Wien (1967) IAEA STI/PUB/234 (1969)
- 4.7 Burgy, M. et al.: Phys. Rev. 70 (1946) 104
- 4.8 Fieg, G.: KFK-Report INR-4/71-31 (1971)
- 4.9 St. Romain, F.A. et al.: Phys. Rev. 126 (1962) 1794
- 4.10 Werle, H.: KFK-Report INR-4/70-25, Report ORNL-tr-2415 (1970)
- 4.11 Obst, A.W. et al.: Phys. Rev. C5 (1972) 738
- 4.12 Werle, H. et al.: Z. Physik 259 (1973) 275
- 4.13 Geiger, K.W. et al.: Int. J. appl. Radiat. Isotopes 24 (1972) 165
- 4.14 Beyster, J.R. et al.: Phys. Rev. 98 (1955) 1216
- 4.15 Bethe, H.A.: "The Reciprocity Theorem in Neutron Scattering", LA-1428 (1952)
- 4.16 Bethe, H.A. et al.: J. Nucl. Energy I, 3 (1956) 207, 3 (1956) 273, 4 (1957) 3, 4 (1957) 147
- 4.17 Bluhm, H.: Report KFK 1798 (1973)

- 4.18 Fricke, M.P. et al.: "Measurements of cross sections for the radiative capture of 1 keV to 1 MeV neutrons by Mo, Rh, Gd, Ta, W, Re, Au and  $^{238}\text{U}$ ", IAEA Proc. Nuclear Data for Reactors, Vol.II, S.869, Wien, 1970
- 4.19 Kiefhaber, E.: Report KFK 1572 (1972)
- 4.20 Küsters, H. et al.: Report KFK 1632 (1973)
- 4.21 Rusch, D. et al.: "Neutronenspektrumsmessungen zur Überprüfung von Kerndaten", Reaktortagung 1974, Berlin
- 4.22 Borgwaldt, H. et al.: "Bestimmung verbesserter Energieverteilungen für inelastisch gestreute Neutronen durch Berücksichtigung von Preequilibrium-Prozessen und ihre Prüfung am Experiment", Reaktortagung 1975, Nürnberg
- 4.23 Günther, C., Kinnebrock, W.: Report KFK 1381 (1971)

## 5. Schlußfolgerungen

Der Beitrag sollte anhand einiger hier in Karlsruhe durchgeführten Arbeiten einen Überblick geben über den Stand der Neutronenspektroskopie auf dem Gebiet schneller Reaktoren. Die Entwicklung ist zu einem gewissen Abschluß gekommen, weil einmal durch die vielfältigen, auch internationalen, Vergleichsmessungen ein hoher Grad an Zuverlässigkeit und Genauigkeit erreicht wurde und weil zum anderen bei schnellen Reaktoren zunehmend mehr technische Probleme in den Vordergrund treten. Trotzdem wird die Neutronenspektroskopie noch für eine Reihe von Jahren zur Überprüfung von Rechenmethoden und Daten für schnelle Reaktoren von Bedeutung sein.

Neue Anwendungsgebiete ergeben sich für die Spektroskopie schneller Neutronen in Zusammenhang mit Fusionsreaktoren und in der Medizin. Zwei wichtige Größen des Fusionsreaktors sind

die Brutrate und die Leistungsverteilung. Beide sind eng mit dem Neutronenspektrum gekoppelt. Mit dem Einsatz der Neutronentherapie und nuklearer Herzschrittmacher in der Medizin werden auch hier Neutronenspektrumsmessungen notwendig werden. In der Neutronentherapie wird man die infolge der komplizierten Bestrahlungsgeometrie schwierigen Berechnungen des Neutronenfeldes überprüfen müssen. Bei nuklearen Herzschrittmachern ist eine möglichst geringe Dosis von ausschlaggebender Bedeutung. Abb.5.1 zeigt als Beispiel das Neutronenspektrum einer  $^{238}\text{Pu}$ -Herzschrittmacher-Kapsel. Die Messungen geben Aufschluß über mögliche Verunreinigungen, die zu einer Erhöhung der Neutronendosis über  $\alpha$ -n-Reaktionen führen, und liefern damit Hinweise, wie das Reinigungs- und Herstellungsverfahren gezielt verbessert werden kann.

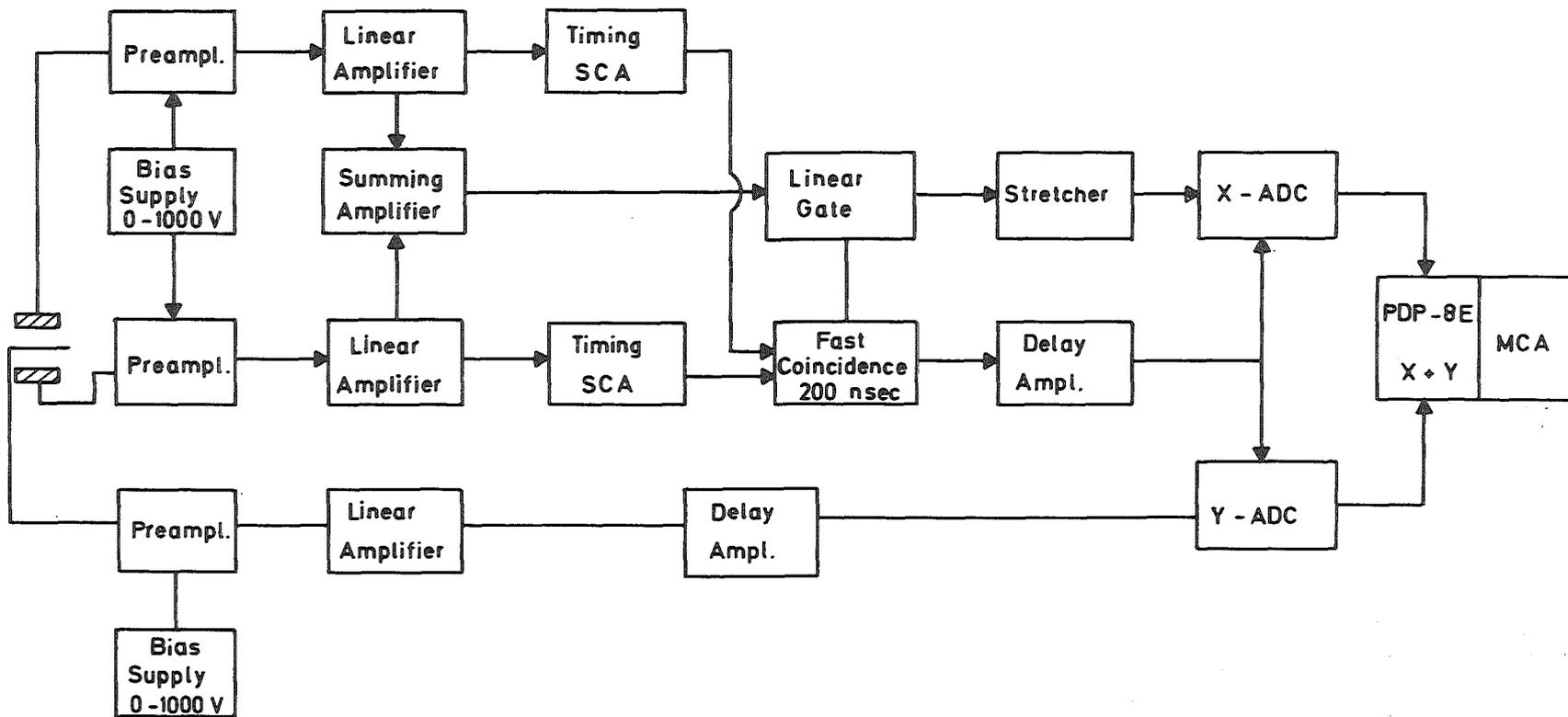


Abb.2.1: Block-Diagramm des  $^3\text{He}$ -Spektrometers.

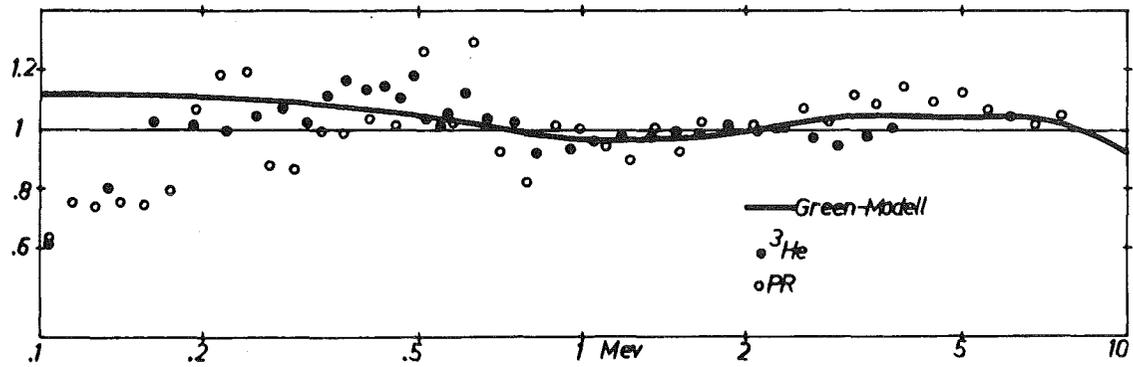


Abb.3.1:  $^{252}\text{Cf}$ -Spaltneutronenspektrum  
Verhältnis Green-Modell /3.6/ und Experiment /3.4/ zu  
Maxwell-Verteilung ( $\bar{E} = 2.109 \text{ MeV}$ ). Green-Modell inner-  
halb Statistik identisch mit Meßwerten von Green et al.  
/3.6/.

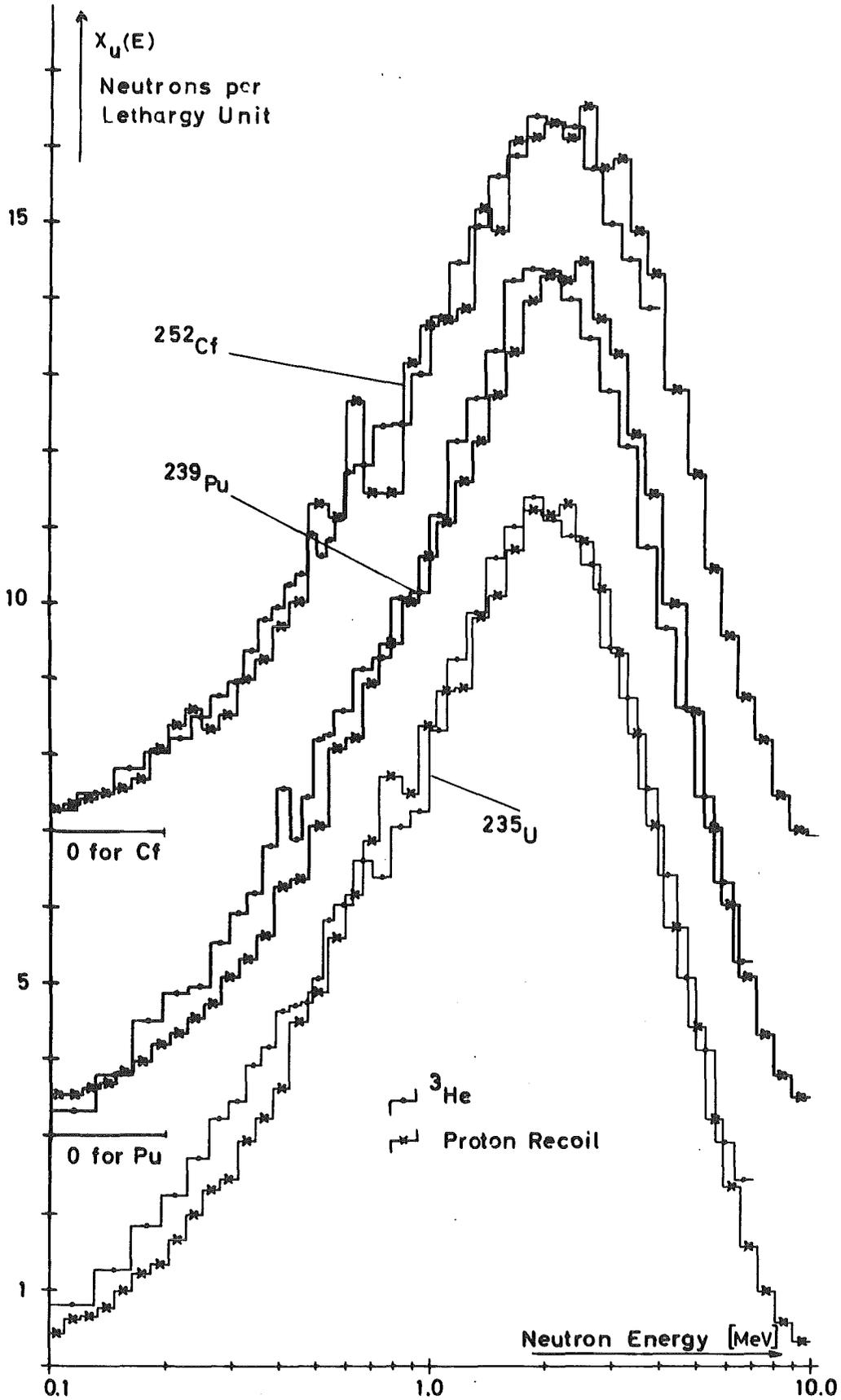


Abb. 4.1: Gemessene prompt Spaltneutronenspektren von  $^{235}\text{U}$ ,  $^{239}\text{Pu}$  (thermische Spaltung) und  $^{252}\text{Cf}$  /4.4/.

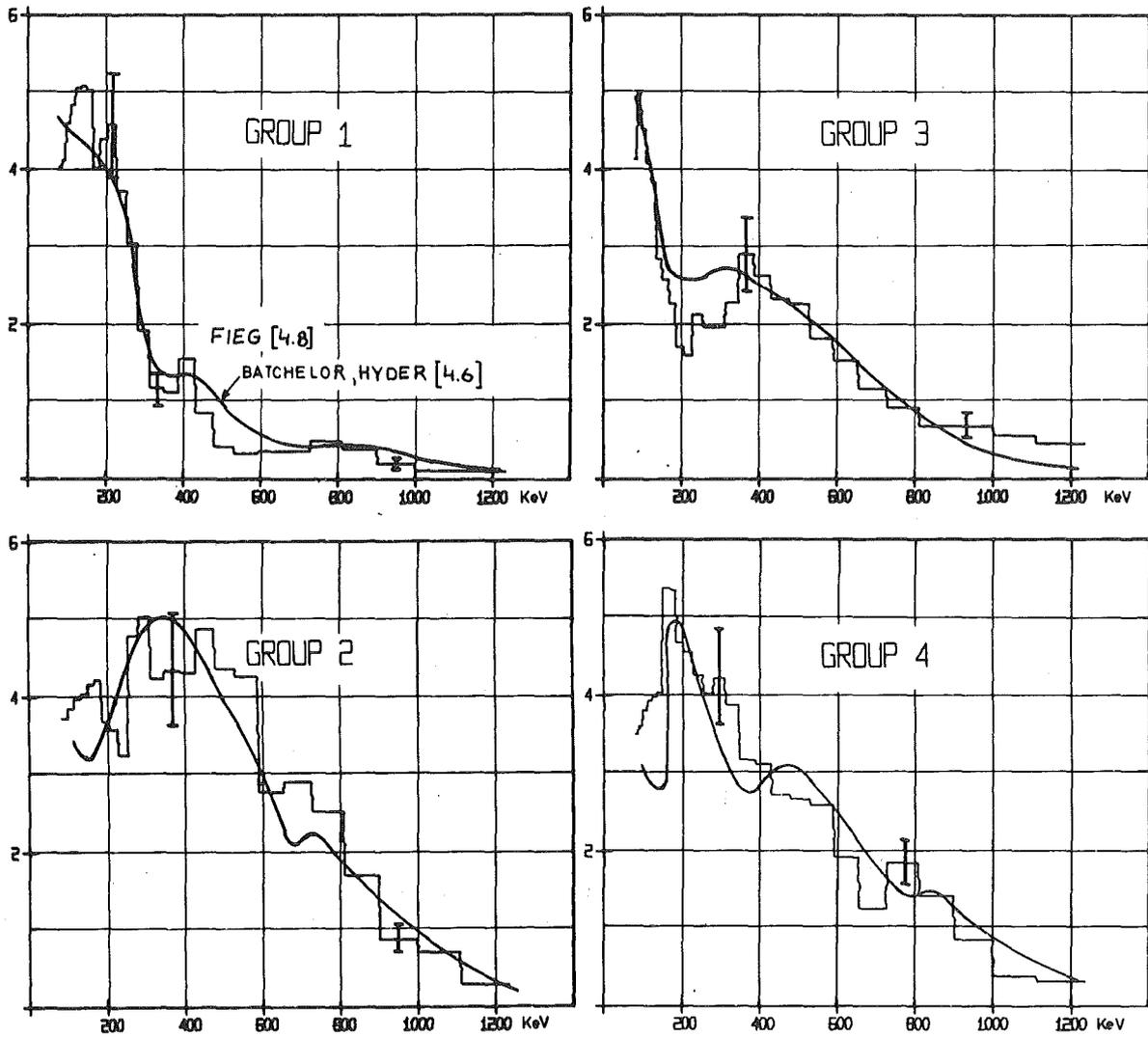


Abb. 4.2: Verzögerte Spaltneutronen von  $^{235}\text{U}$  (thermische Spaltung)  
Gruppenspektren (Neutronen pro Energieintervall).

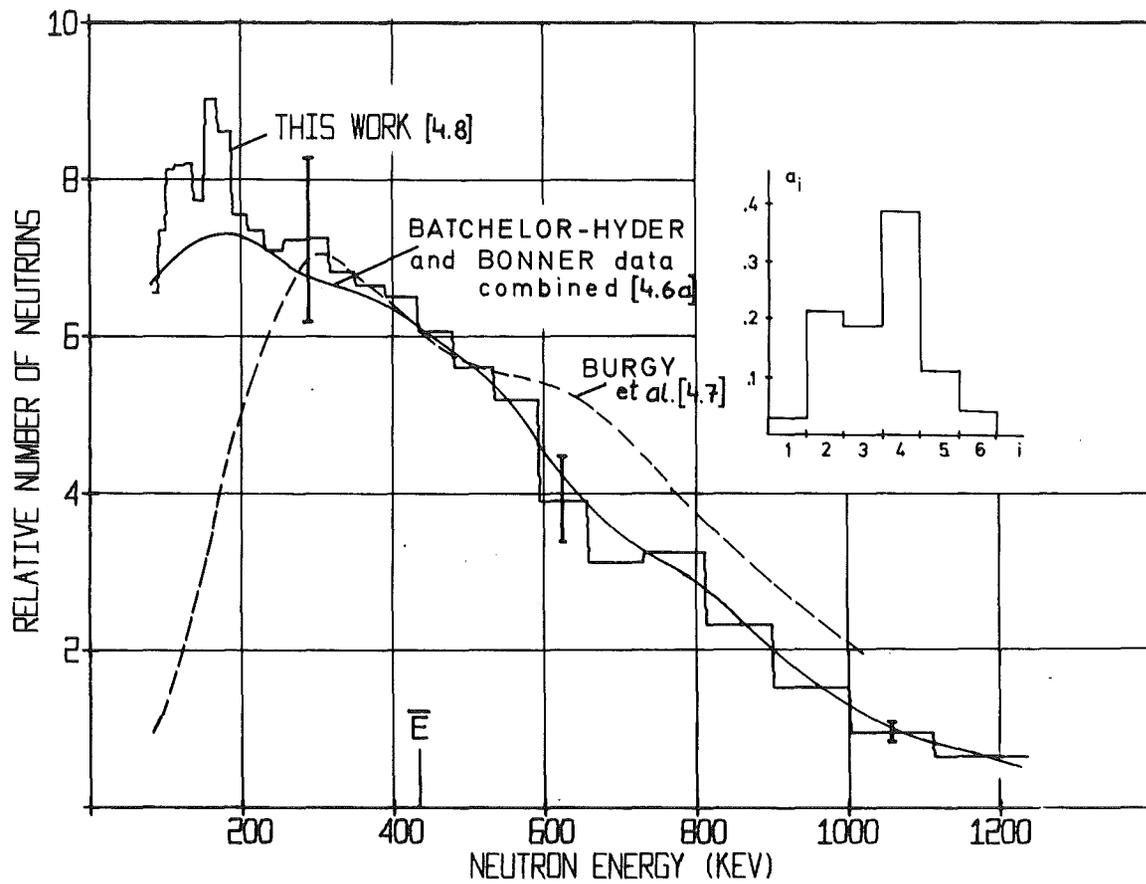


Abb.4.3: Verzögerte Spaltneutronen von  $^{235}\text{U}$  (thermische Spaltung)  
Stationäres Spektrum (Neutronen pro Energieintervall).

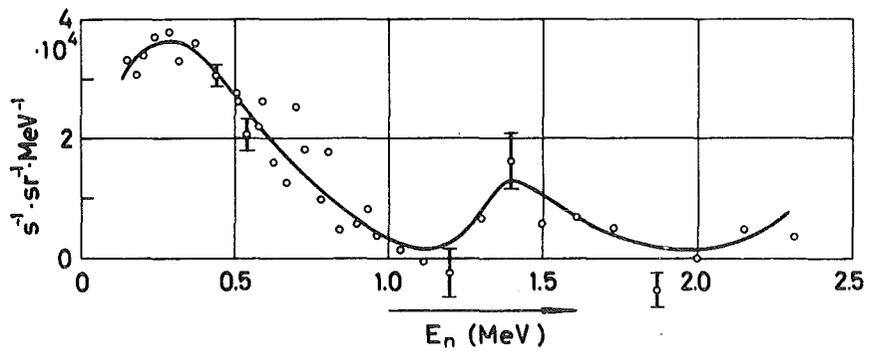


Abb.4.4: Niederenergetisches Neutronenspektrum einer 740 mC Am-Be-Quelle /4.12/.

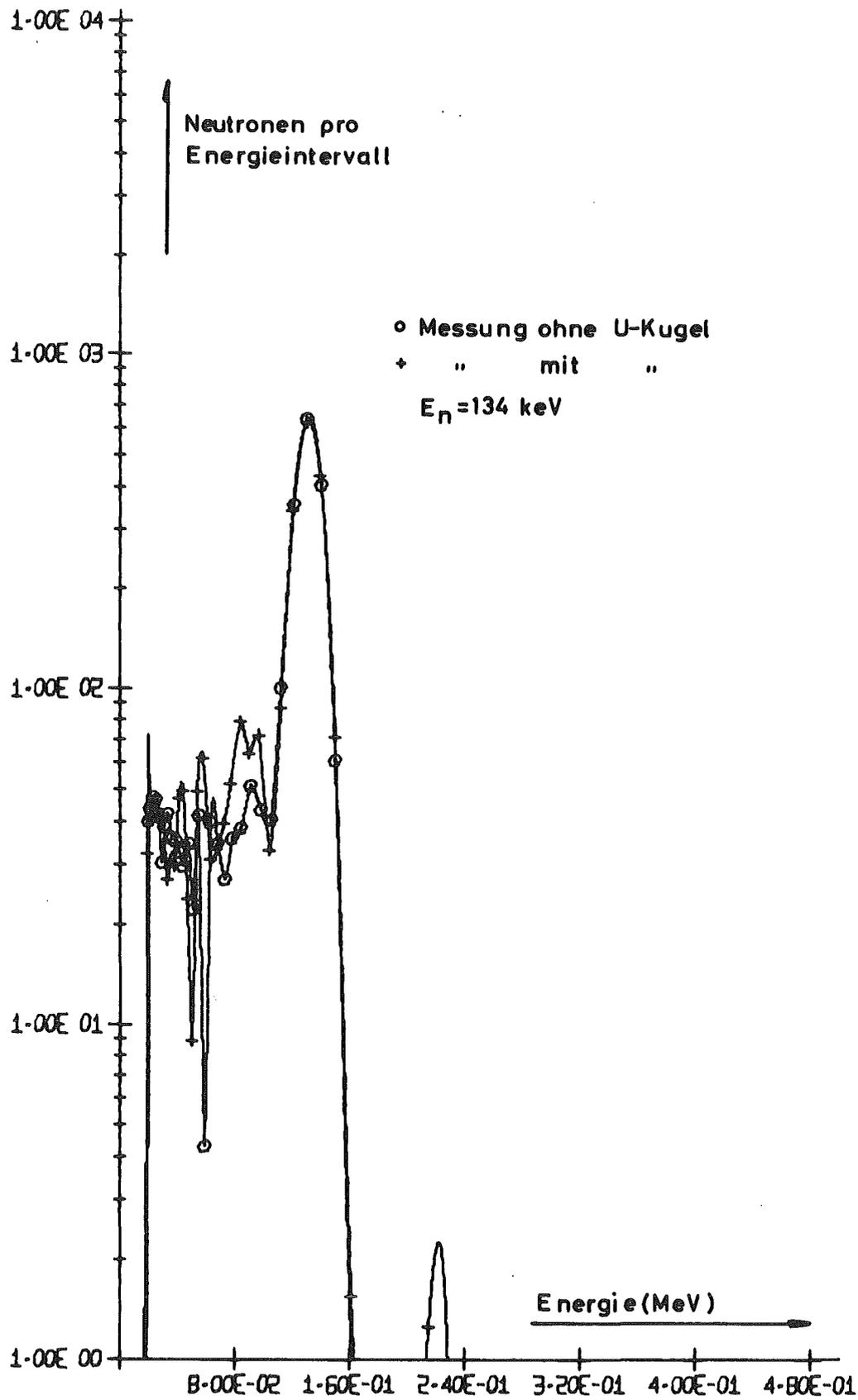


Abb.4.5: Transmissionsspektrum einer  $^{238}\text{U}$ -Kugelschale, gemessen mit einem Protonen-Rückstoß-Kugelzähler mit 1 atm  $\text{H}_2$ -Füllung Neutronenenergie 134 keV.

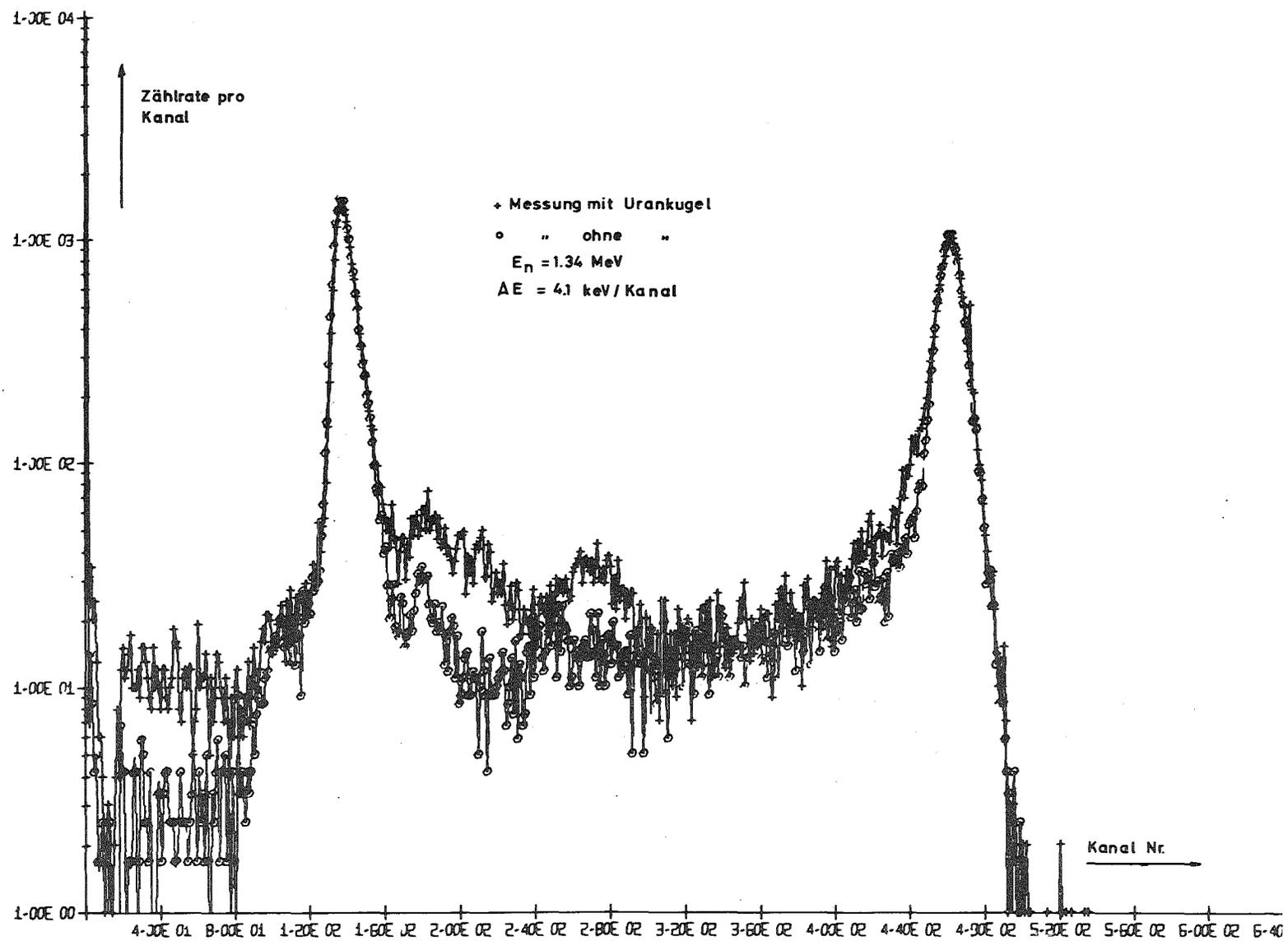


Abb.4.6: Transmissionsspektrum einer  $^{238}\text{U}$ -Kugelschale, gemessen mit einem  $^3\text{He}$ -Spektrometer. Neutronenenergie 1.34 MeV.

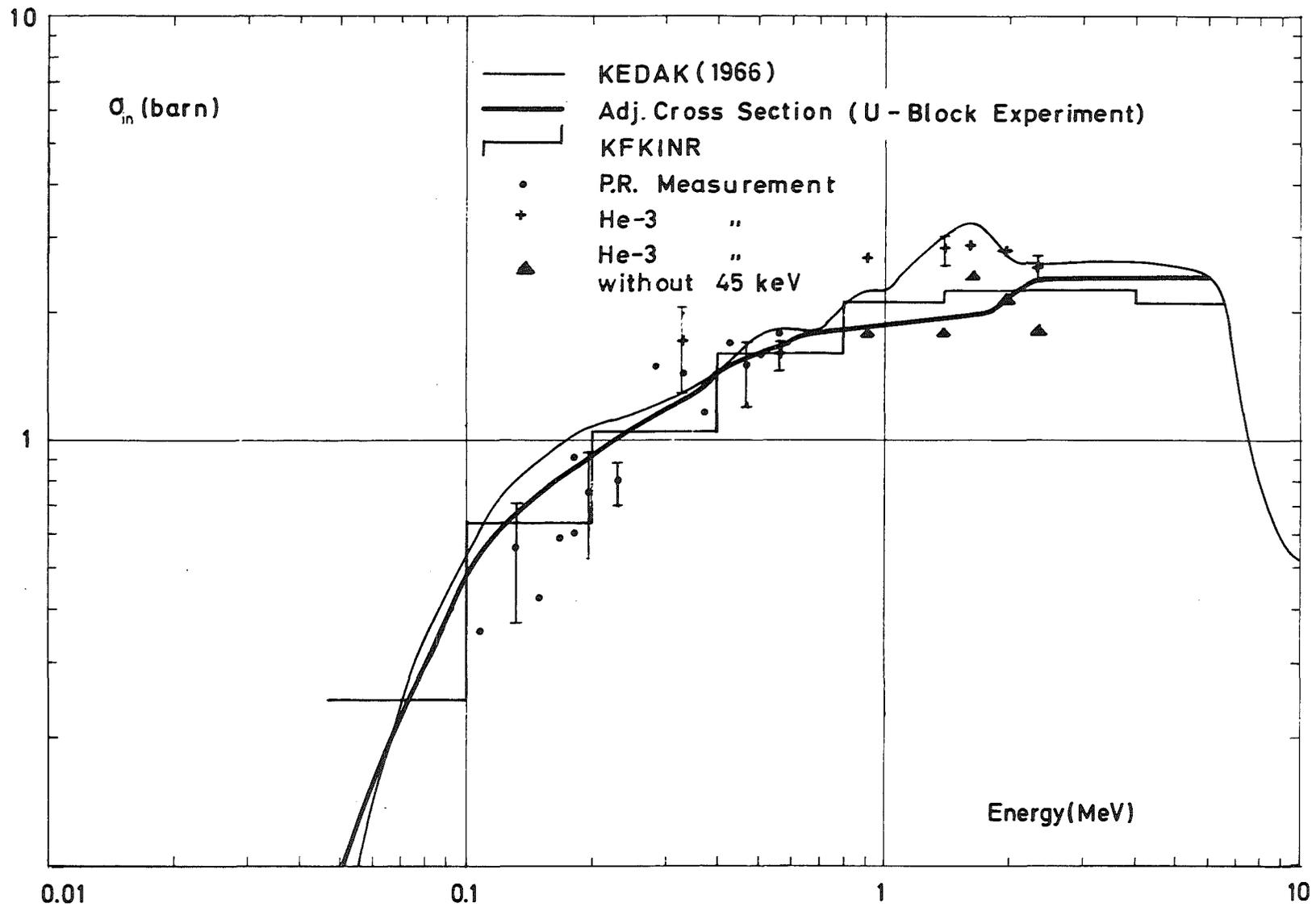


Abb.4.7: Inelastischer Wirkungsquerschnitt von  $^{238}\text{U}$  Ergebnisse der Urankugeltransmissionsmessungen und Vergleich mit anderen Daten.

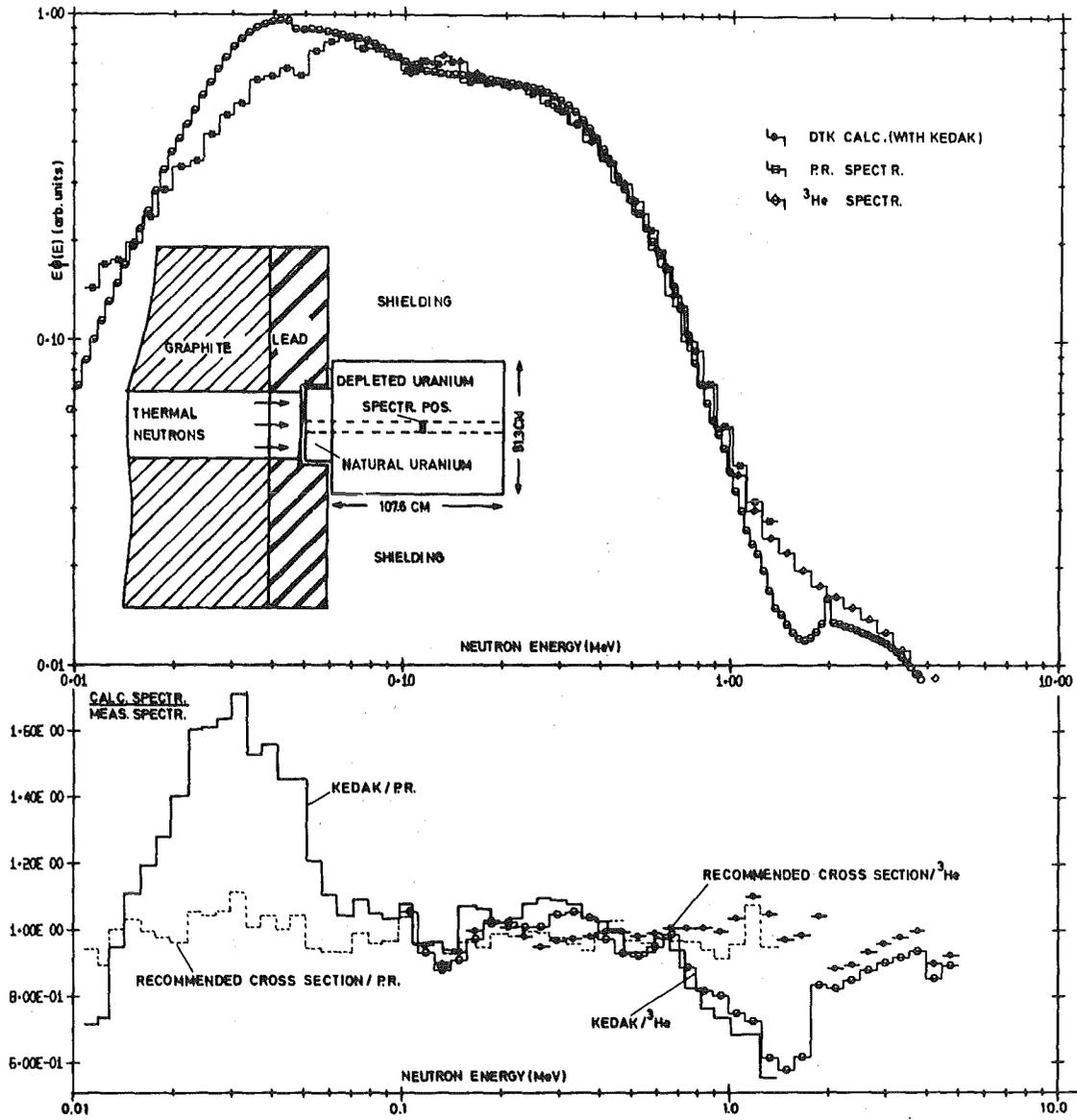


Abb. 4.8: Aufbau des Uranblocks mit Vergleich von gemessenen und gerechneten Spektren auf der Achse.

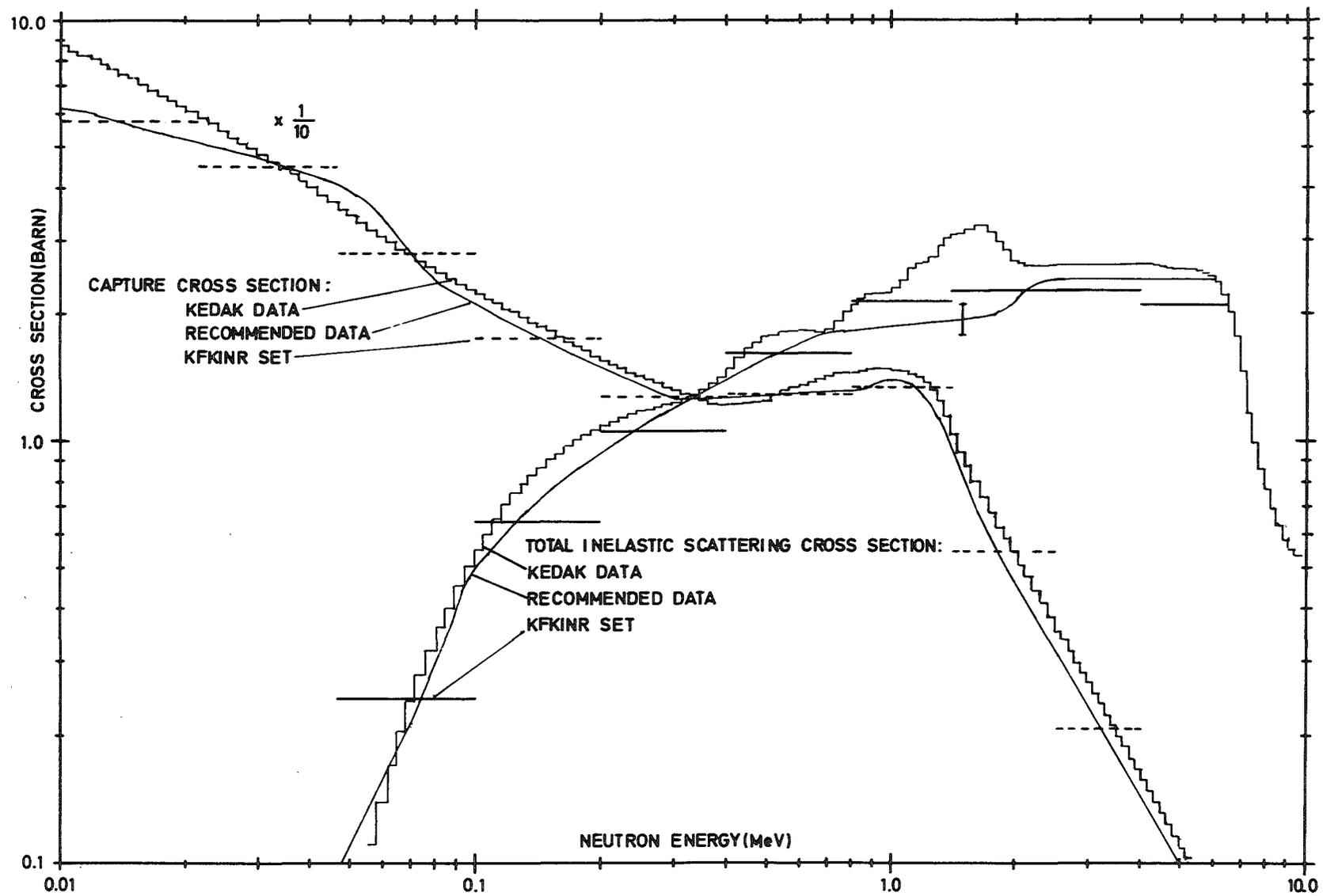


Abb.4.9: Vergleich der aus den Uranblockmessungen abgeleiteten Querschnitte mit KEDAK- und KFK-INR-Daten.

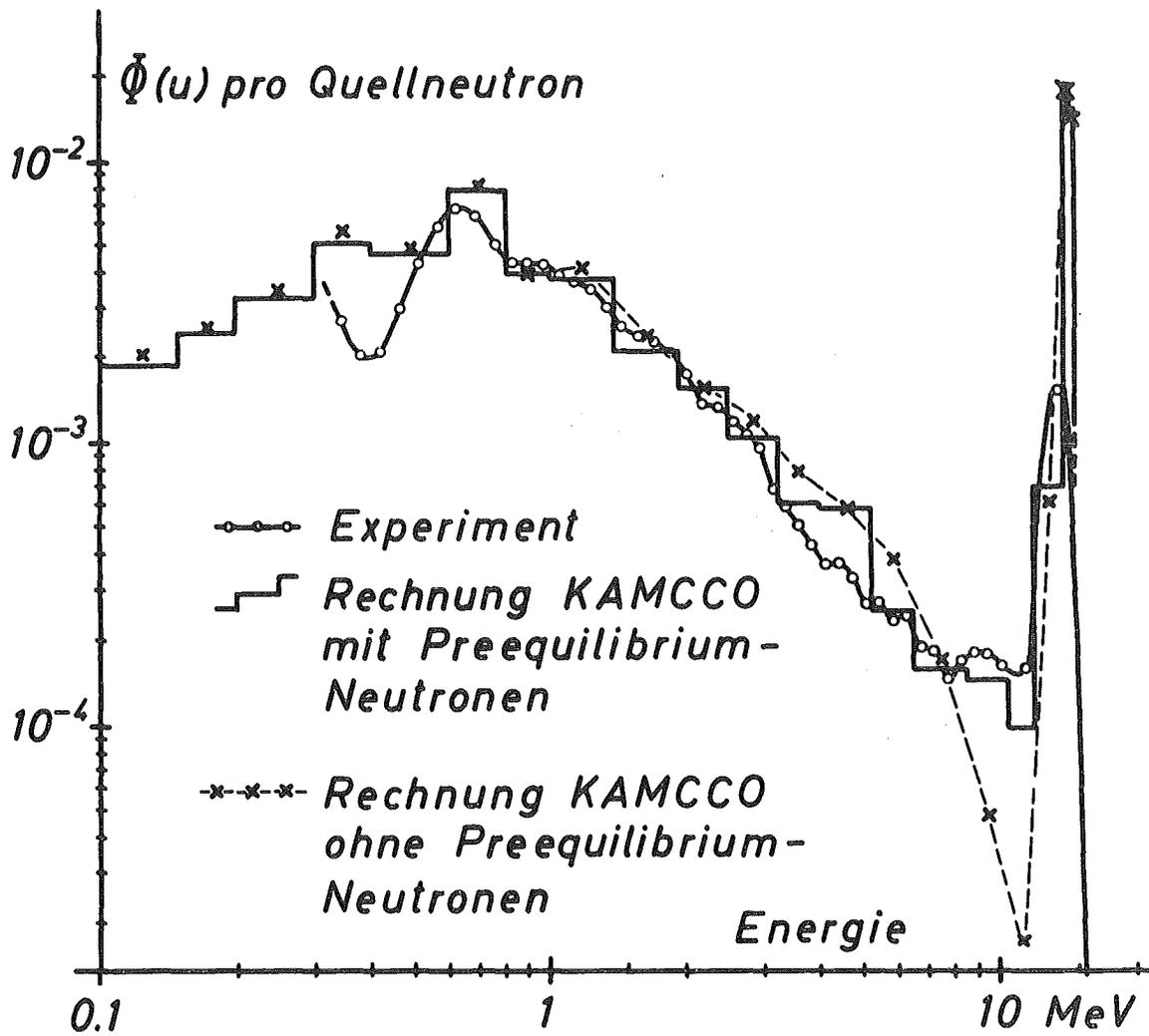


Abb.4.10: Ausflußspektrum der Stirnfläche des Eisenzylinders (30  $\phi$  · 30 cm).

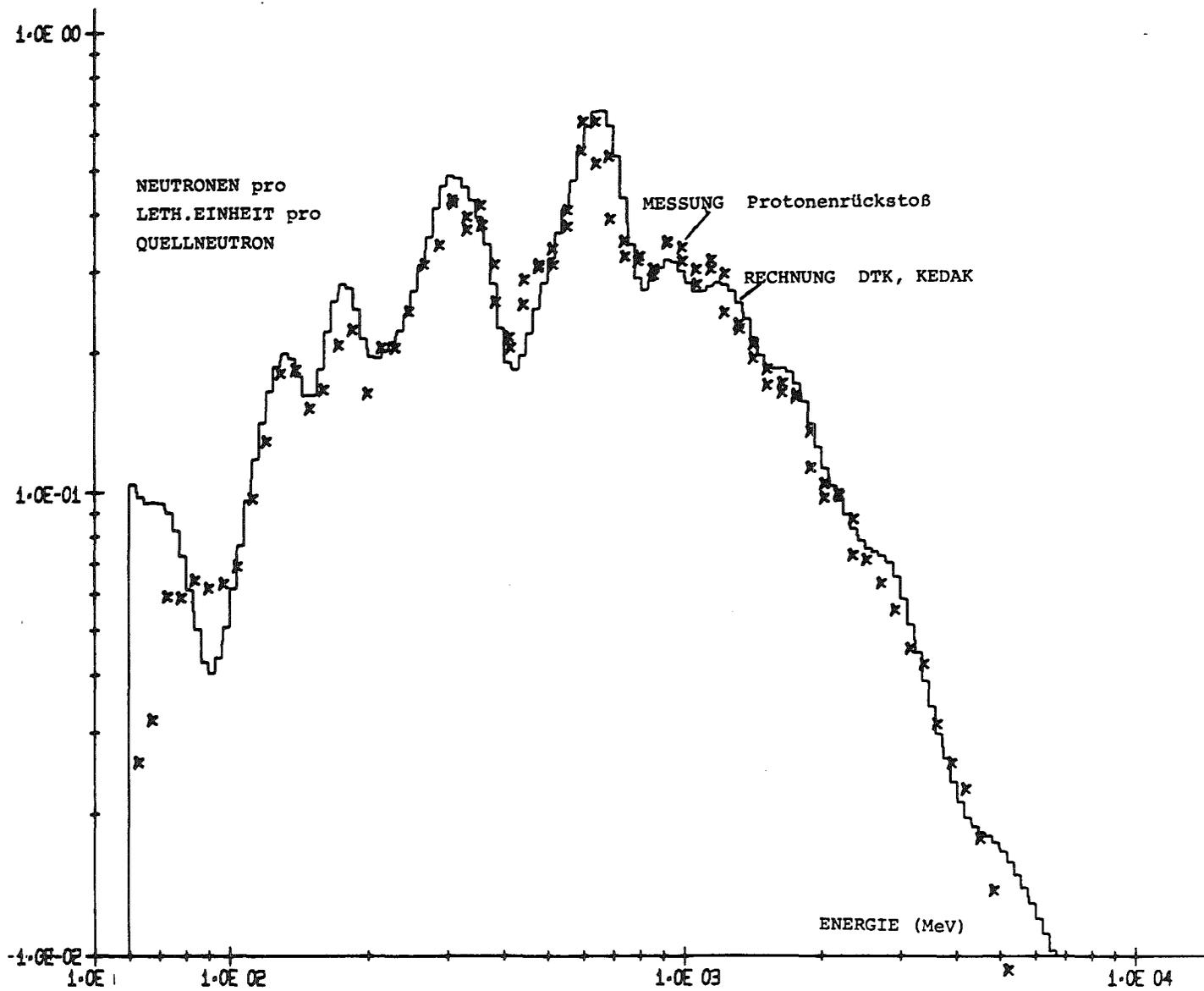


Abb.4.11: Ausflußspektrum der Eisenkugel mit 35 cm Durchmesser.

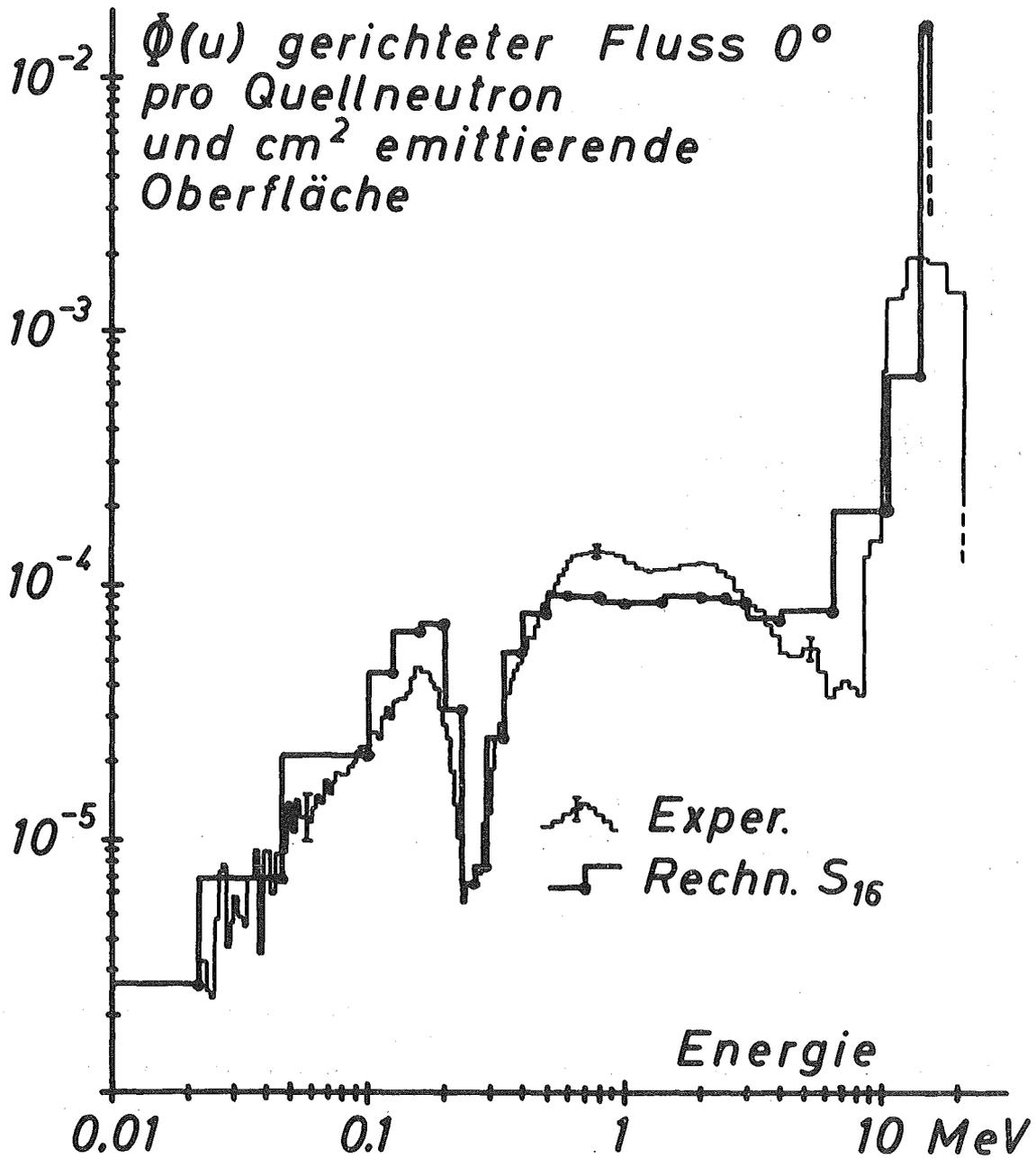


Abb.4.12: Neutronenspektrum der Lithium-Kugel bei  $r=32$  cm in radialer Richtung.

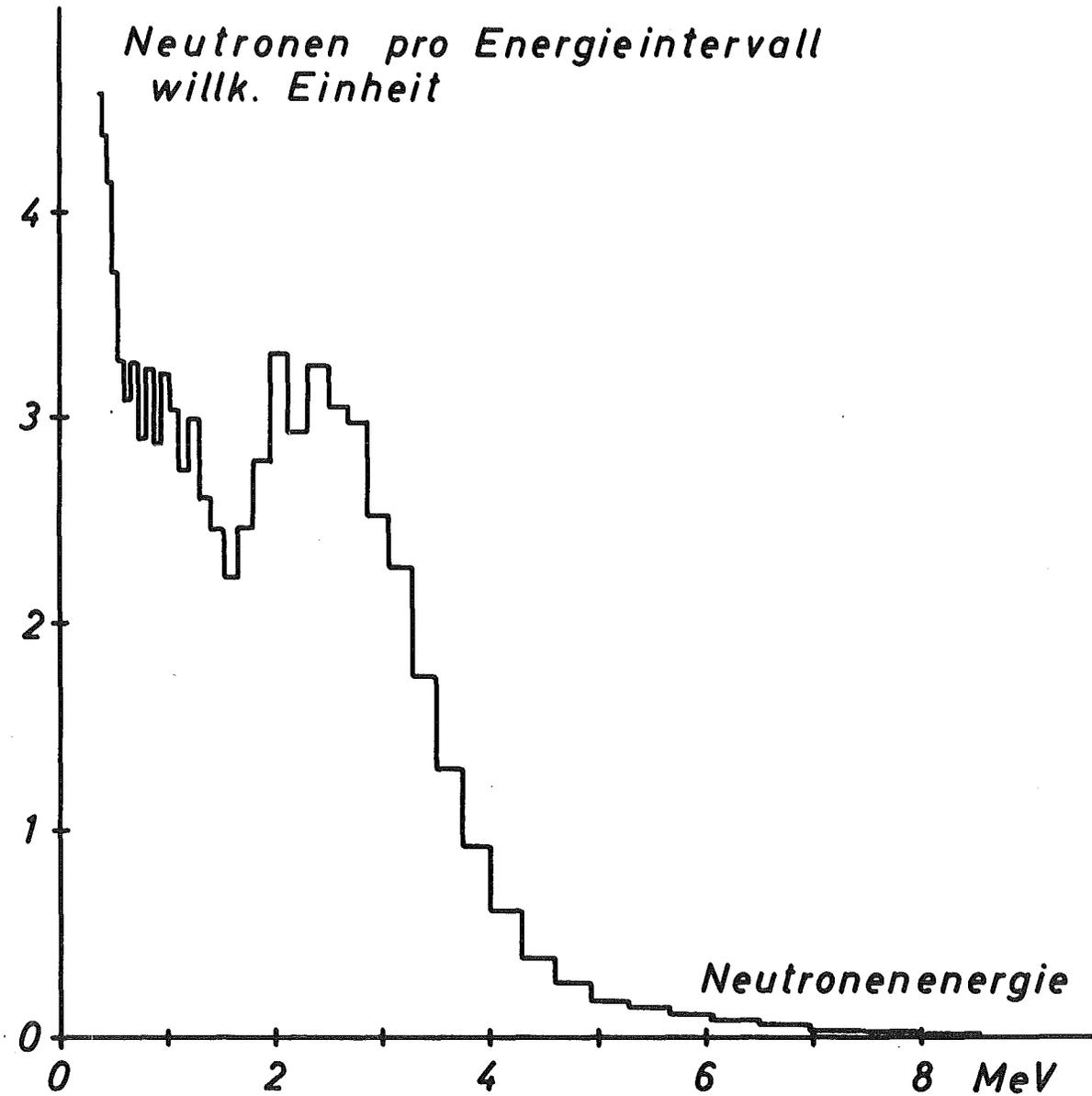


Abb.5.1: Neutronenspektrum einer  $^{238}\text{Pu}$ -Herzschrittmacherkapsel gemessen mit einem NE213-Szintillator.

Thermodiffusion in oxidischen Kernbrennstoffen

M.Bober und G.Schumacher

Institut für Neutronenphysik und Reaktortechnik

Kernforschungszentrum Karlsruhe

1. Einleitung
2. Was ist Thermodiffusion
3. Flüsse und Kräfte
4. Anwendung der Flußgleichungen auf Kernbrennstoffe
5. Konkurrierende Transportprozesse in Kernbrennstoffen
6. Beobachtete Entmischungseffekte
  - 6.1. Uran, Plutonium
  - 6.2. Sauerstoff
  - 6.3. Spaltprodukte
7. Berechnung der Überführungswärmen
8. Quantitative Vorhersagen für Brennstäbe schneller Reaktoren
9. Schlußfolgerungen

1. Einleitung

In letzter Zeit wurde mehrfach die Bedeutung der Thermodiffusion für die Veränderung des Brennstoffes während der Bestrahlung im Reaktor diskutiert. Die hohen Temperaturen, denen der Brennstoff im Inneren eines oxidischen Brennstabes ausgesetzt ist und der steile radiale Temperaturgradient, der durch den Wärmetransport zur Brennstabhülle entsteht, lassen Thermodiffusionsprozesse wirksam werden, wodurch eine wesentliche Verlagerung des Sauerstoffs, der Spaltprodukte und sogar der Aktiniden möglich wird. Wir wollen mit dieser Arbeit über den aktuellen Stand der Untersuchung solcher Prozesse berichten.

Die Thermodiffusion in kondensierten Phasen hat ihre Ursache in den unterschiedlichen Energien, die von den Ionen und Atomen im Kristallgitter für einen Platzwechsel aufgebracht werden müssen. In seinen früheren Arbeiten begründete Karl Wirtz ein theoretisches Modell für diese Vorgänge, das als Grundlage für alle späteren Diskussionen über die Überführungswärme bei aktivierten Sprungprozessen diente /1-3/. Seiner Initiative ist es zu danken, daß im Institut für Neutronenphysik und Reaktortechnik frühzeitig mit Experimenten zur Untersuchung der Transportvorgänge in Kernbrennstoffen begonnen wurde und erstmals quantitative Vorhersagen der Entmischungseffekte der Thermodiffusion in Reaktorbrennstäben möglich waren /4-8/. Ausgehend von der Thermodynamik irreversibler Prozesse konnten für Reaktor-brennstoffe allgemein gültige Beziehungen abgeleitet werden, welche die vorkommenden Transportvorgänge beschreiben /9/. Anschließende Untersuchungen befaßten sich zunächst besonders mit der Diskussion der Uran-Plutonium-Verteilung, die in bestrahlten Mischoxidbrennstäben gefunden wurde und später mit der Thermodiffusion des Sauerstoffs /10-12/. Der Transport des Sauerstoffs gewann neben dem der Aktiniden an Interesse, da das Sauerstoffpotential sowohl die Transportvorgänge der übrigen Elemente als auch Reaktionen zwischen Hülle und Brennstoff bzw. Spaltprodukten entscheidend beeinflußt.

Das Phänomen der Thermodiffusion ist schon relativ lange bekannt. Es wurde zum erstenmal von Soret 1881 /13/ an verschiedenen wässrigen Lösungen studiert. Die Thermodiffusion in Gasen konnte von Enskog /14/ und Chapman /15/ aus der kinetischen Gastheorie vorhergesagt und zum erstenmal von Chapman und Dootson beobachtet werden /16/. Durch die Arbeiten von Clusius und Dickel /17/ zur Isotopentrennung rückte sie in den Mittelpunkt des Interesses. Erste theoretische Untersuchungen der Thermodiffusion in festen Phasen wurden auf der Grundlage der irreversiblen Thermodynamik von Eastman /18/ und Wagner /19/ durchgeführt. K.Wirtz /2/ betrachtete das Problem von der Seite der aktivierten atomaren Sprungprozesse, die ein wanderndes Atom oder Ion ausführt, und war damit in der Lage, eine Deutung der Überführungswärme im Kristallgitter zu geben. In der folgenden Zeit wurden, begleitet von einer Reihe von Experimenten, An-

strebungen unternommen, die thermodynamische und kinetische Theorie zu verbessern. Die Experimente mit festen Lösungen beschränkten sich jedoch bisher auf gut zugängliche Systeme, wie sie Halogene oder andere Verbindungen und Metalllegierungen mit relativ hoher Ionen- bzw. Atombeweglichkeit darstellen. Eine Untersuchung der Thermodiffusion in oxidischen Reaktorbrandstoffen erfordert dagegen bei den Experimenten im Laboratorium die Anwendung von so extremen Temperaturen und Temperaturgradienten, wie sie in einem Brennstab im Reaktor auftreten.

Reaktorbrandstoffe bestehen meist aus Oxiden und Karbiden von Uran und Plutonium. Während der Bestrahlung verwandeln sich diese Zwei- oder Dreistoffsysteme durch die Einlagerung der Spaltprodukte in komplizierte Mehrstoffsysteme. In der inneren, sehr heißen Zone der Brennstäbe erleiden alle Atome und Ionen Verschiebungen durch Thermodiffusion, während in der kühleren, äußeren Zone nur die dort immer noch relativ leicht beweglichen Sauerstoff- oder Kohlenstoffatome und die flüchtigen Spaltproduktatome an merklichen Transportvorgängen teilnehmen.

Die Entmischungsvorgänge in den Reaktorbrandstäben müssen beherrscht werden wenn man ein optimales und sicheres Konzept für den Bau von Reaktorbrandelementen entwerfen will, da sie neben deren neutronenphysikalischen Eigenschaften auch die Brennstoff-Hüllreaktionen und damit die Lebensdauer der Brandelemente beeinflussen. Deshalb nahm das Interesse an der Bestimmung der Konzentrationsverteilung der Elemente in bestrahlten Brennstäben stark zu, als erkannt wurde, daß wirksame Transportprozesse existieren. Unsere experimentellen Arbeiten, die außerhalb des Reaktors in Diffusionsapparaturen durchgeführt wurden zeigten, daß für die Entmischung der Aktiniden und Spaltprodukte im wesentlichen zwei Prozesse verantwortlich sind, Thermodiffusion und Verdampfung und Kondensation im Temperaturgradienten /7, 8, 20/. Für den Transport von Sauerstoff und flüchtigen Spaltprodukten kommt noch ein dritter Prozeß hinzu, der Transport über sauerstoffreiche Verbindungen in der Gasphase.

In den folgenden Kapiteln soll gezeigt werden, wie die Thermodiffusion in Reaktorbrennstoffen beschrieben werden kann und welche Entmischungseffekte in Experimenten und Nachbestrahlungsuntersuchungen beobachtet wurden. Aus den experimentell gefundenen Konzentrationsverteilungen werden Überführungswärmen ausgerechnet, mit denen quantitative Voraussagen von Entmischungseffekten in oxidischen Brennstäben schneller Reaktoren gegeben werden. Zuletzt werden die Auswirkungen dieser Entmischungseffekte auf das Verhalten der Brennstäbe dargestellt.

## 2. Was ist Thermodiffusion

Setzt man einen homogenen festen Stoff, der aus unterschiedlichen Elementen aufgebaut ist, längere Zeit einem Temperaturgradienten aus, so stellt man eine Entmischung fest. In dem ursprünglich homogenen System mit überall gleicher Konzentration der Elemente sind durch Diffusion der Teilchen entlang des Temperaturgradienten Konzentrationsunterschiede entstanden. Eine Gruppe von Elementen wandert den Temperaturgradienten hinauf zu hohen Temperaturen, die andere Gruppe zu niedrigen Temperaturen.

Der Grund für den beschriebenen Entmischungsprozeß ist der, daß sich das System anfangs nicht im stationären Zustand befindet. Wegen der Differenzen in den Bindungsenergien im Gitter und wegen der unterschiedlichen Temperaturabhängigkeit dieser Bindungsenergien wirken im Temperaturgradienten thermodynamische Kräfte auf die Atome und Ionen. Diese Kräfte verursachen Materieströme entlang des Temperaturgradienten. Jeder der Materieströme ist mit einem Energiestrom in Richtung niedriger Temperaturen verbunden, der grob gesehen den Differenzen in den Bindungsenergien der transportierten Teilchen entspricht. Dieser Energiestrom ist die Triebfeder der Thermodiffusion, deshalb soll näher auf ihn eingegangen werden.

Das kinetische Modell von Wirtz zeigt welcher Art der Beitrag jedes wandernden Teilchens zum Energiestrom ist. In diesem Modell wird die Aktivierungsenergie für den Sprung eines Atoms von seiner Ausgangsposition in eine benachbarte Position in 3 Teilenergien gegliedert, von denen jede einem der aufeinanderfolgenden Schritte des Sprungprozesses zugeordnet ist /2/. Die Aktivierungsenergie  $q$  setzt sich demzufolge zusammen aus

$$q = q_o + q_s + q_f. \quad (1)$$

Der Anteil  $q_o$  muß an der ursprünglichen Position des springenden Atoms aufgebracht werden, um dieses von seinem Gitterplatz oder Zwischengitterplatz loszulösen. Die Energie  $q_s$  wird benötigt um das Atom auf den Sattelpunkt zwischen Anfangs- und Endposition zu bringen. Dazu müssen die umliegenden Atome auseinanderschwingen. Schließlich muß noch die Energie  $q_f$  aufgewandt werden, um die Endposition für die Aufnahme des springenden Atoms vorzubereiten. Im Fall der Gitterdiffusion ist dafür die Bildung einer Leerstelle und im Fall der Zwischengitterdiffusion die Formierung eines Zwischengitterplatzes erforderlich.

Bei seinem aktivierten Sprungprozeß überführt das Atom die Energie  $q_o$  von der Ausgangs- in die Endposition während die Energie  $q_f$  in der umgekehrten Richtung transportiert wird. Der Betrag  $q_s$  wird nicht transportiert, weil er im Sattelpunkt zwischen den beiden Atompositionen aufgebracht wurde. Somit ist der Nettobetrag  $q^*$  der überführten Energie /2/

$$q^* = q_o - q_f. \quad (2)$$

Das ist die Überführungswärme der Thermodiffusion in dem betrachteten System. Es gilt, daß der Materiestrom jeweils in eine solche Richtung fließt, daß gleichzeitig die Überführungswärme zu niedrigeren Temperaturen transportiert wird. Ist also  $q_o > q_f$  und damit  $q^*$  positiv, fließen Teilchenstrom und Überführungswärme in die

gleiche Richtung, also zu niedrigeren Temperaturen. Wenn dagegen  $q_o < q_f$  ist und  $q^*$  ein negatives Vorzeichen bekommt, fließen die Teilchen und die Überführungswärme in entgegengesetzter Richtung. Das verursacht einen Teilchenstrom zu höheren Temperaturen. Es ergibt sich außerdem, daß  $|q^*|$  immer kleiner als  $q$  sein muß und daß man bei großen Werten von  $q_s$  nur kleine Überführungswärme erwarten kann /2/.

Eine Betrachtung der aktivierten Sprungprozesse der Atome im Kristallgitter bzw. auf Zwischengitterplätzen unter Einfluß eines Temperaturgradienten, wie sie von Wirtz durchgeführt wurde, führt zur Ableitung des Soret-Koeffizienten und läßt die eben skizzierten Eigenschaften der Überführungswärme  $q^*$  klar werden. Diese Betrachtung beginnt mit der Sprungfrequenz  $j$  der aktivierten Sprünge im Kristallgitter

$$j = j_o \exp(-q/kT). \quad (3)$$

Führt man für  $q$  die Teilenergien entsprechend Gl.(1) ein und berücksichtigt, daß zwischen der ursprünglichen und späteren Position eines springenden Atoms im Temperaturgradienten die Temperaturdifferenz  $\Delta T$  besteht, ergibt sich für die Anzahl der Sprünge  $v_T$  zu Gitterplätzen mit höherer Temperatur

$$v_T = \text{const} \cdot n_T \exp\left(-\frac{q_o}{kT}\right) \exp\left[-\frac{q_s}{k(T+0.5\Delta T)}\right] \exp\left[-\frac{q_f}{k(T+\Delta T)}\right] \quad (4)$$

und für die Zahl der Sprünge zur niedrigeren Temperatur

$$v_{T+\Delta T} = \text{const} \cdot n_{T+\Delta T} \exp\left[-\frac{q_o}{k(T+\Delta T)}\right] \exp\left[-\frac{q_s}{k(T+0.5\Delta T)}\right] \exp\left(-\frac{q_f}{kT}\right) \quad (5)$$

Es sind hierin  $n_T$  und  $n_{T+\Delta T}$  die Konzentrationen der betrachteten Atomsorte in den Gitterebenen mit den Temperaturen  $T$  bzw.  $T+\Delta T$ .

Wenn sich der zum stationären Zustand gehörige Konzentrationsunterschied zwischen den beiden betrachteten Gitterebenen eingestellt hat, ist die Anzahl der Sprünge in beiden Richtungen gleich groß und man erhält:

$$\frac{n_{T+\Delta T}}{n_T} = \frac{\exp(-q_o/kT)\exp[-q_f/k(T+\Delta T)]}{\exp[-q_o/k(T+\Delta T)] \exp(-q_f/kT)} \quad (6)$$

Da für  $q_i = \text{const}$  und eine mittlere Sprungentfernung  $l_o$

$$\exp[-q_i/k(T+\Delta T)] \approx \exp(-q_i/kT) [1 + (q_i/kT^2)l_o \nabla T] \quad (7)$$

ist, geht Gl.(6) über in

$$\frac{n_{T+\Delta T}}{n_T} = \frac{1 + (q_f/kT^2)\nabla T l_o}{1 + (q_o/kT^2)\nabla T l_o} \quad (8)$$

Setzt man nun noch die Beziehung

$$n_{T+\Delta T} = n_T + (n/T)l_o \nabla T \quad (9)$$

in Gl.(8) ein, erhält man den Soret-Koeffizienten für verdünnte Lösungen

$$\frac{1}{n} \frac{dn}{dT} = -[(q_o - q_f)/kT^2], \quad (10)$$

der den stationären Zustand der Konzentrationsverteilung im Temperaturgradienten beschreibt. Mit dieser Ableitung konnte K.Wirtz zum ersten Mal zeigen, daß nur die Differenz  $q^* = q_o - q_f$  der Teilenergien

für den Transport im Temperaturgradienten verantwortlich ist. Die Gleichung (10) läßt auch die beschriebenen Eigenschaften von  $q^*$  gut erkennen. Hat  $q^*$  ein positives Vorzeichen wird  $dn/dT < 0$ , d.h. die Konzentration steigt mit abnehmender Temperatur; hat  $q^*$  dagegen ein negatives Vorzeichen, wird  $dn/dT > 0$  und die Konzentration steigt mit der Temperatur.

In den letzten Jahren wurden Anstrengungen unternommen das kinetische Modell zu vervollkommen. So wurde die vereinfachende Annahme von lokalen Temperaturen, die den Gitterplätzen zugeordnet sind, ersetzt durch die Betrachtung von Phononenwellenpaketen, welche die aktivierten Atomsprünge beeinflussen /21/. Jedoch birgt eine strenge Behandlung dieses Problems große Schwierigkeiten in sich, weil sie eine Kopplung der fundamentalen Theorien der Wärmeleitung und der atomaren Diffusionskinetik erfordert. Eine andere Annahme im besprochenen Modell war, daß die Sprungfrequenzen nicht von Korrelationen zwischen dem springenden Atom und den benachbarten gelösten Atomen und Leerstellen beeinflußt werden. Diese Korrelationen führen zu einer Abweichung von der Annahme der statistischen Verteilung der Sprungrichtungen im isothermen Zustand /22/. Es kann jedoch davon ausgegangen werden, daß diese Abweichungen die Ergebnisse der Betrachtung der aktivierten Sprungprozesse nicht grundsätzlich beeinflussen. Trotz der Einwände gegen die vereinfachenden Annahmen in diesem Modell wird es bis heute in unveränderter Form angewandt.

### 3. Flüsse und Kräfte

Eine allgemeine Beschreibung der Thermodiffusion läßt sich mit Hilfe der Thermodynamik irreversibler Prozesse geben. Rein empirisch ergibt sich, daß für zahlreiche irreversible Vorgänge lineare Beziehungen zwischen den irreversiblen Flüssen und den thermodynamischen Kräften bestehen:

$$J_k = \sum_{j=1}^n a_{kj} X_j + a_{kq} X_q, \quad k=1,2,\dots,n, \quad (11)$$

und

$$J_q = \sum_{j=1}^n a_{qj} X_j + a_{qq} X_q \quad (12)$$

mit

$$a_{kj} = a_{jk} \quad \text{und} \quad a_{qj} = a_{jq}.$$

In diesen Gleichungen bedeuten  $J_k$  den Materiefluß der  $k$ -ten Komponente,  $J_q$  den Wärmefluß,  $X_j$ ,  $X_q$  die thermodynamischen Kräfte und  $a_{kj}$ ,  $a_{kq}$ ,  $a_{qj}$ ,  $a_{qq}$  die phänomenologischen Koeffizienten. Im allgemeinen ist der Anwendungsbereich dieser linearen Beziehungen auf kleine Abweichungen vom Gleichgewichtszustand beschränkt. Das trifft insbesondere auf chemische Reaktionen zu; jedoch im Falle der Transportvorgänge in Festkörpern sind die phänomenologischen Beziehungen auch unter relativ extremen Bedingungen noch gültig /23/. Für die hier interessierenden Diffusions- und Wärmetransportvorgänge lassen sich die Kräfte  $X_j$  und  $X_q$  der Gleichungen (11) und (12) in folgender Weise darstellen.

$$X_j = -\nabla\mu_j, \quad (13)$$

$$X_q = -\frac{1}{T} \nabla T. \quad (14)$$

Die Größe  $\mu_j$  ist das chemische Potential der Komponente  $j$ ,

$$\mu_j = \mu_j^{\circ} + RT \ln \gamma_j x_j \quad (15)$$

worin  $\mu_j^{\circ}$  das Standardpotential,  $R$  die allgemeine Gaskonstante,  $\gamma_j$  den Aktivitätskoeffizienten und  $x_j$  den Molenbruch der Komponente  $j$  bedeuten.

In Festkörpern, die ein Ionengitter haben wie die oxidischen Brenn-

stoffe, können im Temperaturgradienten elektrische Kräfte wirksam werden, die auf dem Gradienten des thermoelektrischen Potentials  $\phi$  beruhen. Diese Kräfte lassen sich durch einen zusätzlichen Term in Gl.(13) berücksichtigen. Man erhält

$$X_j = -\nabla\mu_j - Z_j\nabla\phi. \quad (16)$$

Darin ist die Größe  $Z_j$  die pro Mol der Ionensorte  $j$  transportierte elektrische Ladung.

Wenn die Diffusionsprozesse über einen Leerstellenmechanismus ablaufen, tritt neben den Materieflüssen auch der Fluß der Gitterleerstellen in Erscheinung. Für die Anwendung ist es sinnvoll diesen Leerstellenfluß in dem Gleichungssystem (11) zu eliminieren. Dadurch erhält man  $n-1$  voneinander unabhängige Gleichungen. Berücksichtigt man außerdem den Zusammenhang der Koeffizienten  $a_{kq}$  mit den Überführungswärmen  $Q_k^*$  /23/, ergibt sich schließlich das Gleichungssystem

$$J_k = \sum_{j=1}^{n-1} a_{kj} (X_j - X_v + Q_j^* X_q), \quad k=1,2,\dots,n-1 \quad (17)$$

worin der Index  $v$  die Leerstellen (vacancies) kennzeichnet. Dieses Gleichungssystem dient als Grundlage für die Ableitung der Materieflüsse, die im Reaktorbrennstoff durch Thermodiffusion hervorgerufen werden. Eine vollständige Ableitung dieser Flüsse, die hier nur kurz skizziert wird, ist in einer kürzlich von uns veröffentlichten Arbeit wiedergegeben /9/.

Die exakte Beschreibung der Entmischungsvorgänge durch Thermodiffusion, die in einem so komplizierten Mehrkomponentensystem wie dem Reaktorbrennstoff ablaufen, würde die Berechnung aller simultan auftretenden Flüsse erfordern. Das ist jedoch wegen der Vielzahl der unbekanntenen Kopplungskoeffizienten  $a_{kj}$ , die in Gl.(11) auftreten,

nicht durchführbar. In den meisten Fällen muß man deshalb einen Teil der Wechselwirkungen zwischen den Flüssen vernachlässigen und sich auf die Betrachtung weniger Komponenten beschränken. Wie wir später sehen werden, kommt man bei den meisten Entmischungsvorgängen in Reaktorbrennstoffen damit aus, jeweils zwei Komponenten zu betrachten.

Für den Leerstellenmechanismus der Diffusion in einem Zweikomponentensystem ergeben sich mit den Gleichungen (13, (14) und (17) die zwei von einander unabhängigen Flüsse

$$J_1 = -a_{11} [\bar{v}\mu_1 - \bar{v}\mu_v + (Q_1^*/T)\nabla T] - a_{12} [\bar{v}\mu_2 - \bar{v}\mu_v + (Q_2^*/T)\nabla T]$$

und (18)

$$J_2 = -a_{21} [\bar{v}\mu_1 - \bar{v}\mu_v + (Q_1^*/T)\nabla T] - a_{22} [\bar{v}\mu_2 - \bar{v}\mu_v + (Q_2^*/T)\nabla T]$$

Wenn wir, wie von Lidiard ausgeführt /24/, die folgende Transformation durchführen,

$$J'_1 = J_1 - x_1(J_1 + J_2)$$

und (19)

$$J'_2 = J_2 - x_2(J_1 + J_2),$$

erhalten wir zwei neue, nun voneinander abhängige Flüsse  $J'_1$  und  $J'_2$  deren Summe verschwindet. Diese Flüsse sind auf eine fixierte Endfläche des Festkörpers, die sich senkrecht zum Temperaturgradienten erstreckt, bezogen. Die Faktoren  $x_1$  und  $x_2$  sind die Molenbrüche der beiden Komponenten. Mit der Einführung der chemischen Diffusionskoeffizienten  $D_1$  und  $D_2$  erhält man schließlich für  $J'_2$  die folgende Flußgleichung /9/:

$$J'_2 = -ND_{12} \nabla x_2 - \frac{Nx_1x_2}{1+(\partial \ln \gamma_2 / \partial \ln x_2)} \frac{D_2 \overline{Q}_2^* - D_1 \overline{Q}_1^*}{RT^2} \nabla T. \quad (20)$$

Eine analoge Gleichung gilt für  $J'_1$ . Die Größe  $D_{12}$  ist der von Darken beschriebene chemische Interdiffusionskoeffizient /25/

$$D_{12} = x_2 D_1 + x_1 D_2, \quad (21)$$

$N$  ist die Zahl der Kationengitterplätze pro Volumeneinheit und  $\gamma$  der Aktivitätskoeffizient. Der Term  $\partial \ln \gamma / \partial \ln x$  verschwindet im Falle einer verdünnten Lösung.

Gl.(20) bildet die Grundgleichung für die spätere Berechnung der Thermodiffusionseffekte in Reaktorbrandstoffen. Die Größe  $\overline{Q}_j^*$  stellt die effektive Überführungswärme bezogen auf ein Mol der Komponente  $j$  dar. Sie unterscheidet sich von der in Gl.(17) definierten Größe  $Q_j^*$  um den Betrag der effektiven Bildungsenthalpie eines Moles Leerstellen  $H_v$ . Es gilt:

$$\overline{Q}_j^* = Q_j^* - H_v, \quad j=1,2. \quad (22)$$

Betrachten wir nun noch den einfacheren Fall eines Einkomponentensystems mit Gitterleerstellen. In diesem System ist die Thermodiffusion der Leerstellen von Interesse, die wir später zur Beschreibung des Sauerstofftransportes in unterstöchiometrischem Mischoxidbrandstoff benutzen werden. Alternativ zu der Flußgleichung, die sich für  $k=1$ , d.h. für nur eine diffundierende Komponente, aus dem Gleichungssystem (17) ergibt, können wir die physikalisch vollkommen äquivalente Gleichung

$$J_v = a_{vv} (X_v - X_1 + Q_v^* X_q) \quad (23)$$

für den Fluß der Leerstellen  $J_v$  hinschreiben, in der  $a_{vv} = a_{11}$  ist und  $Q_v^* = -Q_1^*$  die Überführungswärme der Leerstellen bedeutet. Führen wir die thermodynamischen Kräfte nach Gl.(13) und Gl.(14) sowie den Diffusionskoeffizienten der Leerstellen  $D_v = (RT/N)a_{vv}/x_v$  ein, erhalten wir daraus wenn wir zusätzlich annehmen, daß die Leerstellen eine verdünnte Lösung bilden (d.h.  $x_v \ll 1$  und  $x_1 \approx 1$ ), die folgende Gleichung:

$$J_v = -ND_v \left( \nabla x_v + x_v \frac{Q_v^*}{RT^2} \nabla T \right), \quad (24)$$

wobei hier N die Zahl der Anionengitterplätze pro Volumeneinheit darstellt.

Schließlich wollen wir noch die Flußgleichung für den Fall angeben, daß die diffundierende Komponente nicht über Gitterleerstellen sondern über Zwischengitterplätze wandert. Es ergibt sich die zu Gl. (24) ganz analoge Gleichung

$$J_i = -ND_i \left[ \nabla x_i + \frac{x_i}{1 + (\partial \ln \gamma_i / \partial \ln x_i)} \frac{Q_i^*}{RT^2} \nabla T \right], \quad (25)$$

worin der Index i sich auf die Zwischengitteratome bezieht und N die Zahl der Zwischengitterplätze pro Volumeneinheit bedeutet /9/. Wenn man die Zwischengitteratome als verdünnte Lösung betrachten darf, verschwindet auch hier der Term  $\partial \ln \gamma / \partial \ln x$ .

In oxidischen Brennstoffen treten aufgrund des thermoelektrischen Potentials elektrische Kräfte auf, die den Materiefluß der Ionen beeinflussen können. Diese Kräfte können wir auf einfache Weise in den Flußgleichungen berücksichtigen, indem wir in Gl.(16) anstelle des elektrischen Potentialgradienten  $\nabla \phi$  die Thermokraft  $\epsilon = \nabla \phi / \nabla T$  einführen und dann Gl.(16) anstatt Gl.(13) in das Gleichungssystem (17) einsetzen. Es ergeben sich damit genau die gleichen Ausdrücke

für die Flüsse wie in den Gleichungen (20), (24) und (25), wenn wir die Überführungswärmen  $Q_k^*$  formal durch die erweiterten Größen

$$\tilde{Q}_k^* = Q_k^* + Z_k eT \quad (26)$$

ersetzen. Einfachheitshalber schreiben wir später  $\tilde{Q}_k^*$  ohne Tilde (~).

Mit Hilfe der beschriebenen Flußgleichungen sind wir nun prinzipiell in der Lage aus gemessenen Konzentrationsverteilungen, die sich nach verschiedenen Diffusionszeiten im Temperaturgradienten eingestellt haben, die Überführungswärmen zu bestimmen. Andererseits können wir auch, wenn alle Diffusionsdaten und Überführungswärmen bekannt sind, die zeitliche Entwicklung der Entmischungsvorgänge durch Thermodiffusion berechnen. In dem nächsten Abschnitt werden wir noch einige Vereinfachungen einführen und die speziellen Gleichungen ableiten, die in der praktischen Anwendung geeignet sind, die Entmischungsvorgänge in Reaktorbrennstoffen zu beschreiben.

#### 4. Anwendung der Flußgleichungen auf Kernbrennstoffe

Von den Entmischungserscheinungen, die unter der Einwirkung der hohen Temperaturen und steilen Temperaturgradienten im Reaktorbrennstoff auftreten, hat besonders die Entmischung von Uran und Plutonium Interesse gefunden, da sie von Bedeutung für die Sicherheit und die Auslegung der Brennelemente schneller Brutreaktoren ist. Aufgrund der geringen Beweglichkeit der Aktinidenatome im Gitter sind jedoch merkliche Effekte durch Thermodiffusion nur in hoch belasteten oxidischen Brennstäben, die hohe Zentraltemperaturen aufweisen, zu erwarten.

Der Mischoxidbrennstoff schneller Reaktoren, mit dem wir uns im folgenden hauptsächlich befassen, enthält 15 bis 30 Mol% Plutoniumoxid. Während der Bestrahlung im Reaktor entstehen Spaltprodukte, die den

Brennstoff in ein kompliziertes Mehrstoffsystem verwandeln. Eine exakte Behandlung der Thermodiffusion würde die Betrachtung aller Flüsse und ihrer Wechselwirkungen erfordern, was praktisch nicht durchführbar ist. Man kann aber näherungsweise annehmen, daß zumindest für niedrige Abbrandzustände die Flüsse von Uran und Plutonium unabhängig von den Flüssen der Spaltprodukte sind. Denn bis zu einem Abbrand von 2% beträgt die Konzentration der gelösten Spaltprodukte, auf die es hier allein ankommt, noch weniger als 1% der Brennstoffatome. Wir behandeln die Thermodiffusion von Uran und Plutonium, die über einen Leerstellenmechanismus im Kationenteilgitter des Brennstoffs abläuft, wie die Thermodiffusion in einem Zweistoffsystem. Wir werden später sehen, daß diese Näherung auch noch bei höheren Abbränden zu brauchbaren Ergebnissen führt.

Zur Beschreibung des Flusses der Plutoniumatome  $J'_{Pu}$  gehen wir von Gl.(20) aus. Da die infrage kommenden Konzentrationsänderungen im Vergleich zur mittleren Konzentration im Brennstoff nicht allzu hoch sind, kann der Aktivitätskoeffizient  $\gamma$  als Konstante behandelt werden, womit sich ergibt

$$J'_{Pu} = -ND_{UPu} \left[ \nabla x_{Pu} + x_U x_{Pu} (Q_{UPu}^* / RT^2) \nabla T \right]. \quad (27)$$

In dieser Gleichung bedeutet  $D_{UPu} = x_{Pu} D_U + x_U D_{Pu}$  den chemischen Interdiffusionskoeffizienten und  $Q_{UPu}^*$  die wirksame Prozeß-Überführungswärme, die sich aus den in Gl.(22) definierten  $\bar{Q}_U^*$  und  $\bar{Q}_{Pu}^*$  errechnet.

$$Q_{UPu}^* = (D_{Pu} / D_{UPu}) \bar{Q}_{Pu}^* - (D_U / D_{UPu}) \bar{Q}_U^*. \quad (28)$$

$Q_{UPu}^*$  ist die Größe, die mit Hilfe der Flußgleichung aus gemessenen Konzentrationsverteilungen bestimmt werden kann (vgl. Abschnitt 7). Sie ist ungefähr gleich  $\bar{Q}_{Pu}^* - \bar{Q}_U^*$ , weil sich die Diffusionskoeffizienten nicht stark unterscheiden. Mit Gl.(27) werden wir später

die Thermodiffusion von Plutonium in Reaktorbrennstäben berechnen.

Bei der Anwendung von Gl.(27) auf Mischoxidbrennstoff muß beachtet werden, daß  $D_{UPu}$  und damit auch  $Q_{UPu}^*$  von der Stöchiometrie abhängen, d.h. von dem O/M-Verhältnis des Brennstoffs, zumal der Stöchiometriezustand des Brennstoffs sowohl örtlich aufgrund der Thermodiffusion des Sauerstoffs als auch zeitlich infolge des Abbrandes variiert /26/. Der Stöchiometriezustand wird durch das Sauerstoff-zu-Metall-Verhältnis im Brennstoff, kurz O/M-Verhältnis, charakterisiert. Für die Rechnung begnügen wir uns mit der Angabe eines konstanten Mittelwertes von  $Q_{UPu}^*$ . Wie sich zeigen wird, ist diese Näherung hinreichend für die Berechnung radialer Konzentrationsverteilungen, die sich in Brennstäben einstellen. Die berechneten Konzentrationsprofile stimmen befriedigend mit den an bestrahlten Stäben gemessenen überein.

Wir wollen uns nun als nächstes den Spaltprodukten zuwenden. In diesem Zusammenhang interessieren uns nur diejenigen die im Brennstoff gelöst werden und damit der Thermodiffusion unterliegen. Es sind dies vor allem die Oxide der Lanthaniden und des Zirkons, deren Konzentration im Brennstoff nach 5% Abbrand bei der Spaltung von Pu-239 etwa 2,5 Mol% erreicht. Es ist wiederum unmöglich alle auftretenden Flüsse exakt zu berechnen, da nur wenige Diffusionsdaten bekannt sind. Wenn wir jedoch annehmen, daß die Spaltprodukte im Brennstoff eine verdünnte Lösung bilden, können wir ihre Flüsse unabhängig voneinander betrachten und die Berechnung im Einzelfall durchführen. Diese Näherung ist sicherlich für niedrige Abbrände vernünftig und kann darüber hinaus Hinweise für das Verhalten der Spaltprodukte bei höheren Abbränden liefern. Für die verdünnte Lösung leiten wir den Fluß der Spaltprodukte  $J_F^I$  aus Gl.(20) ab, indem wir vereinfachend annehmen, daß die Uran-Plutonium-Matrix sich in Bezug auf die Spaltprodukte wie eine einzige Komponente verhält.

$$J_F^I = -ND_F \left[ \nabla x_F + x_F (Q_{FM}^*/RT^2) \nabla T \right]. \quad (29)$$

Der Index F bezeichnet die Spaltproduktkomponente und M bezieht sich auf die Matrix.  $Q_{FM}^*$  ist wieder die Prozeß-Überführungswärme, welche aus gemessenen Konzentrationsverteilungen bestimmt werden kann. Es gilt

$$Q_{FM}^* = \bar{Q}_F^* - (D_M/D_F)\bar{Q}_M^* \quad (30)$$

d.h., wenn der Diffusionskoeffizient  $D_F$  groß ist im Vergleich zu dem von Uran und Plutonium, ist  $Q_{FM}^* \approx \bar{Q}_F^*$ . Sind dagegen die Diffusionskoeffizienten von der gleichen Größenordnung, gewinnt der zweite Term in  $Q_{FM}^*$ , der den Beitrag der Matrixatome beschreibt, an Bedeutung.

Kommen wir nun zur Thermodiffusion des Sauerstoffs. Der Diffusionskoeffizient des Sauerstoffs ist um mehrere Größenordnungen höher als der von Uran und Plutonium. Deshalb ist es erlaubt, für die Behandlung der Thermodiffusion des Sauerstoffs das Sauerstoffteilgitter des Brennstoffs für sich allein zu betrachten. Die Fluoritstruktur des Oxidbrennstoffs läßt unter Beibehaltung eines nahezu perfekten Kationengitters sowohl Existenz von Leerstellen als auch die von Zwischengitteratomen im Anionengitter zu. Wir wollen deshalb zwischen dem unterstöchiometrischen und dem überstöchiometrischen Brennstoffsystem unterscheiden. Im ersten Fall betrachten wir die verdünnte Lösung von Leerstellen, im zweiten die von Zwischengitteratomen im Sauerstoffteilgitter.

Als Maß für die Konzentration der Leerstellen bzw. der Zwischengitteratome des Sauerstoffs führen wir die Abweichung vom stöchiometrischen Zustand  $y$  ein,

$$y = O/M-2. \quad (31)$$

Damit schreibt sich die Summenformel für das Mischoxid  $(U,Pu)O_{2+y}$ . Im unterstöchiometrischen Fall ( $y < 0$ ) gibt  $|y|$  die Anzahl der Leer-

stellen pro Oxidmolekül an, und wir erhalten daraus den Atombruch der Leerstellen  $x_v$  im Sauerstoffteilgitter zu

$$x_v = -y/2. \quad (32)$$

Im überstöchiometrischen Fall ( $y > 0$ ), wo  $y$  die Anzahl der Zwischengitteratome pro Molekül beschreibt, ergibt sich, da jedem Molekül ein Zwischengitterplatz zuzuordnen ist, der Atombruch

$$x_i = y. \quad (33)$$

Die Flüsse der Sauerstoffleerstellen bzw. der Zwischengitteratome lassen sich nach Gl.(24) und (25) berechnen. Wegen der großen Beweglichkeit der Sauerstoffatome im Mischoxidbrennstoff können wir jedoch davon ausgehen, daß schon nach relativ kurzer Zeit — unter Reaktorbedingungen nach einigen Stunden— der stationäre Zustand der Sauerstoffverteilung erreicht sein wird, d.h. die Flüsse verschwinden. Wenn wir  $y$  anstelle von  $x_v$  bzw.  $x_i$  in die Gl.(24) und (25) einführen, erhalten wir daraus die Soret-Koeffizienten, die den stationären Zustand beschreiben. Für den unterstöchiometrischen Fall ( $y < 0$ ) ergibt sich

$$\frac{1}{y} \frac{V_y}{VT} = -(1 - \frac{y}{2})(Q_v^*/RT^2) \quad (34)$$

und für den überstöchiometrischen Fall ( $y > 0$ )

$$\frac{1}{y} \frac{V_y}{VT} = -(Q_i^*/RT^2). \quad (35)$$

Diese Gleichungen sind, -wenn man berücksichtigt, daß  $y \ll 1$  ist-, vollständig analog zur Gl.(10), die aus den kinetischen Betrachtungen

tungen auf der Grundlage des Modells von Wirtz abgeleitet wurde.

Wie schon erwähnt, muß angenommen werden, daß die thermoelektrischen Potentiale die Sauerstoffverteilung im Brennstab beeinflussen. Deshalb erhalten die Überführungswärmen einen temperaturabhängigen Term nach Gl.(26). Wie wir später bei der Diskussion der experimentellen Ergebnisse sehen werden, hängt die Überführungswärme  $Q_v^*$  der Sauerstoffleerstellen im unterstöchiometrischen Mischoxid außerdem von der Konzentration der Leerstellen im Gitter ab.

#### 5. Konkurrierende Transportprozesse in Kernbrennstoffen

Die Experimente mit Kernbrennstoffen im Laboratorium ergaben, daß bei hohen Temperaturen neben der Thermodiffusion die Verdampfung und Kondensation in wandernden Poren und in Rissen für die Entmischung der Aktiniden und Spaltprodukte im Temperaturgradienten eine bedeutende Rolle spielt. Dieser Prozeß ist immer dann mit einer Entmischung der beteiligten Elemente und ihrer Verbindungen verknüpft, wenn deren Dampfdrücke verschieden sind. Es sammeln sich stets die leichter flüchtigen Spezies bevorzugt in der kälteren Hälfte der Poren und Risse, was eine Anreicherung von schweren flüchtigen Spezies in der heißeren Hälfte zur Folge hat. Wandert eine Pore den Temperaturgradienten hinauf, so hinterläßt sie eine Spur, die in den leichter flüchtigen Bestandteilen des Brennstoffs angereichert ist. Die schwerer flüchtigen Bestandteile wandern mit der Pore zur heißesten Stelle des Brennstoffs.

Als wichtigstes Beispiel für die Entmischung durch Verdampfung und Kondensation soll kurz die Entmischung von Uran und Plutonium beschrieben werden. Der Partialdruck der Spezies des Urans und Plutoniums und ihrer Verbindungen variiert in recht unterschiedlicher Weise mit der effektiven Wertigkeit des Plutoniums  $V_{Pu}$  im Mischoxid. Die Größe  $V_{Pu}$  ergibt sich aus der in Gl.(31) definierten Stöchiometrieabweichung  $y$  wie folgt:

$$V_{\text{Pu}} = 4 + 2y/x_{\text{Pu}} \quad \text{für } y \leq 0. \quad (36)$$

Rand und Markin /27/ haben als erste aus thermodynamischen Daten errechnet, daß mit steigender Wertigkeit des Plutoniums der Partialdruck der Spezies, die Uran tragen, zunimmt und derjenige der Spezies, die Plutonium tragen, abnimmt. Aus diesem Verhalten, das auch experimentell bei 2100 K und 2670 K bestätigt werden konnte /28, 20/, ergibt sich, daß in einem Mischoxid mit  $V_{\text{Pu}} > 3,6$  Uran und seine Verbindungen leichter flüchtig sind. Das bedeutet, Uran wird in den kälteren Regionen angereichert und Plutonium in den heißeren. Bei  $V_{\text{Pu}} < 3,6$  ist es gerade umgekehrt, da Plutonium und seine Verbindungen leichter verdampfen. Ist  $V_{\text{Pu}} = 3,6$  gibt es keine Entmischung, weil das Material kongruent verdampft.

Praktisch spielt die Entmischung durch Verdampfung und Kondensation eine entscheidende Rolle in nahezu stöchiometrischen oder stöchiometrischen Brennstoffen, wo die Konzentration des Plutoniums im Zentrum der Brennstäbe bis auf das Doppelte ansteigen kann /29/. Bei Stableistungen über 500 W/cm ist jedoch nach einigem Abbrand die Thermoeffusion bestimmend, da in diesem Fall die Diffusionsgeschwindigkeit der Uran- und Plutoniumionen hoch genug ist. Wenn sich die Wertigkeit des Plutonium 3,6 nähert, verschwinden zwar die Verdampfungseffekte, die Thermoeffusion bleibt jedoch wirksam und sorgt für eine Entmischung, deren Ausmaß mit steigender Stableistung und wachsendem Abbrand größer wird.

Analog zu den Aktiniden ist auch beim Sauerstoff ein Transport über die Gasphase in Rissen und untereinander verbundenen Poren im Brennstoff möglich. Dieser Transport erfolgt durch einen Diffusionsausgleich in dem Partialdruckgradienten, der durch die örtlich unterschiedlichen Gleichgewichtspartialdrucke von  $\text{CO}_2$ ,  $\text{CO}$ ,  $\text{H}_2\text{O}$  und  $\text{H}_2$  in den Rissen und Poren in Richtung des Temperaturgradienten entsteht. Der Transport des Sauerstoffs über die Trägergase  $\text{CO}_2$  und  $\text{H}_2\text{O}$  läuft solange ab, bis sich die Kräfte, die einerseits durch den Gradienten im Sauerstoffpotential und andererseits durch den Partialdruckgradi-

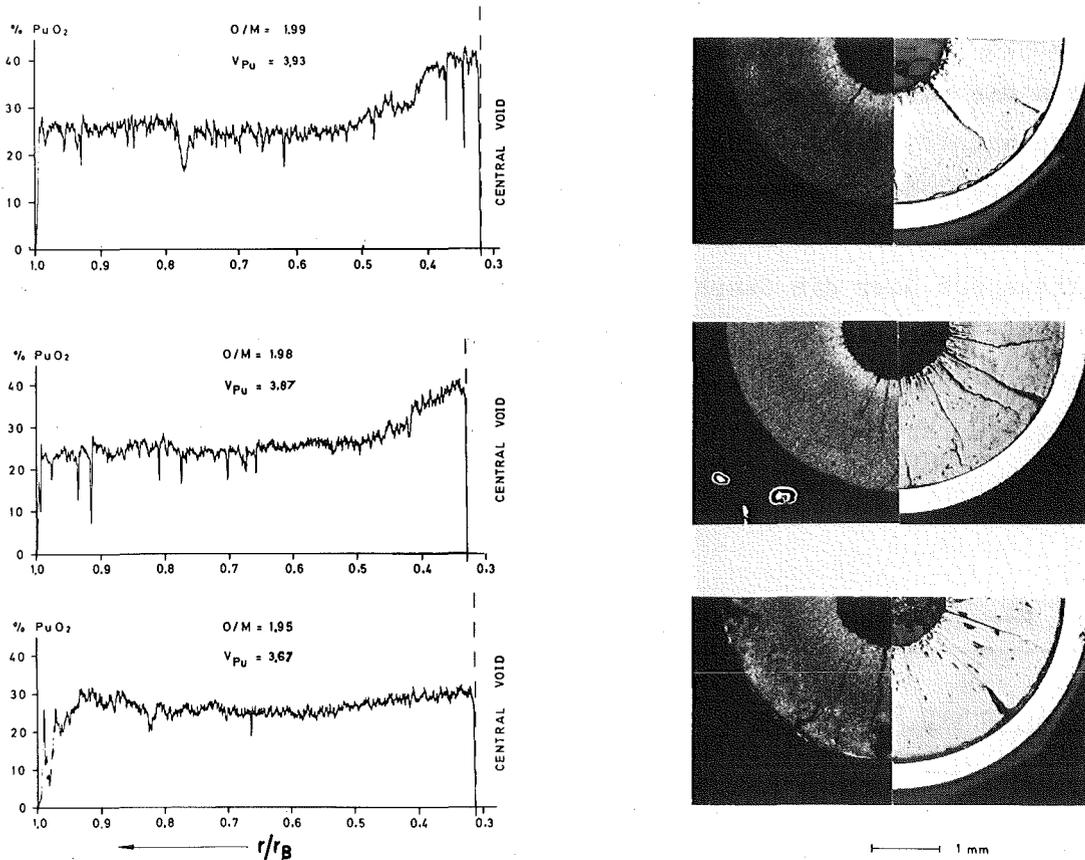
enten der Sauerstoffträger entstehen, die Waage halten. Rand und Markin /27/ bestimmten zum ersten Mal mithilfe thermodynamischer Daten die radiale Sauerstoffverteilung, die ein solcher Prozeß im Brennstoff bewirkt, und stellten fest, daß der Sauerstoff in den kälteren oder heißeren Zonen angereichert wird, je nachdem, ob das Uran-Plutonium-Mischoxid unter- oder überstöchiometrisch ist. Der Transport über die Gasphase ist überall dort der bestimmende Prozeß, wo der Partialdruck der Trägergase hoch genug ist und genügende Transportquerschnitte vorhanden sind. Er ist unbedeutend im dichten re-strukturierten Brennstoffinnern und bei starker Unterstöchiometrie.

## 6. Beobachtete Entmischungseffekte

### 6.1. Uran, Plutonium

Das größte Interesse fand zunächst die Entmischung von Uran und Plutonium im Brennstab, weil dadurch die neutronenphysikalischen Eigenschaften und die Wärmequellverteilung verändert werden. Die ersten Effekte wurden an Brennstäben thermischer Reaktoren beobachtet /30/. Bald darauf konnte mit Laborexperimenten gezeigt werden, welche Prozesse in Mischoxid-Brennstoffen zur Entmischung von Uran und Plutonium führen /5, 7, 8/. Die Diskussion von Entmischungseffekten, die an Brennstäben schneller Reaktoren beobachtet wurden /11, 31, 32/ bestätigte, daß Thermodiffusion und Verdampfungsprozesse die Hauptursachen der Entmischung sind.

Die Abb.1 zeigt drei typische radiale Plutonium-Konzentrationsverteilungen,  $\alpha$ -Autoradiographien und Schliffbilder von Brennstäben /11/, die im schnellen Fluß des RAPSODIE-Reaktors bei einer mittleren Stabileistung von 440 W/cm bis zu 6,8 % Abbrand bestrahlt wurden. Der Brennstoff war ein Mischoxid bestehend aus 70 Mol% Uranoxyd, 83 % angereichert, und 30 Mol% Plutoniumoxid mit drei unterschiedlichen O/M-Verhältnissen bzw. Plutonium-Wertigkeiten  $V_{Pu}$ .



**Abb.1** Radiale Plutoniumverteilung in  $(U_{0.7}Pu_{0.3})O_{2-y}$  mit verschiedenen O/M-Verhältnissen nach einem Abbrand von ca. 6,8 % bei einer Stableistung von 440 W/cm. Rechts die zugehörigen  $\alpha$ -Autoradiographien und Schliffbilder /11/.

Ein augenfälliger Unterschied zwischen den Diagrammen in Abb.1 besteht in der Steigung der Konzentrationskurven vor dem Zentralkanal. Die beiden oberen Kurven, die leicht unterstöchiometrische Brennstoffe mit Plutonium-Wertigkeiten von 3,87 und 3,93 repräsentieren, zeigen den für Verdampfungs-Kondensations-Prozesse typischen steilen Anstieg der Konzentration. Dieser Gradient kann nicht durch Thermodiffusion erklärt werden, es sei denn mit einem unrealistisch großen Betrag für die Überführungswärme. In dem zum unteren Diagramm gehörigen stark unterstöchiometrischen Brennstab muß der Transport durch Thermodiffusion dominiert haben, weil bei einer Anfangswertigkeit des Plutoniums von 3,67 das Innere des

Brennstoffs bis zu einem Abbrand von 6,8 % wegen der Thermodiffusion des Sauerstoffs stark unterstöchiometrisch bleibt /11/. Damit ist ein Transport von Plutonium zum Zentralkanal durch Verdampfungsprozesse nicht denkbar. Wie in Abschnitt 7 gezeigt wird, läßt sich die Steigung im unteren Diagramm mit einer realistischen Überführungswärme von 30 Kcal/Mol darstellen. Die starke Streuung im äusseren Bereich rührt von herstellungsbedingten Inhomogenitäten her.

In den Laborexperimenten wurden unter definierten Bedingungen - Stöchiometrie, Temperatur, Zeit - zylindrische Mischoxidpellets einem axialen linearen Temperaturgradienten ausgesetzt, um damit Aussagen über die im Temperaturgradienten ablaufenden Transportvorgänge zu ermöglichen /8, 34/. Die Pellets bestanden aus 85 Mol% Natururanoxid und 15 Mol% Plutoniumoxid. In Abb.2 ist der Verlauf der Plutoniumoxid-Konzentration in zwei Pellets in axialer Richtung wiedergegeben. Das eine Pellet war stöchiometrisch und zeigt einen Konzentrationsverlauf, der für die Entmischung durch Verdampfung und Kondensation typisch ist und sich schon nach 2 Stunden Glühung einstellte. Der Konzentrationsanstieg am heißen Ende ist sehr steil

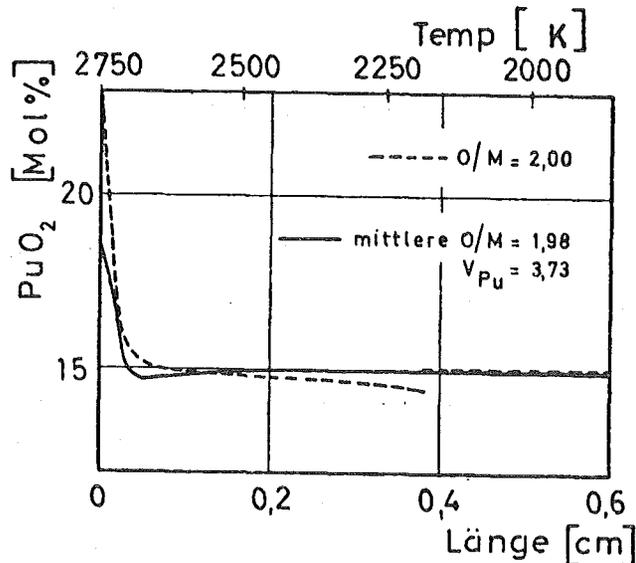


Abb.2 Axiale Plutoniumverteilung in zylindrischen Pellets aus  $(U_{0.85}Pu_{0.15})O_{2+y}$  nach Wärmebehandlung im Temperaturgradienten.

und die Konzentrationsabsenkung beginnt abrupt am kalten Ende der Säulenkristalle, in diesem Fall bei ca. 2150 K. Das andere Pellet war stark unterstöchiometrisch mit einer Plutonium-Wertigkeit von 3,73. Es zeigt einen für die Thermodiffusion typischen Verlauf der Plutoniumkonzentration. Dem Konzentrationsanstieg am heißen Ende geht unmittelbar ein Minimum in der Konzentration voraus. Die Einstellung dieser Plutoniumverteilung erfolgte nach 48 Stunden Glühung in einem Temperaturgradienten von 1500 K/cm. Aus dem Entmischungseffekt im unterstöchiometrischen Pellet wurde erstmalig die Überführungswärme in Uran Plutonium-Mischoxid bestimmt /7, 8/. Darauf wird im Abschnitt 7 näher eingegangen.

## 6.2. Sauerstoff

Es sind im wesentlichen zwei Prozesse, die einen Transport des Sauerstoffs in oxidischem Kernbrennstoff verursachen. Diffusion von Sauerstoff-Trägergasen in Rissen und Poren und Thermodiffusion in der festen Oxidmatrix. Der letztere Prozeß soll hier behandelt werden, da er der wichtigere ist. Er bestimmt die Sauerstoffverteilung in der restrukturierten dichten Brennstoffzone im Innern allein und beeinflusst diejenige in der äußeren porösen Brennstoffzone wesentlich je nach der Stöchiometrie und dem vorhandenen Poren- und Rißvolumen. In stark unterstöchiometrischen Mischoxiden ist der Gastransport wegen des niedrigen Partialdruckes der Sauerstoffträger  $\text{CO}$ ,  $\text{CO}_2$  und  $\text{H}_2\text{O}$  vernachlässigbar.

Die ersten Experimente zur Untersuchung der Entmischung des Sauerstoffs wurden an einer Pelletsäule mit axialem Temperaturgradienten durchgeführt, wobei die Festkörperdiffusion wegen der langen Diffusionswege eine untergeordnete Rolle spielte /33/. Wie nach thermodynamischen Rechnungen /27/ zu erwarten war, ergab sich, daß der Sauerstofftransport über die Gasphase im unterstöchiometrischen Brennstoff in Richtung niedriger Temperaturen erfolgt. Experimente mit Anordnungen, in denen der Beitrag der Gasphase unter-

drückt werden konnte, ergaben ebenfalls einen Transport in Richtung niedriger Temperaturen, jedoch mit anderen O/M-Gradienten /12/.

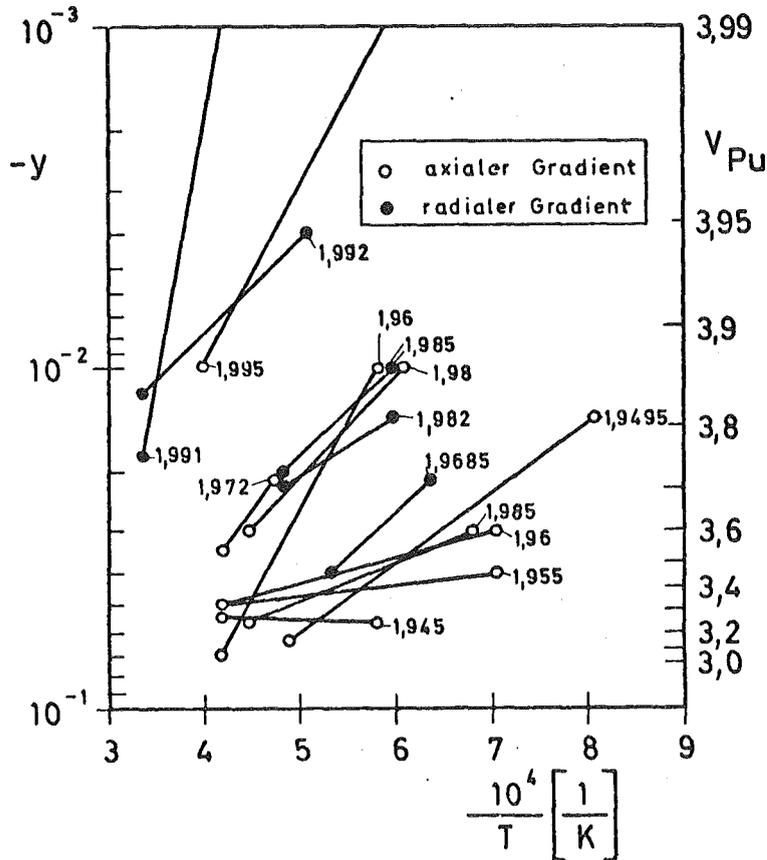


Abb.3 Logarithmus  $y$  über der reziproken Temperatur nach Festkörper-Thermodiffusion in  $(U_{0.85}Pu_{0.15})O_{2+y}$  /12/. Die Parameter an den Graden sind die mittleren O/M-Verhältnisse in den entsprechenden Proben.

In der Abb.3 sind die mittleren Gradienten der Stöchiometrieabweichungen in understöchiometrischem  $(U_{0.85}Pu_{0.15})O_{2+y}$  als  $\partial \ln y / \partial (1/T)$  aufgetragen, die aus den Experimenten zur Thermodiffusion in der festen Phase ermittelt wurden. Das Diagramm zeigt eine eindeutige Abhängigkeit der Gradienten der Stöchiometrieabweichung  $y$  vom mittleren O/M-Verhältnis. Der Entmischungseffekt verschwindet bei einem mittleren O/M=1.945, d.h. bei einer mittleren Plutonium-Wertigkeit von 3,27, während er für hohe O/M-Verhältnisse, also in der

Nähe des stöchiometrischen Zustands am größten ist. Die ausgefüllten Kreise in Abb.3 kennzeichnen die Ergebnisse von Experimenten mit radialem Temperaturgradienten, während sich die offenen Kreise auf Experimente mit linearen axialen Temperaturgradienten beziehen.

Im Mischoxid bildet sich unter Einfluß des Temperaturgradienten ein Gradient im thermoelektrischen Potential aus, der auf die Sauerstoffionen eine Kraft ausübt. Diese Kraft versucht, den Sauerstoff bei den im Brennstoff auftretenden Temperaturen zum Zentrum des Brennelements zu transportieren. Sie wirkt also im unterstöchiometrischen Brennstoff dem durch Gitterkräfte verursachten Thermodiffusionstransport entgegen. Der dominierende Prozeß ist hier jedoch die Thermodiffusion, weil alle Experimente einen Transport zu niedrigeren Temperaturen anzeigen.

Über Thermodiffusion in überstöchiometrischem Mischoxid liegen keine experimentellen Ergebnisse vor. Wegen der Abnahme der chemischen Bindungskräfte mit steigender Temperatur ist jedoch zu erwarten, daß auch hier die Thermodiffusion in der festen Phase eine Anreicherung des Sauerstoffs bei niedrigeren Temperaturen anstrebt. Dagegen sorgen die elektrischen Kräfte und der Gastransport für eine Verlagerung des Sauerstoffs zum Zentrum des Brennstoffs. Die Untersuchung der Sauerstoffentmischung im überstöchiometrischen Oxidbrennstoff bestrahlter Brennstäbe und unbestrahlter Brennstoffproben ergab, daß der Sauerstoff zum Zentrum wandert /35/. Daraus folgt, daß entweder die Diffusion im elektrischen Potentialgradienten oder der Gastransport der beherrschende Entmischungsprozeß ist. Aus der Existenz von sehr dichten Strukturen im bestrahlten überstöchiometrischen Mischoxid und aus der außerordentlich hohen Sauerstoffbeweglichkeit könnte man jedoch ableiten, daß der elektrische Potentialgradient für die Einstellung des stationären Zustandes durch Gitterdiffusion des Sauerstoffs verantwortlich ist. Deshalb scheint eine Untersuchung der Thermoelektrizität in den Oxidbrennstoffen unerläßlich.

### 6.3. Spaltprodukte

Die Spaltprodukte unterliegen den gleichen Transportprozessen wie Uran und Plutonium. In Nachbestrahlungsuntersuchungen wurden vielfältige Entmischungen der Spaltprodukte beobachtet, es gibt jedoch nur wenig Hinweise auf die Prozesse, die diese Entmischungen hervorrufen. Bisher sind nur für Cer Laborexperimente zur Untersuchung der Thermodiffusion durchgeführt worden. Hier soll kurz auf das Ergebnis eines dieser Experimente eingegangen werden.

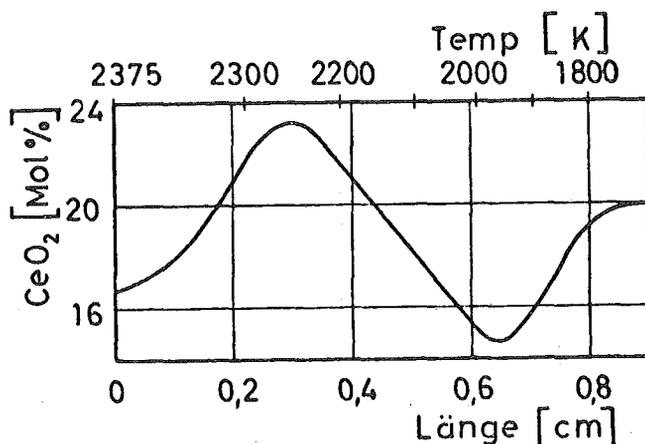


Abb. 4 Axiale Ce-Verteilung in einer  $(U_{0,8}Ce_{0,2})O_{1,95}$ -Probe nach 185 h Glühung im Temperaturgradienten.

Wir betrachten ein Experiment, in dem ein zylindrisches Pellet aus  $(U_{0,8}Ce_{0,2})O_{1,95}$  innerhalb eines dichten Tantal-Behälters einem axialen Temperaturgradienten ausgesetzt wurde /4/. Die anschließende Messung der Cer-Konzentrationsverteilung ergab das in Abb. 4 wiedergegebene Konzentrationsprofil. Bei diesen relativ niedrigen Temperaturen ist der Effekt verglichen mit dem in Uran-Plutonium-Mischoxid viel größer, weil die Ce-Ionen eine viel höhere Beweglichkeit haben als die U- und Pu-Ionen. Das Konzentrationsprofil zeigt als Besonderheit einen starken Abfall zum heißen Ende des Pellets hin, der von einer Umkehr des Thermodiffusionstransports und

auch von einem Materialtransport durch Verdampfung und Kondensation in wandernden Poren herrühren kann. Die Umkehr des Thermodiffusions-transportes kann ihre Ursache in der Abnahme des O/M-Verhältnisses mit steigender Temperatur haben. Bei dieser Überlegung müssen wir bedenken, daß der Tantal-Behälter durch Aufnahme von Sauerstoff in der ersten Phase der Glühung das Mischoxid auf ein mittleres O/M-Verhältnis von etwa 1,95, d.h. eine Cer-Wertigkeit von 3,5, reduziert hat. Am Beispiel der Thermodiffusion des Sauerstoffs in Uran-Plutonium-Mischoxid wird im nächsten Abschnitt gezeigt werden, daß eine Abhängigkeit der Überführungswärme vom O/M-Verhältnis wahrscheinlich ist.

## 7. Berechnung der Überführungswärmen

Wie in Abschnitt 2 gezeigt wurde, bestimmt die Überführungswärme das Ausmaß und die Richtung des Transports durch Thermodiffusion. Sie läßt sich leicht aus der Soret-Beziehung bestimmen, wenn der stationäre Zustand der Entmischung erreicht ist. Im Falle der Thermodiffusion von Uran und Plutonium wird jedoch der stationäre Zustand nicht erreicht, da die Beweglichkeit der Kationen im Brennstoff zu gering ist. Die Größe des Effektes ist deshalb zeitabhängig und wird vom Diffusionskoeffizienten mitbestimmt. Eine Berechnung der Überführungswärme gelingt mit Hilfe der Flußgleichung der Thermodiffusion, Gl.(27). In diese Gleichung wird der Diffusionskoeffizient  $D_{UPu}$  temperaturabhängig in der expliziten Form,

$$D_{UPu} = D_0 \cdot \exp(-Q/RT), \quad (36)$$

mit konstantem Vorfaktor  $D_0$  und der Aktivierungsenergie  $Q$  eingeführt. Für die Überführungswärme  $Q_{UPu}^*$  wird zunächst ein Schätzwert vorgegeben und die Entwicklung der Konzentrationsverteilung  $x(r,t)$  mit Hilfe der Kontinuitätsgleichung

$$\operatorname{div} J'_{\text{Pu}}(r,t) = -(\partial x(r,t)/\partial t) \quad (37)$$

numerisch in Zeitschritten  $dt$  als Funktion der Zeit berechnet:

$$x(r,t+dt) = x(r,t) - \operatorname{div} J'_{\text{Pu}}(r,t) \cdot dt. \quad (38)$$

In einem Näherungsverfahren wird dann der Wert von  $Q_{\text{UPu}}^*$  solange verändert, bis die errechnete Konzentrationsverteilung mit der experimentell gefundenen möglichst gut übereinstimmt. Wenn sich die errechnete und die gemessene Konzentrationskurve decken, ist der eingesetzte Wert von  $Q_{\text{UPu}}^*$  mit der Überführungswärme, die der Entmischung von Uran und Plutonium zugrunde liegt, identisch.

Bei bekanntem  $Q_{\text{UPu}}^*$  kann man mit der Flußgleichung und der Kontinuitätsgleichung die Konzentrationsverteilungen für sehr lange Diffusionszeiten, wie sie in Reaktorbrennelementen auftreten, berechnen und damit quantitative Vorhersagen machen (vgl. Abschnitt 8).

Die erste Bestimmung der Überführungswärme des Plutoniums unter definierten Bedingungen wurde in einem Laborexperiment an Mischoxidbrennstoff mit der Zusammensetzung  $(\text{U}_{0,85}\text{Pu}_{0,15})\text{O}_{1,98}$  (s. Abb. 2) durchgeführt /7, 8/. Es ergab sich dabei in dem Temperaturbereich zwischen 2200 und 2700 K der Wert

$$Q_{\text{UPu}}^* = -35 \text{ Kcal/Mol.} \quad (39)$$

Eine zweite Bestimmung von  $Q_{\text{UPu}}^*$  erfolgte anhand der Nachbestrahlungsuntersuchung des Mischoxid-Brennstabes mit  $(\text{U}_{0,70}\text{Pu}_{0,30})\text{O}_{1,95}$ , der einen Thermodiffusionseffekt zeigt /11/ (vgl. Abschnitt 6, Abb. 1). Der Diffusionskoeffizient von Plutonium, der in die Berechnung eingeht, hängt nach neueren Messungen von Matzke /36/ vom Stöchiometriezustand des Mischoxids ab und durchläuft im unterstöchiometrischen Bereich bei einer Plutoniumwertigkeit von 3,8 ein Minimum. Diesem Umstand wurde bei der Bestimmung der Überfüh-

rungswärme Rechnung getragen, indem die Aktivierungsenergie mit der Wertigkeit des Plutoniums im Brennstoff, die mit dem Abbrand ansteigt, variiert wurde /29/. Das Ergebnis der Berechnung der Konzentrationsverteilung des Plutoniums ist in Abb.5 wiedergegeben. Mit einer Überführungswärme von

$$Q_{UPu}^* = -30 \text{ Kcal/Mol}, \tag{40}$$

deren Wert nur wenig von den im Laborexperiment bestimmten  $-35\text{Kcal/Mol}$  abweicht, wurde im Temperaturbereich zwischen 2000 und 2550 K die beste Anpassung an die Meßkurve erzielt. Die Zentraltemperatur betrug 2550 K. In dem Bereich hoher Temperaturen, in dem die Diffusionsvorgänge bei der Ausbildung der Konzentrationsverteilung dominiert haben, zeigt sich eine gute Übereinstimmung zwischen der errechneten und der gemessenen Kurve.

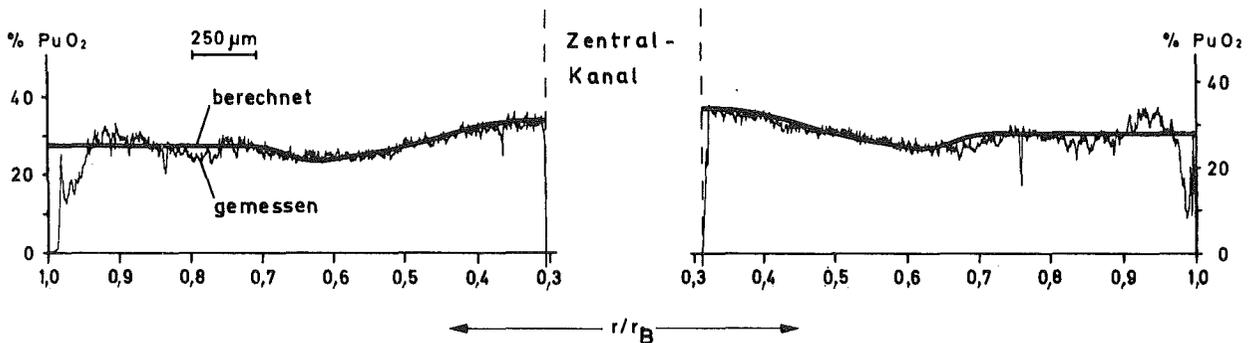
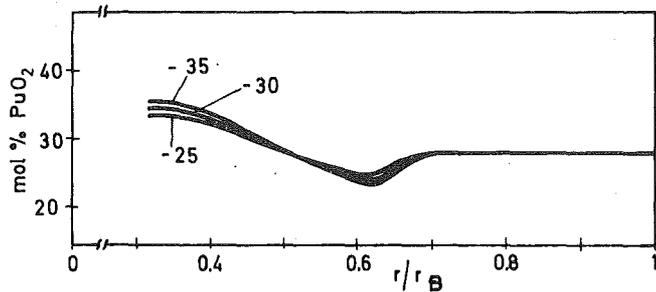


Abb.5 Diametrische Plutoniumverteilung in dem stark unterstöchiometrischen Brennstab mit anfänglicher Pu-Wertigkeit von 3,67 nach 6,8% Abbrand , gemessen und berechnet /11/.

Mit Abb.6 soll gezeigt werden, wie empfindlich die Überführungswärme die Größe des Entmischungseffektes steuert. Die Konzentrationskurven wurden für drei verschiedene Überführungswärmen unter den Bedingungen, die für Abb.5 gelten, errechnet. Man sieht, daß man bei Unterschieden von 5 Kcal/Mol in den Überführungswärmen die Effekte noch deutlich trennen kann.

In allen experimentell ermittelten Werten für  $Q_{UPu}^*$  ist der Einfluß des thermoelektrischen Potentialgradienten entsprechend Gl.(26) ent-

halten. In unterstöchiometrischem Mischoxid kann der thermoelektrische Anteil an  $Q_{UPu}^*$  beträchtlich sein, weil die Thermodiffusion des Sauerstoffs den Potentialgradienten erhöht.



**Abb.6** Radiale Plutoniumverteilung, berechnet mit Überführungswärmen von -35, -30 und -25 Kcal/Mol (gleiche Bedingungen wie in Abb.5).

Bei der Behandlung der Thermodiffusion des Sauerstoffs im Mischoxidbrennstoff kann man davon ausgehen, daß der stationäre Zustand der Konzentrationsverteilung erreicht wird, da die Beweglichkeit der Sauerstoffionen sehr viel größer ist als die der Kationen. Dadurch läßt sich die Überführungswärme relativ leicht aus der Steigung der gemessenen Konzentrationskurven (Abb.3) bestimmen, indem man den in Gl.(34) bzw. (35) gegebenen Soret-Koeffizienten ausrechnet. Die Überführungswärme der Sauerstoffleerstellen, mit der sich der Sauerstofftransport im unterstöchiometrischen Mischoxid beschreiben läßt, ist für verschiedene Stöchiometriezustände des Brennstoffs ermittelt worden /12, 33, 35/. Die Ergebnisse, die aus Laborexperimenten sowohl mit axialem als auch mit radialem Temperaturgradienten erhalten wurden, sind in Abb.7 zusammengestellt. Sie beruhen auf Thermodiffusion in der festen Phase, lediglich die mit einem viereckigem Symbol bezeichneten Werte wurden aus einem Experiment erhalten, das einen kombinierten Gasphasen-Festkörpertransport zuließ /33/.

Der Streubereich der Messungen ist relativ groß. Am größten ist er in der Nähe des stöchiometrischen Zustandes, weil dort der Fehler der O/M-Bestimmung am stärksten eingeht. Jedoch dürften die wirklichen Überführungswärmen in dem schraffierten Gebiet zu suchen sein. Eine Abhängigkeit der Ergebnisse vom Temperaturbereich, in dem die Mes-



metrischem Mischoxid keinen entscheidenden Beitrag liefern. Anders ist es im Falle der Kationen Uran und Plutonium. Da entscheidet die Stöchiometrie, Stabileistung und das Abbrandstadium darüber, ob der Entmischungseffekt durch Thermodiffusion allein dargestellt werden kann, oder ob Verdampfungsprozesse berücksichtigt werden müssen. Hier soll nur die Thermodiffusion berücksichtigt werden, die nach höherem Abbrand im stark unterstöchiometrischen Brennstoff und in jedem Fall bei sehr hohen Stabileistungen (über 500 W/cm) den Entmischungseffekt bestimmt. Bei mittleren und niedrigen Stabileistungen in leicht unterstöchiometrischen und stöchiometrischen Oxidbrennstoffen muß dagegen Verdampfung und Kondensation in wandernden Poren und Rissen als Hauptursache für die Entmischung angesehen werden. Eine Abschätzung dieser Effekte unter Berücksichtigung der Untersuchungsergebnisse bestrahlter Brennstäbe wurde in einer früheren Arbeit durchgeführt /29/.

Zunächst soll nun die radiale Sauerstoffverteilung, die sich durch Thermodiffusion in der festen Phase einstellt, berechnet werden. Sie muß bekannt sein, wenn die Plutoniumverteilung ermittelt werden soll, weil sie den Diffusionskoeffizienten und die Temperaturverteilung im Brennstoff beeinflusst.

Die Verteilung des Sauerstoffs im unterstöchiometrischen Brennstab wird für den stationären Zustand errechnet, der sich im Reaktor schon nach kurzer Zeit einstellt. Dabei gehen wir von der Soret-Beziehung, Gl.(34), aus und variieren in einem numerischen Verfahren die Überführungswärme entsprechend Gl.(41) mit der lokalen Plutonium-Wertigkeit. Das Ergebnis der Rechnung ist für verschiedene mittlere Plutonium-Wertigkeiten in Abb.8b dargestellt, in der die lokale Plutonium-Wertigkeit als Funktion des Radius für eine in schnellen Reaktoren zu erwartende Temperaturverteilung eingetragen ist. Die Temperaturen sind am oberen Rand des Diagramms angegeben. Am rechten Rand ist zum Vergleich mit den effektiven Plutonium-Wertigkeiten das O/M-Verhältnis für einen Brennstoff mit 20 Mol% Plutoniumoxid vermerkt. Die Zahlen an den Kurven geben die über den Radius gemittelte Plutonium-Wertigkeit an.

borexperiment. Andernfalls müßten zwischen den Ergebnissen der Experimente mit axialen und radialen Temperaturgradienten merkliche Unterschiede bestehen. Denn in den Experimenten mit axialem Gradienten waren die Proben vollständig in Wolfram- bzw. Molybdäntiegeln eingeschlossen, so daß man mit thermoelektrischen Kräften in der Größenordnung derer im Tiegelmateriale rechnen mußte. In den anderen Experimenten waren die Proben dagegen nicht umhüllt. Daß trotzdem keine Unterschiede gefunden wurden, könnte daran liegen, daß die thermoelektrischen Kräfte in unterstöchiometrischem Mischoxid-Brennstoff die gleiche Größenordnung haben wie in den Metallen Wolfram und Molybdän, wo sie im Temperaturbereich von 1000 bis 2000 K 10 bis 20  $\mu\text{V/K}$  betragen.

Von den Spaltprodukten wurde bisher nur für Cer in Uran-Cer-Mischoxid eine Untersuchung der Thermodiffusion durchgeführt /4/. Aus einem Laborexperiment mit  $(\text{U}_{0,8}\text{Ce}_{0,2})\text{O}_{1,95}$  (s. Abb. 4) ergab sich unter Anwendung der Flußgleichung (29) im Temperaturbereich zwischen 1900 und 2200 K eine Überführungswärme von

$$Q_{\text{CeU}}^* = -24 \text{ Kcal/Mol}, \quad (42)$$

die für eine erste Berechnung der Konzentrationsverteilung des Spaltproduktes Cer in Oxidbrennstoff dienen kann. Für eine genauere Analyse fehlen noch Messungen der Spaltproduktverteilung in bestrahlten Brennstäben.

## 8. Quantitative Vorhersagen für Brennstäbe schneller Reaktoren

Wir wollen nun mit den ermittelten Überführungswärmen Entmischungseffekte in Mischoxidbrennstäben schneller Reaktoren als Funktion des Abbrandes berechnen. Für Sauerstoff dürfte damit der Haupteffekt bestimmt sein, da die anderen Entmischungsprozesse in unterstöchio-

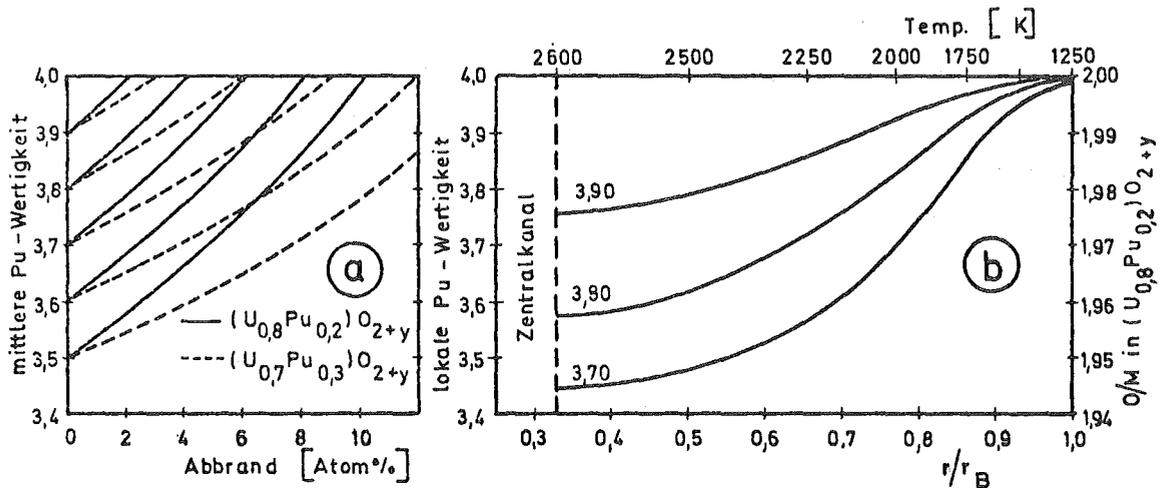


Abb.8 Variation der effektiven Plutonium-Wertigkeit in unterstöchiometrischem Mischoxid  
 a) als Funktion des Abbrandes für Plutoniumoxidkonzentrationen von 20 und 30 Mol%  
 b) als Funktion des relativen Radius bzw. der Temperatur für verschiedene mittlere Plutonium-Wertigkeiten

Wie Abb.8b zeigt, wird der Sauerstoff vom Zentrum des Brennstoffs zur Peripherie transportiert. Während bei hohen Temperaturen ein stark unterstöchiometrischer Brennstoff entsteht, bleibt er bei den niedrigsten Temperaturen am Rande nahezu stöchiometrisch.

Bei der Betrachtung der Eigenschaften des Brennstoffs unter Bestrahlung müssen wir berücksichtigen, daß die effektive Wertigkeit des Plutoniums mit dem Abbrand ansteigt, da die Spaltprodukte nicht den ganzen Sauerstoff binden, der durch die Spaltung der Uran- und Plutoniumatome freigesetzt wird. In der Abb.8a ist gezeigt, wie die über den Radius gemittelte Wertigkeit des Plutoniums mit dem Abbrand ansteigt /26/. Wegen der Pufferwirkung des Plutoniums hängt dieses Verhalten stark von der Konzentration des Plutoniums ab. Deshalb zeigt Abb.8a das Verhalten zweier Mischoxide, die 20 bzw. 30 Mol% Plutoniumoxid enthalten. Wie zu erwarten, erfolgt die Zunahme des O/M-Verhältnisses bei höherer Plutoniumoxidkonzentration viel langsamer. Bei 20 Mol% Plutoniumoxid sollte die Plutonium-Wertigkeit etwa 3,6 betragen, wenn erst nach 7% Abbrand das für die Hüllreaktionen kritische Sauerstoffpotential des stöchiometrischen Brenn-

stoffs erreicht werden soll. Bei einem Mischoxid mit 30 Mol% erreicht man das bereits mit einer Plutonium-Wertigkeit von 3,75. Natürlich hängt die Entwicklung des O/M-Verhältnisses mit dem Abbrand auch von der Isotopen-Zusammensetzung des Urans ab. Enthält das Mischoxid angereichertes Uran, wächst das O/M-Verhältnis nicht so schnell mit dem Abbrand, weil dann ein günstigeres Spaltproduktspektrum vorliegt. Das muß beim Vergleich mit Mischoxiden aus Natururan unbedingt berücksichtigt werden. Dieser Umstand ist an anderer Stelle ausführlich behandelt /26/.

Mit der Abb.8a und 8b kann die Sauerstoffverteilung in verschiedenen Abbrandstadien ermittelt werden, wenn man die an den Kurven in Abb.8b angegebenen mittleren Plutonium-Wertigkeiten mit der Entwicklung der Wertigkeit als Funktion des Abbrandes in Abb.8a vergleicht.

Die Berechnung der Plutonium-Konzentrationsverteilung, die sich im Brennstab durch Thermodiffusion einstellt, wurde mit einer Überführungswärme von -35 Kcal/Mol für einen Mischoxid-Brennstoff mit 20 Mol% Plutoniumoxid berechnet. Dabei wurde von einem anfänglichen O/M-Verhältnis von 1,975, d.h. einer Plutonium-Wertigkeit von 3,75, ausgegangen. Dieser Stöchiometriezustand erscheint sehr interessant, einerseits weil er in der Fertigung noch eingehalten werden kann und andererseits, weil er die starken Entmischungen durch Verdampfung und Kondensation während der Restrukturierung des Brennstoffs verhindern würde. Für die Bestimmung des Diffusionskoeffizienten und der Temperaturverteilung wurde bei den Rechnungen die durch die Abb.8a und 8b gegebene Änderung der effektiven Plutonium-Wertigkeit mit dem Abbrand und entlang des Radius zugrunde gelegt.

In der Abb.9a wird die errechnete Verteilung des Plutoniums für verschiedene Stabileistungen nach 1% und 9% Abbrand zusammen mit der errechneten Temperaturverteilung gezeigt /29/. Man sieht, daß schon nach 1% Abbrand eine relativ große Anreicherung von Plutonium am Zentralkanal stattgefunden hat, die sich auch in einer entsprechenden Temperaturerhöhung ausdrückt. Die gestrichelte Temperaturkurve stellt dabei den Zustand bei einer gleichmäßigen Plutoniumverteilung

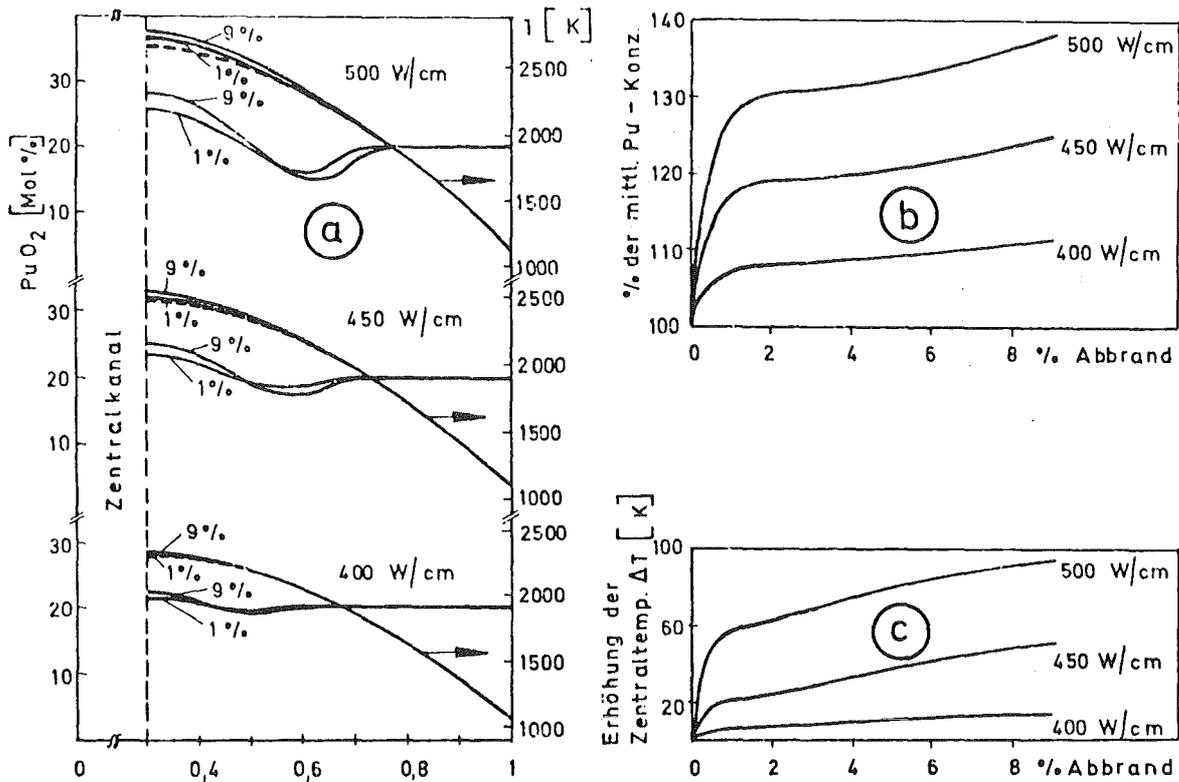


Abb.9 Einfluß der Thermodiffusion auf den Brennstab eines schnellen Reaktors /29/

- Errechnete radiale Plutoniumentmischung durch Thermodiffusion mit Temperaturverteilung für verschiedene Stableistungen und Abbrände
- Errechnete Erhöhung der Plutoniumkonzentration am Zentralkanal als Funktion des Abbrandes für verschiedene Stableistungen
- Durch die Entmischung hervorgerufene Erhöhung der Zentraltemperatur als Funktion des Abbrands.

lung dar. Das Bild zeigt deutlich, daß oberhalb 500 W/cm bedeutende Effekte zu erwarten sind, während bei Stableistungen unter 450 W/cm nur eine geringfügige Entmischung stattfindet. In den Abb.9b und 9c sind die mittlere Erhöhung der Plutoniumkonzentration am Zentralkanal und die verursachte Zentraltemperaturerhöhung explizit als Funktion des Abbrandes dargestellt. Es zeigt sich hier deutlich, daß sich die Entmischung in der ersten Abbrandphase am stärksten entwickelt. Das liegt einmal daran, daß im anfangs stark unterstöchiometrischen Brennstoffinnern die Beweglichkeit der Uran- und

Plutoniumionen höher ist, zum anderen ist in dieser Phase wegen des zeitweise schlechten Kontaktes zwischen Brennstoff und Hülle eine erhöhte Temperatur vorhanden. Die Abb.9c zeigt klar, daß unterhalb einer Stabileistung von 450 W/cm die Temperaturerhöhungen durch Thermoeffusionstransport vernachlässigbar klein sind. Man muß nur durch geeignete Wahl der Stöchiometrie, z.B. einer Plutonium-Wertigkeit von 3,75, verhindern, daß durch Verdampfung und Kondensation bedeutende Beiträge zur Entmischung geliefert werden.

### 9. Schlußfolgerungen

Wir konnten sehen, daß der Thermoeffusionstransport in oxidischen Brennstäben schneller Reaktoren eine wichtige Rolle spielt, aber auch, daß die verursachten Entmischungen berechnet werden können. Die Kenntnis der wirksamen Faktoren erlaubt es uns, durch geeignete Spezifikation des Brennstoffs die Transportvorgänge und damit das Verhalten der Brennstäbe zu beeinflussen.

Betrachten wir zunächst die Entmischung von Uran und Plutonium. Hier ergibt sich, daß für den normalen Fall eines schnellen Reaktors mit Stabileistungen kleiner als 450 W/cm keine störenden Temperaturerhöhungen zu erwarten sind, wenn die Entmischung durch Verdampfungsprozesse unterbunden werden kann. Das bedeutet für die Spezifikation des Brennstoffs: Die effektive Plutonium-Wertigkeit sollte anfangs etwa 3,75 oder kleiner sein, d.h. das O/M-Verhältnis sollte bei  $(U_{0,8}Pu_{0,2})O_{2+y}$  nicht größer als 1,975 und bei  $(U_{0,7}Pu_{0,3})O_{2+y}$  nicht größer als 1,965 sein. Wie schon früher gezeigt wurde /29/, muß bei stöchiometrischen oder nur leicht unterstöchiometrischen Brennstoffen durch die Entmischung über Verdampfung und Kondensation mit einer Erhöhung der Zentraltemperatur um maximal 150°C gerechnet werden.

Die Berechnung der radialen Sauerstoffverteilung mit der von der

Plutonium-Wertigkeit abhängigen Überführungswärme ergab eine starke Reduktion im Innern mit einem etwa konstanten O/M-Verhältnis im Bereich der Säulenkristalle. An der Brennstoffperipherie ist jedoch auch bei starker Unterstöchiometrie ein nahezu stöchiometrischer Zustand vorhanden, der aber noch nicht das für eine verstärkte Reaktion mit der Hülle kritische Sauerstoffpotential besitzt. Wenn dieses kritische Potential erst im letzten Abbrandstadium erreicht werden soll, muß ein stark unterstöchiometrischer Brennstoff eingesetzt werden, weil die effektive Wertigkeit des Plutoniums mit dem Abbrand ansteigt. Deshalb sollte das O/M-Verhältnis in den Mischoxiden nicht viel größer als 1,96 sein, d.h. die effektive Plutonium-Wertigkeit muß etwa 3,6 in  $(U_{0,8}Pu_{0,2})O_{2+y}$  und etwa 3,75 in  $(U_{0,7}Pu_{0,2})O_{2+y}$  sein. In diesem Fall wird erst nach 7% Abbrand ein für die Reaktion mit der Hülle kritisches Sauerstoffpotential am Rande erreicht.

Für umfassendere Betrachtungen fehlen noch Überführungswärmen für Sauerstoff im überstöchiometrischen Mischoxid und die Kenntnis der thermoelektrischen Kräfte im Temperaturgradienten. Über die Thermodiffusion der Spaltprodukte ist ebenfalls noch sehr wenig bekannt, obwohl bei diesen zum Teil massive Entmischungserscheinungen auftreten. Laborexperimente unter definierten Bedingungen können hier helfen, Kenntnis von den Mechanismen und Einflußgrößen der Transportvorgänge zu erlangen.

Literatur

1. K. Wirtz, Zur Kinetik der Thermodiffusion in Flüssigkeiten, Ann. Phys. 5.Folge, 36, 295 (1939)
2. K. Wirtz, Zur kinetischen Theorie der Thermodiffusion im Kristallgitter, Phys. Z. 44, 221 (1943)
3. K. Wirtz, Thermodiffusion und Überführungswärmen in kondensierten Phasen, Z.Physik 124, 482 (1948)
4. H. Beisswenger, M. Bober, G. Schumacher, Thermodiffusion im System  $UO_2-CeO_2$ , J.Nucl.Mater. 21, 38 (1967)
5. H. Beisswenger, M. Bober, G. Schumacher, Thermal Diffusion in  $UO_2-PuO_2$  Mixtures, Proc. IAEA Symp., Plutonium as a Reactor Fuel, Vienna 273 (1967)
6. K. Wirtz, Thermal Diffusion in Nuclear Reactor Fuels, J.Am. Chem.Soc. 90, 3098 (1968)
7. M. Bober, C. Sari, G. Schumacher, Plutonium Migration in a Thermal Gradient in Mixed (U, Pu) Oxide Fuels, Trans.Am. Nucl.Soc. 12, 603 (1969)
8. M. Bober, C. Sari, G. Schumacher, Redistribution of Plutonium and Uranium in Mixed (U, Pu) Oxide Fuel Materials in a Thermal Gradient, J.Nucl.Mater. 39, 265 (1971)
9. M. Bober, G. Schumacher, Material Transport in the Temperature Gradient of Fast Reactor Fuels, Adv.in Nucl.Sci. and Technol. Vol.7 (Chap.2), Academic Press, New York (1973)
10. M. Bober, D. Geithoff, G. Schumacher, Plutonium Redistribution in Fast Reactor Mixed Oxide Fuel Pins, J.Nucl.Mater. 47,187(1973)

11. M. Bober, H. Kleykamp, G. Schumacher, Investigation of Radial Plutonium Redistribution in Mixed Oxide Fuels Irradiated in a Fast Flux, Nucl.Techn.(1975), im Druck
12. C. Sari, G. Schumacher, Radial Transport of Oxygen in Mixed Oxide Fuel Pins, Proc. IAEA Symp. on Thermodynamics of Nuclear Materials (Paper IAEA-SM-190/33), Vienna (1974)
13. M.Ch. Soret, Sur l'état d'équilibre que prend, au point de vue de sa concentration, une dissolution saline primitivement homogène dont deux parties sont portées a des températures différentes, Ann.chim.phys., 5.serie, 22, 293 (1881)
14. D. Enskog, Bemerkungen zu einer Fundamentalgleichung in der kinetischen Gastheorie, Phys.Z. 12, 533 (1911)
15. S. Chapman, On the Partial Separation by Thermal Diffusion of Gases of Equal Molecular Weight, Phil.Mag. 34, 146(1917)
16. S. Chapman, F.W. Dootson, A Note on Thermal Diffusion, Phil.Mag. 33, 248 (1917)
17. K. Clusius, G. Dickel, Neues Verfahren zur Gasentmischung und Isotopentrennung, Naturw. 26, 546 (1938)
18. E.D. Eastman, Thermodynamics of Non-Isothermal Systems, J.Am.Chem.Soc. 48, 1482 (1926)
19. C. Wagner, Über die thermodynamische Behandlung stationärer Zustände in nicht isothermen Systemen, Ann.Physik, 5.Folge, 3, 629 (1929)
20. M. Bober, C. Sari, G. Schumacher, Redistribution of Uranium and Plutonium during Evaporation Processes in Mixed Oxide Fuels, J.Nucl.Mater. 40, 341 (1971)

21. G. Schottky, A Theory of Thermal Diffusion, Phys.Stat.Sol.8, 357 (1965)
22. R.E. Howard, J.R. Manning, Theory of Thermal Diffusion in Dilute Alloys, J.Chem.Phys. 36, 910 (1961)
23. S.R. deGroot, P. Mazur, Non-equilibrium Thermodynamics, North Holland Publ.Comp.Amsterdam, 1962
24. A.B. Lidiard, Mass Transfer Along a Temperature Gradient, Proc. IAEA Symp. Thermodynamics of Nuclear Materials, Vienna, Vol.2, 3 (1966)
25. L.S. Darken, Diffusion, Mobility and their Interrelation through Free Energy in Binary Metallic Systems, Trans.AIME, 174, 184 (1948)
26. M. Bober, G. Schumacher, Berechnung der vom Abbrand abhängigen Stöchiometrieverschiebung und der radialen Sauerstoffverteilung in unterstöchiometrischen Mischoxid-Brennstäben, KFK 1965 (1975)
27. M.H. Rand, T.L. Markin, Some Thermodynamic Aspects of (U,Pu)O<sub>2</sub> Solid Solutions and their Use as Nuclear Fuels, Thermodyn.of Nucl.Mater., Proc. IAEA Symp., Vienna (1967) p.637
28. R.W. Ohse, W.M. Olson, Evaporation Behavior of Substoichiometric (U,Pu)O<sub>2</sub>, Proc. 4th Int. Conf., Plutonium and Other Actinides, Santa Fe (1970) p. 743
29. M. Bober, G. Schumacher, Erhöhung der Zentraltemperatur durch Uran-Plutonium-Entmischung in Mischoxidbrennstäben schneller Reaktoren, KFK 1904 (1974)
30. P.E. Nowak, T.A. Lauritzen, R. Protsik, J.H. Davies, E.L.Zebrowski, Plutonium and Fission Product Redistribution in Mixed Oxide Fuels, ANL-7120 (1965)

31. R.O. Meyer, E.M. Butler, D.R. O'Boyle, Actinide Redistribution in Mixed Oxide Fuels Irradiated in a Fast Flux, ANL-7929 (1972)
32. M. Mouchnino, Thermodiffusion et vaporisation dans les oxydes mixtes irradiés évolution du rapport Pu/(U+Pu), Panel on the behavior and chemical state of fission products in irradiated fuel, Aug. 1972,, C.E.A., Fontenay-aux-Roses, France
33. S.K. Evans, E.A. Aitken, C.N. Craig, Effect of a Thermal Gradient on the Stoichiometry of Urania-Plutonia Fuel, J.Nucl.Mater. 30, 57 (1969)
34. G. Schumacher, Entmischung von Uran und Plutonium in oxidischen Kernbrennstoffen unter Einwirkung eines Temperaturgradienten, Ext.Ber.INR-4/70-27, KFK Karlsruhe (1970)
35. E.A. Aitken, S.K. Evans, M.G. Adamson, J.H. Davies, Oxygen Redistribution and its Measurement in Irradiated Oxide Fuels, Proc. IAEA Symp. on Thermodynamics of Nuclear Materials (Paper IAEA-Sym-190/54) Vienna (1974)
36. Hj. Matzke, Lattice Disorder and Metal Self Diffusion in Nonstoichiometric  $UO_2$  and  $(U,Pu)O_2$ , J.Physique C9, 34, 213 (1973).



The Development of the Gas Cooled Fast Breeder Reactor

M. Dalle Donne\*

Institut für Neutronenphysik und Reaktortechnik  
Kernforschungszentrum Karlsruhe

1. Introduction

Fermi and Zinn started already in 1944 to consider the possibility of using fast breeder reactors, capable to increase the uranium energy reserve of the world by a factor 50 in comparison with the case of using thermal converter reactors only. The beginning of construction of the first fast reactor, Clementine, in Los Alamos, was 1946. The reactor was cooled by mercury. The second fast reactor, EBR1 in Idaho, was started in 1949. The coolant was NaK. These reactors and the next following had metallic fuel and the core power was relatively small. This lead to very high power densities and small coolant passages in the core. In these conditions, and considering the technological development of that time, there was no other possibility as to choose a liquid metal as coolant. Water was excluded for neutron thermalisation reasons and a gas looked as too a poor heat transfer medium to be able to cool a very small core with tremendous power densities.

At the beginning of the sixties however it was found that oxide fuel was better than metal, due to the experience gained with Light Water Reactors, which showed that with oxide fuel it was possible to reach higher burn-ups, the fuel could withstand higher temperatures, and it was more compatible with the coolant and the cladding. First BR5 in Russia and Rapsodie in France used  $UO_2$ - $PuO_2$  as fuel. The power and the size of the cores of the subsequent reac-

---

\* Delegated by Euratom to the Karlsruhe Fast Breeder Project

tors increased steadily. It is now a generally recognized fact that a reactor power plant can be economical only if it is of very large size, at least greater than 500 MWe and may be even as high as 1000-2000 MWe. The thermal conductivity of the oxide fuel is much less of that of the fuel metal alloys, thus the linear power rating possible with oxide fuel is also considerably smaller than with metal fuel. Furthermore greater core sizes allow more space for coolant passages and therefore make the use of worse coolants than liquid metals more likely. Indeed the pumping power required to cool the core is proportional to the fifth power of the size of the coolant channels.

At the same time the development of gas cooled reactors - Magnox and AGR's in England, Magnox reactors in France, High Temperature Reactors in U.S.A., Germany and England - showed that high pressure gas can be used as coolant of the core thermal reactors. An increase in pressure is very effective in improving the heat transfer properties of a coolant gas. Indeed the thermal performance of a coolant, defined as the ratio of the extracted heat to the required pumping power, is proportional to the square of the gas pressure.

Especially important for the increase of the gas pressure was the development of the prestressed concrete pressure vessels. These have been initially developed in France mainly due to difficulties and extra costs of welding, and afterwards annealing, very thick steel vessels on the site. Since then, both the size and the working pressure of the concrete vessels have increased steadily in France and in England, mainly for CO<sub>2</sub> cooled thermal reactors of the Magnox or AGR type. In Germany the THTR (Thorium-Hochtemperaturreaktor) is presently under construction. The primary helium coolant circuit of this prototype reactor of 300 MWe power is contained in a concrete pressure vessel of 16 meters inner diameter. The helium working pressure is 40 Atms. In the United States the construction of the 330 MWe High Temperature Reactor prototype of Fort St. Vrain is completed and the reactor will be brought at full power probably in 1975. The helium working pressure

is 50 Atms. A 1:3 scale model of a concrete pressure vessel with 2.5 meters inner diameter has been built in Germany /1/ and tested successfully at full power (100 Atms) and temperature (300°C). In Sweden a 1:3.5 scale model of a concrete pressure vessel with 2 meters inner diameter and for a maximum working pressure of 85 Atms /2/ has been subjected to tests at temperatures of up to 300°C, as well as to cold pressure tests up to 215 Atms without any damage /3/. This model has as an interesting feature, a large concrete removable lid, which is being proposed for the General Atomic, the Gas Breeder Reactor Association and the KWU design of a Gas Cooled Fast Reactor.

The concrete pressure vessels for big dimensions and high pressures can be made considerably safer than steel vessels. Their enormous mass makes a sudden catastrophic failure extremely unlikely. The steel tendons, which take up all the tension stresses, are made highly redundant, can be checked, tested and, if required, replaced during or after reactor operation. The failure characteristics of a concrete vessel are such that the decrease of pressure due to leakage through cracks in the wall is very slow. Indeed, once the pressure in the vessel has decreased, the tendons subjected to less stress close up the bigger crackings in the concrete. The tendons are designed to withstand an accidental condition with fully pressurized concrete cracks and, in recent designs for very high pressures, a venting system in the concrete wall to detect and reduce this accidental condition has been proposed. Finally, the inner steel liner, which makes the concrete vessel leak tight, is kept under compression only and at low temperatures and low thermal gradients by means of a thermal insulation and a water cooling system.

Another technological improvement coming from the development of the Advanced Gas Reactor is the application of artificial roughening to the surface of the fuel element pin, in particular the use of partially roughened pins, originally suggested by Fortescue for the Gas Breeder /4/ and adopted for the AGR type power station of Hinkley Point B in England /5/. Partial roughening allows a considerable increase in power density in the core and/or a reduction in the

required pumping power. Rough surfaces are present only in a relatively short axial portion of the fuel pins where wall temperatures are the highest (about 3/4 of the core length, which means about 35 % of the total pin length), thus avoiding supplementary pressure drops where they are not required.

While the early attempts started towards the end of the second world war in the United States dictated the choice of the coolant of a Fast Breeder Reactor, the only practical possibility being at that time a liquid metal, subsequent technological improvements have made the use of a gas as a fast reactor a much more real possibility. These improvements originated by the development of light water reactors (oxide fuel), of sodium cooled fast reactors (development of thin fuel pins and of subassemblies) and of gas cooled reactors (pre-stressed concrete pressure vessel, artificial roughening of fuel pin surfaces). But that early choice influenced the research and development programmes of all the technologically advanced nations, which are now based mainly on the Sodium Cooled Fast Breeder Reactor.

## 2. Early Studies

One of the first studies performed in the frame of the Karlsruhe Fast Breeder Project was concerned with helium-cooled fast breeders /6,7/. One of the main results, which were reported briefly at the 1963 Argonne Conference /8/, was that indeed high ratings of the order of 0.5 to 1 MWth/kg fissile material needed for fast breeders could be attained.

At the 1964 Geneva Conference Fortescue and coworkers from GGA published the results of their studies of a GCFR of 450 MWe. The reactor was helium-cooled at 68 Atms and the oxide fuel was contained in stainless steel clad pins with artificial roughness on the surface to improve the heat transfer between pin and helium coolant /4/.

In October 1965 Dalle Donne published a comparison between helium, CO<sub>2</sub> and superheated steam as coolants of a large fast reactor /9/. The main conclusions of this study were that, although steam is a better heat transfer medium, helium- and CO<sub>2</sub>-cooled reactors were better breeders and, with sufficiently high gas pressures ( $\geq 70$  Atms), reasonable performances could be obtained. Furthermore, while the coolant void coefficients of He and CO<sub>2</sub> were positive but always below one dollar for pressures below 100 Atms, the void coefficients with steam cooling were positive and considerably larger (between 5 and 9 dollars).

In 1967 Wirtz presented the conclusions of some preliminary studies on gas cooled fast reactors at the 3rd FORATOM Congress in London /10/. The paper raised a great interest in the meeting, but also some skepticism. The chairman of the session concluded the discussion with the comment: "We wish you good luck". After eight years, however, the main conclusions of the paper remain still valid, namely: " The idea of extrapolating a high temperature helium cooled thermal reactor to a high temperature helium cooled fast reactor seems appealing. Many reactor components are practically unchanged, the core of course is different, and the helium pressure is considerably higher, with all the problems that go with it". "If one assumes, that, starting from a certain date, the majority of reactors built will be fast, there is no reason to think that only one type of fast reactor will be constructed, like there is not only one type of thermal reactor being made now". "A gas breeder seems to have a lot of potential and seems to be the best reactor in the long run .... Fuel costs appear to be comparable to those of sodium breeders, and capital costs even lower than those of a steam breeder". After this paper at the Foratom Congress the interest in gas cooled fast reactors raised again in Karlsruhe. New technical improvements were considered, such as the feasibility of large prestressed concrete pressure vessels for high pressures (100 Atms), the use of partially roughened fuel element surfaces, the development of new

vanadium alloys (we will discuss these later on in the paper) with good creep properties under fast flux irradiation at high temperatures and the possibility of using gas turbine cycles /11/. Furthermore in 1967 various studies were performed on gas breeders in Europe. The Belgian firm Belgonucléaire performed a study on a CO<sub>2</sub>-cooled fast reactor with CO<sub>2</sub> gas turbines /12,13/. A study was performed in Sweden as well, with helium as coolant and steam turbines /14/. In the meantime, the Gulf group had continued its studies on the gas breeder /15-26, 28/. Some of these were performed in collaboration with the Swiss Federal Institute of Reactor Research /27/.

In 1967 the USAEC asked the Oak Ridge National Laboratory with the assistance of the Argonne, Los Alamos, and Pacific Northwest Laboratories and of the American firms Babcock + Wilcox, General Electric, Gulf General Atomic, and Westinghouse to perform a study on the alternate (to sodium) coolants for fast breeder reactors. The main results of these studies have been published in 1968 and 1969 /29, 30/. The main point of the conclusion was: "On the basis of the designs evaluated and the combined criteria of low power costs and good breeding capability, GCFR's have the highest potential of the concepts considered. Steam-cooled reactors, on the other hand, suffer either from higher power costs (85 and 180 Atms SCBR's) or low breeding ratio (250 Atms SCBR)".

In 1968 two specialist teams were set up by the European Nuclear Energy Agency to evaluate the merits of steam and gas as alternative coolants to sodium for a fast breeder reactor. The results of these studies have been published /31,32/. The ENEA Specialist Group, which met in Winfrith to assess gas cooling, examined the proposals of GCFR's, mainly those of the GGA, Sweden, Karlsruhe, and Belgonucléaire groups, which have been mentioned above, and in addition a gas-cooled fast reactor with coated particle fuel proposed by the UKAEA, which had not yet been reported in the literature up to that time and which was described in two papers later in 1968 /33,34/. It was not possible to reach an agreement in the conclusions of the Working Team, which had to evaluate the two studies on gas and

steam in comparison with sodium as coolant of large fast power reactors. One body of opinion held that the development of an alternative coolant was admissible only as a back-up solution in the event of difficulties with the large-scale application of sodium technology. An equally strong body of opinion held that gas cooling had ample scope for sharing the future fast reactor market with sodium and that there was merit in maintaining the principle of choice, which has evolved in the present-day thermal reactor market. This latter conclusion was confirmed by a subsequent Swedish study /45/. Nor further interest on steam cooling was shown at that time by any country participating at that study.

Following the conclusions of the ENEA Working Team, in July 1969 seven European countries, which were performing work in the field of gas-cooled fast reactors (Austria, Belgium, Germany, The Netherlands, Sweden, Switzerland, and the United Kingdom) joined together in the so-called "Zürich-Club" to coordinate their governmental efforts in this field and exchange information. Various "Zürich-Club" specialist meetings on fuel, heat transfer, physics, design, and safety have taken place since.

The Winfrith study and the "Zürich-Club" meetings stimulated the interest and the work in Europe on the GCFR, as it is shown by the many publications from Germany /35,38,39,52,58,59,60,61,62,64,68,69,70,74,75,76,80/, Great Britain /33,34/, Switzerland /36,41,42,44,58,51,67/, Sweden /45/, and Belgium /47/. The work in Germany was centered on the evaluation of various fuels of GCFR's, on safety /35/ and on improvement of the neutron physics calculations with the objective to obtain more information on reactivity coefficients (void, steam inleakage, etc.) /39,70,75/. Originally the reference design was based on fuel pins clad in an especially developed vanadium alloy (V, 3Ti, 1Si), which allowed a maximum clad temperature of 850°C and a helium temperature of 700°C. The helium was flowing directly in gas turbines /52/. Design studies on the gas turbine circuit connected with a GCFR showed that this concept is feasible and the dimensions of the components

reasonable (1000 MWe turbine: length 25 m, maximum outer diameter: 5.5 m, recuperative heat exchanger: 6 units, length: 18m, outer diameter: 4.4 m) /68,74/. Lately, however, experimental investigations have shown that the oxide fuel would, at high temperatures and in presence of temperature gradients in the fuel, oxidate the vanadium cladding unduly /69,80/. Vanadium based cladding would therefore be compatible with oxide fuel only in presence of a suitable oxygen getter in the fuel or, perhaps, with carbide fuel. This is the direction, in which the present investigations in Karlsruhe are going.

The work in Great Britain is based on a GCFR with ceramic coated particles /33,34/. These coated particles have been originally developed for High Temperature (thermal) Gas-cooled Reactors. For fast reactors the pyrolytic graphite cannot be used as fuel cladding material due to lack of dimensional stability in presence of large fast fluences and high temperatures. Silicon carbide has been proposed in its place. At present coated particles with pyrolytic SiC outer coating for GCFR application are developed and tested. The problems (pressure distribution in the fuel element, mechanical stresses, central ceramic porous tube) connected with the fuel element itself, are recognized, but not yet fully tackled.

The Swiss Federal Institute for Reactor Research since 1968 was mainly involved in the study of GCFR's with direct cycle helium turbine at relatively moderate gas temperatures ( $600^{\circ}\text{C}$ ), obtainable possibly with steel clad pins /36,41,44,51/. In Sweden a rather detailed comparison study between helium, steam, and sodium as coolants of a Fast Reactor was performed /45/, while in Belgium the accent was on a GCFR with  $\text{CO}_2$  cooling and direct cycle gas turbine /47/.

### 3. The German Gas Breeder Memorandum

In August 1969 the German Federal Ministry for Education and Science requested the two nuclear centers at Karlsruhe and Jülich to prepare a study on the feasibility and the economics of a GCFR. This study (the so-called "Gas Breeder Memorandum") was carried out by the two centers with the collaboration of the German nuclear industry, which included the following companies: AEG, BBC, BBK, GHH, Krupp and Siemens. The Gas Breeder Memorandum has been published /58/. Summaries of it were presented at the Bonn Reaktortagung of 1971 /59,60,61/. The study was performed by five working groups (fuel elements, physical criteria, components, safety, economics). Three concepts were chosen as representative of the main possible options:

- a) GCFR with steam turbine, oxide fuel in steel clad pins ("vented fuel"), primary system integrated in prestressed concrete pressure vessel (this concept is based on the GGA concept /18, 26,46/).
- b) GCFR with gas turbine, oxide fuel in vanadium pins ("strong clad") (this concept is based on the Karlsruhe concept /52, 68/).
- c) GCFR with steam turbine, oxide fuel in coated particle form (this concept is based on the UKAEA concept /33,34/).

These alternatives were calculated again in the context of the study based on consistent assumptions and methods. The heat transfer correlations used were the same, and so was the method to calculate the hot spots in the core. In all the cases the fuel density was assumed to be 84 % of theoretical and the mean discharge burn-up 75000 MWD/t. The nuclear calculations were performed with the latest cross section set of Karlsruhe, the so-called MOXTOT set. The main results of these calculations are listed in Table I together with the data of an advanced sodium breeder and a steam-cooled fast reactor, which have been calculated with similar assumptions.

Table I: Main Parameters of Helium-cooled Breeder Reactors of 1000 MWe Compared to Advanced Sodium- and Steam-cooled Types

Concept No.	1	2	3	Advanced Na-Breeder	Steam Breeder
Cycle	Steam turbine	Gas turbine	Steam turbine	Steam turbine	Steam turbine
Fuel	Oxide	Oxide	Oxide	Oxide	Oxide
Fuel element	Fuel pin (vented)	Fuel pin (sealed can)	Coat. particle	Fuel pin (sealed can)	Fuel pin (vented)
Max. lin. power rating in pin W/cm	430	440	---	530	420
Mean discharge burn up Mwd/t	75 000				
Inlet coolant pressure kg/cm <sup>2</sup>	70	100	70	10	150
Mixed mean coolant temp. at reactor outlet °C	600	706	675	580	500
Max. hot spot temp. at clad midwall °C	755	850	950	700	720
Core fissile inventory kg Pu <sup>239</sup> . Pu <sup>241</sup>	3140	2770	1800	1630	2860
Breeding ratio	1.44	1.32	1.19	1.29	1.15
System lin. doubling time yrs <sup>+</sup>	13.2	17.8	31.8	14.5	32.3
Specific investment \$/kWe	162	145	162	170-240	152 <sup>*)</sup>
Fuel cycle cost mills/kWh	1.3	1.5	1.5	0.875	1.4 <sup>*)</sup>
Electricity cost mills/kWh <sup>+</sup>	5.2	5.05	5.4	5.0-6.5	5.2 <sup>*)</sup>
<sup>+</sup> Load factor 0.7					

All costs are for the spring 1970; <sup>\*)</sup> estimated costs.

The study came to the conclusion that the GCFR with steel clad vented fuel pins was the type with the minimum amount of required further developed work, especially because the fuel element could be based on the current work for the sodium breeder and the reactor components on the development of the High Temperature Thermal Reactor. On the other hand, the reactor offered a performance comparable to that of a sodium-cooled reactor with probably smaller electrically generating costs. The calculated electricity generating costs of steam were also favourable, but the plutonium doubling time appeared to be too high.

#### 4. The Gas Breeder Reactor Association

In December 1969 14 European companies from Belgium, France, Germany, The Netherlands, Italy, Sweden, Switzerland, and the United Kingdom set up the Gas-cooled Breeder Reactor Association in Brussels. In the following two years the GBRA produced two complete design studies of a GCFR both with 1000 MWe, helium cooling, steam turbine cycle and primary circuit integrated in prestressed concrete pressure vessel; the first one based on steel clad, mixed oxides vented fuel pins, the second one on silicon carbide coated fuel particles. Furthermore, the possibility of using CO<sub>2</sub> cooling in connection with silicon carbide coated fuel particles was also investigated /73,77/. GBRA performed also comparative cost calculations. The main conclusions of these are that a GCFR with fuel pins would have the same capital costs of a Thermal High Temperature Reactor, while the helium and CO<sub>2</sub> reactors with coated particles would have 7 % and 9 % lower costs respectively. However, the fuel cycle costs with coated particles would be higher than with fuel pins due to the longer doubling time. If pin axial blankets are used in connection with the coated particle design, the greater fuel cycle costs would compensate almost completely the gains in capital costs.

Tables II and III show the main data of three GCFR's of 1200 MWe, which represent the present designs of the Gas Breeder Reactor Association /81/ /82/. The first two reactors are with pin fuel, the third with coated particle fuel. The second of the pin design is an alternative to the reference design (GBR-4) with higher fissile plutonium enrichment and a lower fissile inventory. This alternative would produce electricity at slightly higher costs (3 %), but would require, with certain assumptions on the future installed electrical capacity, about 20 % less uranium ore. The results of the GBRA calculations for a coated particle fuel reactor given in Table III confirm the conclusions of the Gas Breeder Memorandum (see Table I), i.e., due to the softer spectrum, the breeding ratio is considerably smaller and the doubling time longer than in the case of a pin type GCFR.

**Table II: Main Parameters of Two Alternative Helium-cooled Breeder Reactors of 1200 MWe (GBRA, from ref. /81/)**

Parameter	GBR-4	Alternative with small fissile material inventory
<u>Helium primary circuit</u>		
Helium pressure (bar)	90	
Reactor pressure drop (bar)	2.4	
Helium temp. at reactor inlet ( $^{\circ}\text{C}$ )	260	
Helium temp. at reactor outlet ( $^{\circ}\text{C}$ )	565	
Total pumping power (MWe)	126	
<u>Steam turbine (without reheating)</u>		
Max. steam pressure (bar)	112	
Max. steam temp. ( $^{\circ}\text{C}$ )	530	
Plant overall efficiency (%)	35	
<u>Reactor</u>		
Mid-cycle fissile enrichment (%)	13.4	15.8
Outer diameter of the fuel pin cans (cm)	0.77	0.60
Fuel pins pitch (cm)	1.15	1.0
Maximal linear power rating in pin ( $\text{W}/\text{cm}$ )	400	350
Max. hot spot temp. at clad midwall ( $^{\circ}\text{C}$ )	725	
Max. peak burn-up of fuel ( $\text{Mwd}/\text{Kg}$ )	100	
Core fuel in-pile time at load factor = 0.75 (years)	3	2
Max. fast neutron fluence ( $E \geq 0.1 \text{ MeV}$ ) ( $\text{n}/\text{cm}^2$ )	$2.5 \times 10^{23}$	$2.1 \times 10^{23}$
Core volume ( $\text{m}^3$ )	16.4	14.2
Core fissile inventory ( $\text{Kg}/\text{MWe}$ )	4.0	3.2
Breeding ratio	1.4	1.37
System doubling time (years)	11.8	11.2
<u>Economy</u>		
Relative first costs of plant (inclusive fuel)	1.00	0.98
Relative electricity costs	1.00	1.03
Relative uranium ore requirements	1.00	0.8

Table III: Main Parameters of an Helium-cooled Breeder Reactor of 1200 MWe with Coated Particle Fuel (GBRA, from ref. /82/)

<u>Helium primary circuit</u>	
Helium pressure (bar)	45
Reactor pressure drop (bar)	1.2
Helium temp. at reactor inlet (°C)	250
Helium temp. at reactor outlet (°C)	900
Total pumping power (MWe)	45
<u>Steam turbine (without reheating)</u>	
Max. steam pressure (bar)	120
Max. steam temp. (°C)	540
Plant overall efficiency (%)	39
<u>Reactor</u>	
Mid-cycle fissile enrichment (%)	0.19
Outer diameter of fuel coated particles (mm)	1.03
Assembly pitch (cm)	19.5
Max. particle rating (W/particle)	1
Max. peak burn-up of fuel (MWd/Kg)	100
Core fuel in-pile time at load factor = 0.75 (years)	1.5
Max. fast neutron fluence ( $E \geq 0.1$ MeV) ( $n/cm^2$ )	$1.5 \times 10^{23}$
Core volume ( $m^3$ )	12.2
Core fissile inventory (Kg/MWe)	2.75
Breeding ratio	1.13
System doubling (load factor = 0.75) (years)	36

GBRA has also performed a comparison of their reference design GBR-4 with a Sodium Cooled Fast Reactor calculated with consistent assumptions. The main results are that the Sodium Breeder has a fissile plutonium doubling time of 18 years, against the 12 years of GBR-5 /83/.

#### 5. Present Activities in Germany

In 1971 the two German nuclear centers at Karlsruhe and Jülich agreed on a joint research and development program based on the conclusions of the Gas Breeder Memorandum. The limited funds available are concentrated on the reference design concept with helium cooling, steel clad vented pins, oxide fuel and steam turbine cycle. The main activities within this program are:

- A joint irradiation test of the Jülich Nuclear Center and the German firm KWU, with the collaboration of the Karlsruhe Nuclear Center and of the Belgian Nuclear Center at Mol, of a 12 vented pin bundle in the Belgian reactor BR2.
- A joint study of the Karlsruhe Nuclear Center and KWU on the design and safety aspects of a 1000 MWe GCFR with steam turbine cycle, integrated primary helium circuit and vented steel clad fuel pins.

Another major item is the heat transfer work in Karlsruhe. The Heat Transfer Laboratory of the Institute of Neutron Physics and Reactor Engineering of the Karlsruhe Nuclear Center is performing since 1963 research covering many aspects of the heat transfer with gas cooling, especially heat transfer with pins with artificially rough surfaces (see for instance references /84-89/). As mentioned earlier in the paper, heat transfer is much more important for a GCFR than for a LMFBR, because typically the temperature difference between fuel pin surface and coolant is of the order of  $10^{\circ}\text{C}$  for a LMFBR and it can be up to 20 times as much for a GCFR. This has as a consequence that for a GCFR it is necessary to know the heat

transfer coefficient with considerable more precision, if one wants to avoid large uncertainties in the fuel pin clad temperature prediction. Furthermore the thermal performance of the presently developed "two dimensional" roughness ribs is only one fourth of the maximum theoretically obtainable, which shows that the research work on rough surfaces can lead to further great improvements. This could be achieved for instance by the use of "three dimensional" roughness ribs, for one type of which (see Fig. 1) we have already obtained very promising results /87/.

KWU has an information exchange agreement in the field of GCFR's with the U.S. firm General Atomic Company. Similar tripartite agreements have been recently signed between Karlsruhe, KWU and GA in the field of safety and between Jülich, KWU and GA for the BR2 irradiation experiment.

#### 5.1 The BR2 Irradiation

The objective of this irradiation experiment is to provide information on in-pile behaviour of a fuel element pin cluster, especially as far as two main points are concerned, which are not investigated within the LMFBR program. Namely

- a) the in-pile behaviour of the pin venting system
- b) the in-pile behaviour of the rough and smooth pin surfaces and of the spacer grids in a relatively dry helium atmosphere and in presence of temperature and power variations.

Fig. 2 shows the test fuel element and illustrates the functioning principle of the venting system to a separate helium circuit and a fission gas plant. Table IV shows the main data of the test fuel element and of the helium loop. More detailed information is given in reference /90/.

Table IV: Main Data of the BR2 Irradiation Experiment

Test Fuel Element Bundle Data	
Number of pins	12
Pin outer diameter	8 mm
Pin pitch	11.1 mm
Fuel	(U/Pu)O <sub>2</sub>
Cladding material	stainless steel 1.4981
Pin surface	artificially roughened
Max. linear pin rating	500 W/cm
Max. clad surface temp. (hot spot)	700 °C
Burn-up objective	60000 (100000) MWd/t
Loop Data	
Cooling gas	helium
Operation pressure	60 bar
Mass flow	0.25 Kg/sec
He inlet temperature	350 °C
He outlet temperature	575 °C

Table V: Main Data of 1000 MWe Reference Design (GSB-1)

Coolant pressure	120 bar
Coolant inlet temperature	273 °C
Coolant outlet temperature,	555 °C
Core height	148 cm
Core H/D	0.5
Pin diameter	8.2 mm
Pin pitch	11 mm
Hot spot temp., mid clad	700 °C
Max. linear rating	492 W/cm
Fissile rating core	0.78 MWth/Kg
Breeding ratio	1.40
Core plutonium fissile inventory	3230 Kg
Linear doubling time	11.8 yrs
Plant net efficiency (wet cooling tower)	37 %

## 5.2 GfK-KWU Design and Safety Studies

These studies have reported more extensively in references /91/ and /92/. Here only the main results will be reported.

Fig. 3 shows a vertical section through the Nuclear Steam Supply System of the 1000 MWe GCFR reference design (GSB-1). The main data of this design are shown in Table V, those of the NSSS in Table VI. In Table VII are listed the safety related nuclear characteristics.

The transients experienced during depressurization accidents for various depressurization time constants and containment back pressures are depicted in Fig. 4. For these studies it was assumed that the circulation speed of the blowers had remained unchanged, that the scram occurs simultaneously with the initiating event and that all loops are available for decay heat removal.

The shortest depressurization time of 100 sec. of Fig. 4 corresponds to the breach of the largest penetration of pressure vessel, i.e. the failure of the seal of the steam generator plug, and it is considered as the Design Basis Accident. Fig. 5 shows the results of a more accurate calculation for the DBA. The assumed scram delay of 10 sec. leads to a clad excess temperature of 30°C. The blower speed has been reduced after the scram in order to minimize the change in clad and coolant outlet temperatures and relative shock problems.

Since the fuel pins are pressure-equalized, it is assumed that a maximum clad temperature of about 1200°C can be tolerated before limiting conditions would occur. Associated with a hot spot temperature of 1200°C in the core is a mixed mean reactor outlet temperature of about 1000°C which is tentatively assumed as an acceptable upper once-in-a-lifetime-limit for the boiler structure. Further calculations have shown that during the DBA depressurization accident up to four of the eight main loops can be lost without reaching these limit temperatures.

Table VI: Main Data of 1000 MWe Nuclear Steam Supply System (GSB-1)

Vessel	PCRIV, Pod Boiler
Core and Blanket	
type of support	top clamped, in individual standpipes
flow direction	downward
refueling access	from beneath
No. of Main Loops	8
diameter of boiler cavity, m	3.5
closure design	doubly retained concrete plug with flow limiter
Coolant Circulation	single stage axial blowers, series-steam driven
blower power, MW	8 x 16.5
No. of Auxiliary Loops	4
coolant circulation	elect. driven radial blowers, single stage
blower power, MW (depressurization cond.)	4 x 1.4
secondary containment pressure, bar (depressurization cond.)	3

Table VII: Safety Related Nuclear Characteristics. 1000 MWe GCFBR (GSB-1)

Av. enrichment $Pu_{fiss.}$	12.7 %
Core conversion ratio	0.87
Reactivity loss per cycle	1.6 %
Doppler effect, $Tdk/dT$	.0061
$\beta_{eff}$	$0.324 \times 10^{-2}$
Helium void reactivity	0.88 %
Cladding expansion reactivity coefficient	$-0.227 \times 10^{-5}$
Fuel expansion reactivity coefficient	$-0.126 \times 10^{-5}$
Power coefficient (prompt)	$-1.5 \times 10^{-6} MW^{-1}$
Total control requirements	9.0 %
Number of control rods	12
Worth of 1 rod	0.83 %
Number of shut down rods	2 x 3
Worth of 1 rod	3.3 %

A detailed reliability analysis for the DBA /93/ lead to the conclusion that the probability that the decay heat cooling system formed by the 8 main coolant loops and the 4 auxiliary loops would not be capable of maintaining the fuel can maximum temperature below 1200°C, is less than  $10^{-4}$  per demand. If we assume that the chance of breaking the seal of a steam generator plug of the GCFR is as small as that of a double ended rupture of a coolant pipe in the PWR system, that is  $10^{-4} \text{ a}^{-1}$  or less /94/ than we obtain a chance of not meeting the emergency cooling requirements of less than  $10^{-8} \text{ a}^{-1}$ , which is equivalent to that at present estimated for the PWR in Germany.

Although up to present time no realistic chain of events has been detected that would lead to accidents beyond the DBA, some work is being carried out in the FRG in the field of hypothetical accidents. This was mainly done because similar analyses have been performed for the German LMFBR SNR 300. Included have been studies on problems associated with handling of gross core melting /95/ /96/.

The analysis of the temperature distribution in a slab of molten GCFR core and blanket material is summarized in Fig. 6. The most important result obtained is that only a relatively small fraction of the total decay heat generated can be removed across the lower surface of the melt. The remainder of the heat is radiated off its upper surface. As a result of these analyses it is concluded that it would be very desirable to protect the internals in the reactor cavity by employing a thermal radiation shield or providing some other mean of cooling. Various solutions appear to be feasible, some have been investigated in detail and appear promising, but substantial work is still required to come up with a system that would perform reliably under all operational conditions.

## 6. The Question of the Large Plutonium Inventory and the Strategy Studies

---

Quite often it has been said (and written) that the gas breeder cannot compete with the sodium breeder from the point of view of uranium ore conservation, because of the larger plutonium inventory required by the GCFR<sup>\*</sup>. We will try now to examine this argument in more detail.

Our reference design, GSB-1, has been optimised, like GBR-4, for minimum electricity costs at present day capital and fuel prices. This leads to relatively large pin size diameter (8 mm) and core plutonium fissile inventory (3.2 t). The general performance of the reactor, however, compares quite well with that of a typical LMFBR, for instance the projected 1000 MWe French LMFBR, whose main data are reported in Table VIII (from ref. /97/). The breeding gain is 60 % higher and the doubling time 2/3 only of that of the LMFBR. The plutonium fissile inventory is however 20 % higher than in the sodium case. According to some reactor strategy calculations (see for instance reference /98/) this higher plutonium inventory could be unfavorable from a point of view of uranium ore conservation. The uncertainties in the assumptions of these strategy studies, however, especially assumptions on the future availability, distribution and cost of uranium ore and on the future installed electrical capacity, are, of course, one, or more, orders of magnitude greater than this 20 % difference. To exemplify this point, it should suffice here to mention that "the estimates of the  $U_3O_8$  content of the San Juan Basin (the most important uranium producing area in the United States) made by 36 highly qualified geologists from private industry, federal and state agencies and universities differed for more than a factor 10. Four estimates were above one million tons and twelve were below

---

\* See for instance: Häfele, in the discussions of Paper A/Conf 49/P/116 of the Fourth Conference on Peaceful Uses of Atomic Energy, Geneva 1971.

Table VIII: Main Data of the Projected French 1000 MWe LMFBR (from ref. /97/)

Thermal power (MWth)	2250
Core volume (liters)	5300
Core height (cm)	100
Enrichment in fissile plutonium (%)	16
Initial mass of fissile plutonium (Kg)	2700
Breeding ratio	1.25
Max. clad temp. (hot spot) (°C)	700
Max. linear rating (W/cm)	500
Diameter of oxide pellets (mm)	7
Max. burn-up anticipated (MWd/t)	100000

Table IX: Comparison of 1000 MWe GCFR Designs with Small and Large Fissile Plutonium Inventory (from ref. /102/)

	Semiannual Reload	Annual Reload
Core volume (liters)	7750	12560
Core height (cm)	135	159
Enrichment in fissile plutonium (%)	15.5	12.0
Fissile plutonium inventory (Kg)	2200	3755
Fuel residence time (yr)	1.5	3.0
Fuel pin outer diameter (mm)	6	8.8
Max. linear rating (W/cm)	492	492
Core conversion ratio	0.70	0.93
Breeding ratio	1.50	1.46
Doubling time	8	10
Median flux energy, kev	180	142
δk per cycle	0.026	0.006

100000 tons" /99/. The knowledge of the availability of uranium ore in the world is probably affected by an even greater uncertainty (may be a factor 100) and the same can be said for the ore available to the Federal Republic of Germany. We find a similar situation for the forecasts of the electrical capacity to be installed in Germany, until, say, the year 2040, although here the uncertainty factor is considerably less than 100 (maybe 5 or 6).

But even if the strategy studies were precise enough to decide over differences of 20 %, the argument that the GCFR requires a too high initial plutonium inventory would still not hold. Indeed various recent studies /100-104/ have shown that GCFR's with plutonium fissile inventories in the range of 2.2 to 2.5 t/MWe are quite possible, and the high breeding gain of 0.4 is still maintained. A decrease of the fissile inventory would, however, require an increase of the fuel enrichment, and a decrease of the core volume and of the pin diameter. The internal (core) conversion ratio would diminish, the reactor would become more an external (in the blankets) breeder, and the reactivity swing due to fissile burning in the core would greatly increase. Thus an annual reload of the fuel would become rather difficult. This, of course, is true for an LMFBR as well. Table IX from reference /102/ illustrates the differences between two GCFR's with small and large fissile plutonium inventory.

## 7. Conclusions

At the present day two types of Light Water Reactors are commercially available in the U.S., in Germany and elsewhere. In Canada commercial Heavy Water Reactors are being built, while the British thermal reactor program is based on the Steam Generating Heavy Water Reactor. The first commercial thermal High Temperature Gas-cooled Reactor will be at full power probably in 1980 (Delmarva reactor, 770 MWe). With these thermal reactors one can

burn about 1 % only of the naturally available uranium and thorium ores. With fast breeder reactors this percentage could be increased by a factor 50 to 70. Fast reactors are therefore, much more important than thermal reactors as future energy sources. If five different types of thermal reactors are commercially available or are on the threshold of commercial availability now, there is no reason why only one type of fast breeder reactor should be developed. To date a large amount of money has been spent in the United States, France, Great Britain, Germany, Russia and Japan for the development of the LMFBR and still more has been committed. A large prototype (250 MWe) is successfully operating in France, and many development problems have been solved. However many doubts regarding the plant capital costs, plant availability and repairability still remain. The safety philosophy, especially of very large LMFBR plants ( $\geq 1000$  MWe), is still in the discussion phase, at least in the United States and in Germany.

To really be able to judge the capital cost advantages, and, perhaps even more important, the plant availability and repairability it is necessary to have in operation rather large prototype reactors. Four or five of these LMFBR prototypes will be in operation before the end of the seventies. No GCFR prototype is foreseen to date. A GCFR has a great potential, because of the very good breeding ratio and doubling time. Due to the very weak interaction of the coolant with neutrons in the core, the coolant void reactivity coefficient is, contrary to the case with sodium, always smaller than 1 dollar, making a prompt-critical accident much more unlikely. The phenomena occurring during an accident or a transient can be better understood and described with a coolant which is always in a gaseous phase and does not react with any material contained in the reactor. The safety problems which could arise with a GCFR are of completely different nature of those pertinent to the LMFBR, and are essentially connected with a too fast loss of the coolant pressure. In this sense the GCFR is really complementary to the LMFBR. All this speaks in favour of building a GCFR prototype. Even if the GCFR can make use of

the technology developed for the HTGR (concrete pressure vessels, blowers, heat exchangers, helium valves etc.) and for the LMFBR (fuel elements, neutron physics), the costs for such GCFR prototype would still be very high. The cost of a 300 MWe GCFR prototype to be built in the United States has been recently estimated at 440 July 1973 million dollars /105/; considering the inflation and the required research and development costs, 700-800 present day million dollars may be a more appropriate figure. It would be therefore advisable to build only one GCFR, possibly by means of an international collaboration. To date two large private firms in the United States (General Atomic Company) and in Germany (Kraftwerk Union) have teams working on the GCFR, with the active support of Government subsidized Nuclear Centers in both countries, and a collaboration between these two firms to build a GCFR prototype should be, in principle, possible.

I think that the present situation can be at best summarized with the last words of the contribution of Prof. Wirtz to the panel discussion during Oak Ridge Gas-Cooled Reactor Information Meeting in 1970 /106/: "In view of the fact that a least five to six major nations are considering the construction of a prototype sodium-cooled FBR, it should not be impossible to invest some money to further the later arrived competitor who seems to be equally promising. International cooperation would seem to be particularly appropriate. It would make economic sense for everyone, as it would ensure production of information necessary to enable both systems to be judged on their economic and safety merits. It would also comply with the responsibilities of the nuclear community concerning the ultimate goal - a safe and economic FBR. This could be accomplished best by developing both coolants. It would also create competition between the manufacturers and give the utilities a chance to select the type they liked best".

References

1. H. Dorner, H. Gruhl: Spannbeton Reaktordruckbehälter für 100 Atü Innendruck, Technische Überwachung, 8, 1, 10-16, January 1966
2. P.H. Margen et al.: Nordic Studies on Prestressed Concrete Pressure Vessels for Water Reactors, Fourth Geneva Conf., Session A.3, Geneva, September 1971
3. Studsvik, AB Atomenergi, Sweden: Raised to 215 Atms - Vessel Remained Undamaged, Technical News 1, February 1972
4. P. Fortescue, R. Shanstrom, L. Meier, W. Simon, P. Fischer: Gas Cooling for Fast Reactors, 3rd Geneva Conf., A/Conf. 28/P/694, 1964
5. Hinkley Point B, Nuclear Engineering, 12, 128, January 1967
6. Proceedings of the IAEA Conference on Physics of Fast and Intermediate Reactors, Vienna, Aug. 1961, Vol. III, p. 544-546 and p. 601-602.
7. K. Benndorf et al., private communication 1962.
8. D. Smidt: Optimization and Safety of Helium-cooled Fast Breeders, ANL-6792, p. 515, 1963
9. M. Dalle Donne: Comparison of He, CO<sub>2</sub> and Steam as Coolants of a 1000 MWe Fast Reactor, Proc. Conf. on Safety, Fuels and Core Design in Large Fast Power Reactors, Argonne, October 1965, ANL-7120, p. 797-814 and KFK 447
10. M. Dalle Donne, E. Eisemann, K. Wirtz: Some Considerations on Gas Cooling for Fast Breeders, Discussions of 3rd FORATOM Congress, London, April 1967, see also KFK 595, May 1967

11. M. Dalle Donne, K. Wirtz: Gas Cooling for Fast Breeders, ANS Winter Meeting, Chicago, Nov. 1967 and KFK 689
12. J. Chermanne et al.: Les reacteurs a neutrons rapides refroidis au gaz, BN-6701, Jan. 1967
13. J. Chermanne et al.: Centrale nucléaire de 300 MWE avec réacteur à neutrons rapides refroidis au gaz et turbine à gaz en cycle direct, BN-6710, Oct. 1967
14. Swedish Evaluation Studies of Full Scale Fast Reactors, Vol. IV, Fast Helium-cooled Breeder (FHCB) Studies, Aktiebolaget Atomenergi, p. 379, April 1968
15. P. Fortescue et al.: Safety Characteristics of Large Gas-cooled Fast Power Reactors, Proc. Conf. on Safety, Fuels and Core Design in Large Fast Power Reactors, Argonne, Oct. 1965, ANL-7120, p. 230-260
16. Project Staff, Conceptual Design Study of a Gas-cooled Fast Reactor Experiment, GA-6666, Dec. 1965
17. P. Fortescue, P. Fischer, R. Shanstrom: Fast Reactor Cooling - Projects of Alternate Systems, Proc. of the NUCLEX Conf., Basel, Switzerland, 1966
18. P. Fortescue, G.M. Schulz: A 1000 MWe Gas-cooled Fast Breeder Reactor, GA-7823, 1967
19. P. Fortescue, J. Broido, G. Schultz, R. Shanstrom: The Gas-cooled Fast Reactor Experiment, GA-7835, March 1967
20. Project Staff: Gas-cooled Fast Breeder Reactor, Annual Progress Report for the Period Ending July 31, 1965, GA-6667, Oct. 1965
21. Project Staff: Gas-cooled Fast Breeder Reactor, Annual

Progress Report for the Period Ending July 31, 1966, GA-7645,  
May 1968

22. R.T. Shanstrom: Progress in Optimizing the Gas-cooled Fast Breeder Reactor, ASME Winter Meeting, 1967, 67-WA/NE-12
23. P. Fortescue, G. Melese d'Hospital: Thermodynamic Comparison of Gas Coolants for Nuclear Reactors, Symposium on High Pressure Gas as a Heat Transport Medium, Inst. Mech. Engineers, Vol. 181, Part 3 I, March 1967
24. P. Fortescue, G. Melese d'Hospital, W. Thompson: Status of the Technology of Gas Cooling for Fast Reactors, ANS-101, p. 7.1 - 7.12, San Francisco, April 1967
25. G. Melese d'Hospital: Gas-cooled Fast Reactor Performance with Various Degrees of Surface Roughening, GA-8268, Oct. 1967
26. Gulf General Atomic Europe: Reference Design of a 1000 MWe Gas-cooled Fast Reactor Plant, GAE-37, March 1968
27. Swiss Federal Institute for Reactor Research: Status of Technology and Future Potential of Gas-cooled Fast Reactors, Study of a Gas-cooled Fast Reactor Experimental Facility, 51-EIR, March 1968
28. G. Melese d'Hospital: Factors Affecting the Design of Gas-cooled Fast Breeders Reactors, ANS Topical Meeting, Cincinnati, April 1968 and GA-8583
29. USAEC: An Evaluation of Gas-cooled Fast Reactors, WASH-1089, June 1968
30. USAEC: An Evaluation of Alternate Coolant Fast Breeder Reactors, WASH-1090, April 1969

31. ENEA Working Team on Fast Reactor Evaluation: An Assessment Study of Gas-cooled Fast Reactors for Civil Power Generation, Winfrith, July 1968
32. ENEA Working Team on Fast Reactor Evaluation: An Assessment Study of Steam-cooled Fast Reactors for Civil Power Generation, Karlsruhe, September 1968
33. C.P. Gratton et al.: A Gas-cooled Fast Reactor Using Coated Particle Fuel, J. Brit. Nucl. Energy Soc. 7, 233-242, July 1968
34. C.P. Gratton et al.: A Gas-cooled Fast Reactor with Direct Cycle Potential, SM-111/67, IAEA Conf., Jülich, Oct. 1968
35. M. Dalle Donne, E. Eisemann, F. Thümmeler, K. Wirtz: High Temperature Gas Cooling for Fast Reactors, SM-111/12, IAEA Conf., Jülich, Oct. 1968 and KFK 841, EUR-3978e
36. J. Broido, L.A. Lys: Principal Considerations in the Design of Gas-cooled Fast Reactors with Direct Cycle Gas Turbine, SM-111/69, IAEA Conf., Jülich, Oct. 1968
37. G. Melese d'Hospital: Advanced Fast Breeder Reactors with Gas Cooling, GA-8833, Sept. 1968
38. D. Smidt: Fast Reactor Heat Removal, Proc. Int. Conf., on the Constructive Uses of Atomic Energy, ANS, Washington, Nov. 1968 and KFK 883, Eur 4162e
39. E. Eisemann: Nukleare Eigenschaften heliumgekühlter schneller Brutreaktoren, KFK 864, März 1969
40. G. Melese d'Hospital, P. Fortescue: Fast Breeder Reactors with Direct Cycle Gas Turbines, GA-9346, May 1969

41. L.A. Lys, R. Brogli, W. Helbling: Parametric Studies of Gas-cooled Fast Reactors with Closed Cycle Gas Turbines, Atomkern-energie 2, 1969 and EIR 154
42. D.F. Streeton, L.A. Lys: Straight Steam Cycle for Gas-cooled Fast Breeder Reactors, Nucl. Engin. Internat. 14, and EIR 153, May 1969
43. G. Melese d'Hospital: The Gas-cooled Fast Breeder Reactor, GA-9390, June 1969, and Energie Nucleaire 11, 8, 1969
44. L.A. Lys, J.H. Broido, H. Frutschi: Gas Turbine Fast Reactor Design, J. Brit. Nucl. Energy Soc. 8, 3, and EIR 162, July 1969
45. Swedish Evaluation Studies of Full Scale Fast Reactors, Vol. I. Results and Discussion, Aktiebolaget Atomenergi, p. 379, Sept. 1969
46. P. Fortescue, G. Melese d'Hospital, J. Peak, L. Meyer: A Developmental Gas-cooled Fast Reactor Plant, GA-9413, NUCLEX 69, Basel, Switzerland, Oct 1969
47. J. Chermanne (Ed.): Preliminary Design Study of a 1000 MWe CO<sub>2</sub>-cooled Direct Cycle Fast Breeder Reactor, BN-6912-06, Dec. 1969
48. Eidg. Institut für Reaktorforschung, Würenlingen: Study of the Conversion of the Experimental Nuclear Power Plant of Lucens into a Gas-cooled Fast Reactor Experimental Facility, TM-IN-425, 1969
49. M.L. Blumeyer, J.C. Peak: The Breeder Reactor of Your Future, The Gas-cooled Fast Breeder Reactor, GA-9960, March 1970
50. P. Fortescue, W.I. Thompson: The GCFR Demonstration Plant

- Design, Proc. Gas-cooled Reactors Inform. Meeting, Oak Ridge, April 1970, CONF-700401
51. L.A. Lys, G. Ciszewski, H. Frutschi: Gas Turbine Power Conversion Systems for Helium-cooled Breeder Reactors, Oak Ridge Conf., April 1970, CONF-700401 and EIR 181
  52. M. Dalle Donne, E. Eisemann, K. Wirtz: Latest Calculations for a GCFR with a Vanadium Clad Pin Core, Oak Ridge Conf., April 1970, CONF-700401 and KFK 1198, EUR 3726e
  53. R.B. Fitts, J.R. Lindgren, E.L. Long, D.R. Cuneo: Gas-cooled Fast Reactor Fuel Element Development, Oak Ridge Conf., April 1970, CONF-700401
  54. J.M. Waage, J.A. Larrimore: Safety Studies for the Gas-cooled Fast Reactor, Oak Ridge Conf., April 1970, CONF-700401, and GA-10049
  55. C.S. Walker: Safety and Afterheat Removal Studies of the Gas-cooled Fast Reactor, Oak Ridge Conf., April 1970, CONF-700401
  56. G. Melese d'Hospital: Status Report on Fast Breeder Reactors, GA-10171, June 1970
  57. R.H. Simon, J.R. Lindgren, J.N. Siltanen, R.B. Fitts: Gas-cooled Fast Reactor Fuel Element Development - Fuel Rod Irradiation Tests, Proc. Int. Meeting on Fast Reactor Fuel and Fuel Elements, ANS Local Section in Europe, Karlsruhe, September 1970
  58. Gesellschaft für Kernforschung Karlsruhe, Kernforschungsanlage Jülich unter Mitarbeit der deutschen Reaktorindustrie, Gasbrüter-Memorandum, KFK 1375, EUR 4575d, JÜL-744-RG, February 1971; see also M. Dalle Donne, K. Wirtz, H. Krämer, Assessment of Gas-cooled Fast Breeder, Nucl. News 14, 12, 42, 1971, and AED-CONF-71-100-10, Germany

59. K. Wirtz: Gaskühlung schneller Brutreaktoren, Reaktortagung Bonn, März 1971, S. 770, Kerntechnische Gesellschaft im Deutschen Atomforum e.V.
60. M. Dalle Donne et al.: Brennelement, Coreauslegung von gasgekühlten Schnellen Brütern, Reaktortagung Bonn, März 1971, S. 774
61. H.J. Preuß et al.: Anlagekonzept, Sicherheit und Wirtschaftlichkeit des gasgekühlten Schnellen Brütters, Reaktortagung Bonn, März 1971, S. 778
62. C.P. Gratton: Gas-cooled Breeder Reactor Studies, Trans. ANS 14, 271, 1971
63. M. Dalle Donne, K. Wirtz: Problems of Gas-cooled Fast Breeder Reactors, Trans. ANS 14, 272, 1971
64. H.J. Preuß et al.: Siemens Activities in the Field of Gas-cooled Fast Reactor Development, Trans. ANS 14, 273, 1971
65. P. Fortescue, J.B. Dee: Gas-cooled Fast Breeder Reactor Studies, Trans. ANS 14, 273, 1971
66. T.N. Washburn et al.: Fuel Element Development for the Gas-cooled Breeder Reactor, Trans. ANS 14, 275, 1971
67. G. Markóczy: Core Heat Transfer and Fluid Flow in the GCFR, Trans. ANS 14, 275, 1971
68. C. Savatteri: Geschlossener Gasturbinenkreislauf für einen 1000 MWe gasgekühlten Schnellen Brutreaktor, KFK 1409, EUR 4578d, May 1971
69. S. Dorner, G. Schumacher: Compatibility between Vanadium Alloys and Oxides and Carbides under Irradiation, KFK 1410,

May 1971; see also: Theoretische Betrachtungen über die Eignung von Vanadiumlegierungen als Hüllwerkstoff für oxidische (U,Pu)-Kernbrennstoffe, J. Nuclear Mat. 39, 69-76

70. E. Eisemann: Considerations on the Accident: Water Ingress in the Primary Loop of a Helium-cooled Fast Breeder Reactor with Secondary Steam Cycle, KFK 1487, Sept. 1971
71. A.K. Krasin et al.: Physical and Technical Principles in the Design of Nuclear Power Stations Using Gas-cooled Reactors with Dissociating  $N_2O_4$  Coolant, A/Conf. 49/P/023
72. A.F. Fritzsche et al.: The Gas-cooled Fast Breeder Reactor, A/Conf. 49/P/116
73. C.P. Gratton: Some Design and Safety Aspects of Gas Breeder Reactors, A/Conf. 49/P/023
74. C. Savatteri: Der rekuperative Wärmeaustauscher für einen schnellen heliumgekühlten Brutreaktor mit Heliumturbine, KFK 1566, EUR 4725d, Februar 1972
75. E. Eisemann: Anisotrope Diffusion bei gasgekühlten schnellen Brutreaktoren, KFK 1577, März 1972
76. C.A. Goetzmann et al.: Erste Ergebnisse sicherheitstechnischer Untersuchungen für einen gasgekühlten schnellen Brüter, Reaktortagung Hamburg, April 1972, S. 708, Kerntechnische Gesellschaft im Deutschen Atomforum e.V.
77. C.P. Gratton: Gas-cooled Fast Reactor Studies by the GBR Association, Reaktortagung Hamburg, April 1972, S. 712
78. P. Burgsmüller, J.R. Stanbridge: Plant Design and Safety of a Gas-cooled Breeder Reactor, Reaktortagung Hamburg, April 1972, S. 716

79. A. Hubner, A. Krähe: Der gasgekühlte schnelle Brutreaktor mit Coated Particle Brennelement und dessen Coreoptimierung, Reaktortagung Hamburg, April 1972, 720
80. M. Bober, S. Dorner, C. Sari, G. Schumacher: Oxidation of Vanadium Alloy Cladding Material in Contact with Mixed Oxide Fuel, Kerntechnik, August 1972
81. J. Chermanne: GBR-4 Konzept eines 1200 MWe Gasbrüter-Kernkraftwerkes. Eine Studie zur Sicherheit und Wirtschaftlichkeit des GBR. ATW, 10, 484-487, Oct. 1974 and ATW, 11, 540-542, Nov. 1974
82. Gas Breeder Reactor Association: Private Information, Feb. 1975
83. G. Vieider, A. Krähe, C. Oppenheim: Comparison of Fuel Cycle Performance of Na- and He-cooled Fast Breeders Utilizing Stainless Steel Clad Pin Fuel. Reaktortagung, Berlin, April 1974, Deutsches Atomforum e.v. (DatF)
84. M. Dalle Donne, E. Meerwald: Heat Transfer from Surfaces Roughened by Thread-Type Ribs at High Temperatures, Proceedings of the 1970 Heat Transfer and Fluid Mechanics Institute, Naval Postgraduate School, Monterey, Calif., 1970
85. K. Rehme: Pressure Drop Performance of Rod Bundles in Hexagonal Arrangements, Int. J. Heat Mass Transfer 15, 2499-2517, 1972
86. M. Dalle Donne, E. Meerwald: Heat Transfer and Friction Coefficients for Turbulent Flow of Air in Smooth Annuli at High Temperatures, Int. J. Heat Mass Transfer, 16, 787-809, 1973
87. M. Dalle Donne, E. Meerwald: Alternate Studs: A New Type of Artificial Roughness to Improve the Performance of a Gas-cooled Reactor. Trans. ANS Vol. 15 Nr. 2, Nov. 1972

88. H.-J. Pfriem: Heat transfer to Helium and Hydrogen in Heated Tubes with Large Axially Increasing Temperature Differences, Int. Meeting on Reactor Heat Transfer, Karlsruhe, 1973
89. C. Savatteri: NISA II - Ein Fortran-Programm zur thermischen Berechnung von Stabbündeln für Gasgekühlte Schnelle Brutreaktoren mit beliebiger Stabzahl in hexagonaler Anordnung, Reaktortagung Berlin, April 1974
90. W. Krug (ed.): Vorstellung des Entwicklungsvorhabens GSB-Brennelementbestrahlungen im He-Loop-Mol, Jül-Conf-9, Juni 1973
91. C.A. Goetzmann, M. Dalle Donne: Design and Safety Studies for a 1000 MWe Gas-Cooled Fast Reactor, Proc. ANS Fast Reactor Safety Meeting, Beverly Hills, April 1974, CONF-740401-P2
92. M. Dalle Donne, C.A. Goetzmann: Gas-Cooled Fast Breeder Reactor Design Development and Safety Features, Proc. ANS Topical Meeting on Gas Cooled Reactors: HTGR and GCFBR, Gatlinburg, May 1974, CONF-740501
93. H. Wehling et al., Interatom, to be published
94. A. Birkhofer et al.: Reactor Safety in the Federal Republic of Germany. A/Conf. 49/P/364, 1971
95. L. Barleon, M. Dalle Donne, S. Dorner: Temperature and Heat-Flux Distribution in the Molten Core Mass of a GCFR after a Hypothetical Melt-Down Accident, KFK 1755, 1973
96. L. Barleon, M. Dalle Donne, S. Dorner: Some Considerations on the Development of a Core Catcher of a Gas Cooled Fast Reactor, KFK 2036, EUR 4977e, February 1974
97. G. Vendryes et al.: Situation et Perspectives de la Filière des Réacteurs à Neutrons Rapides en France, Proc. Fourth Int.

- Conf. on Peaceful Uses of Atomic Energy, Geneva 1971,  
A/Conf. 49/P/583
98. W. Schikorr: Reaktorstrategie zu einer autarken Primärenergieversorgung, Reaktortagung Berlin, April 1974, Deutsches Atomforum e.v. (DAtF)
99. A.S. Manne, O.S. Yu: Breeder Benefits and Uranium Availability, Nuclear News, Vol. 10, 46-52, Jan. 1975, in particular see footnote on page 47
100. G.B. Melese d'Hospital, J.B. Dee: Gas-Cooled Fast Breeder Reactor Designs, Fast Reactor Conf., A.S.M.E. Palo Alto Calif., March 1971, and GA-10325
101. P. Fortescue: The Gulf General Atomic Gas-Cooled Fast Breeder Reactor System, IAEA Study Group on Gas-Cooled Fast Breeder Reactors, Minsk, UDSSR, July 1972 and GA-A12182
102. J.B. Dee, P. Fortescue, J.A. Larrimore: Gas-Cooled Fast Breeder Reactor Studies, J. British Nucl. Energ. Loc. Vol. 12 (4) 387-394, 1973
103. P. Fischer, L. Meyer: Die Entwicklung des gasgekühlten Schnellen Brütters, VDI Bericht 208, Energieumwandlung in thermische Kraftwerke, Vorträge der VDI Tagung, Düsseldorf 1973, s. 47-60
104. S. Kypreos, D. Haschke: Optimum Design of Gas Cooled Fast Reactor Cores, EIR-Bericht Nr. 261, Würenlingen, August 1974
105. R.H. Simon, J.B. Dee, W.I. Morita: Gas-cooled Fast Breeder Reactor Demonstration Plant, Proc. ANS Topical Meeting on Gas Cooled Reactors: HTGR and GCFBR, Gatlinburg, May 1974, CONF-740501
106. K. Wirtz: Contribution to the Panel Discussion, Proc. Gas-Cooled Reactor Information Meeting, Oak Ridge, 1970, pp. 777-779, CONF-700401

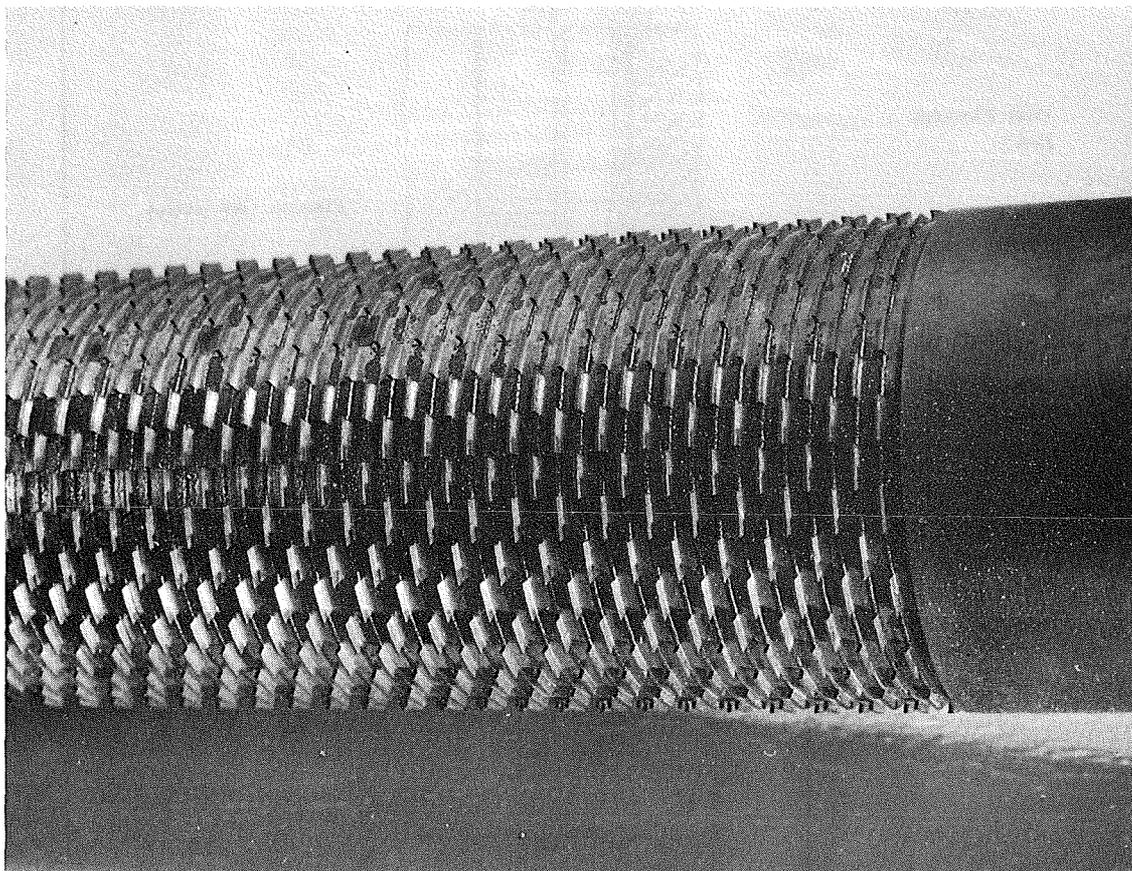


Fig.1: Artificial "three dimensional" roughness on the surface of the fuel pins, to improve the thermal performance of the GCFR.

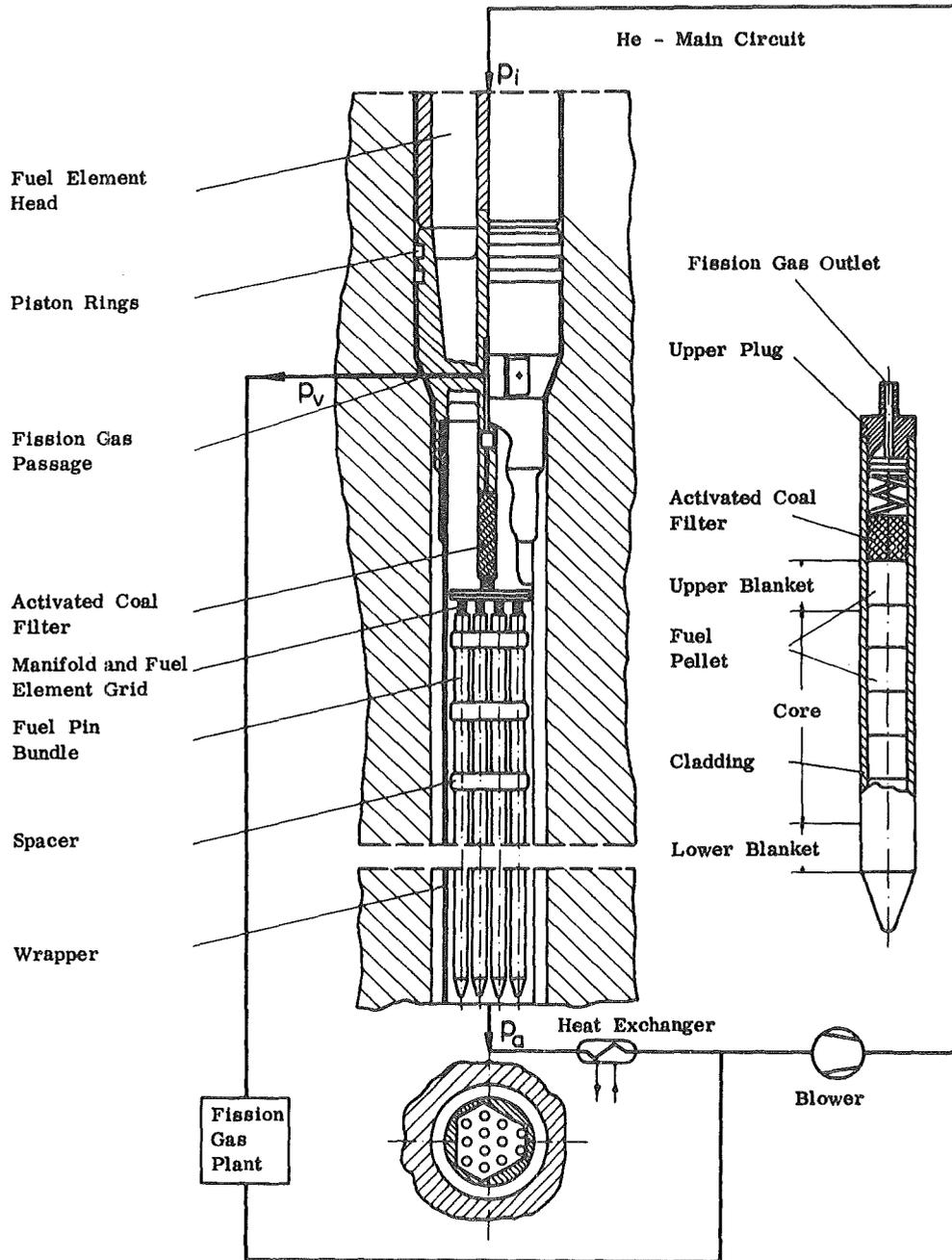


Fig.2: Test fuel element (schematic) for the BR2 irradiation experiment.

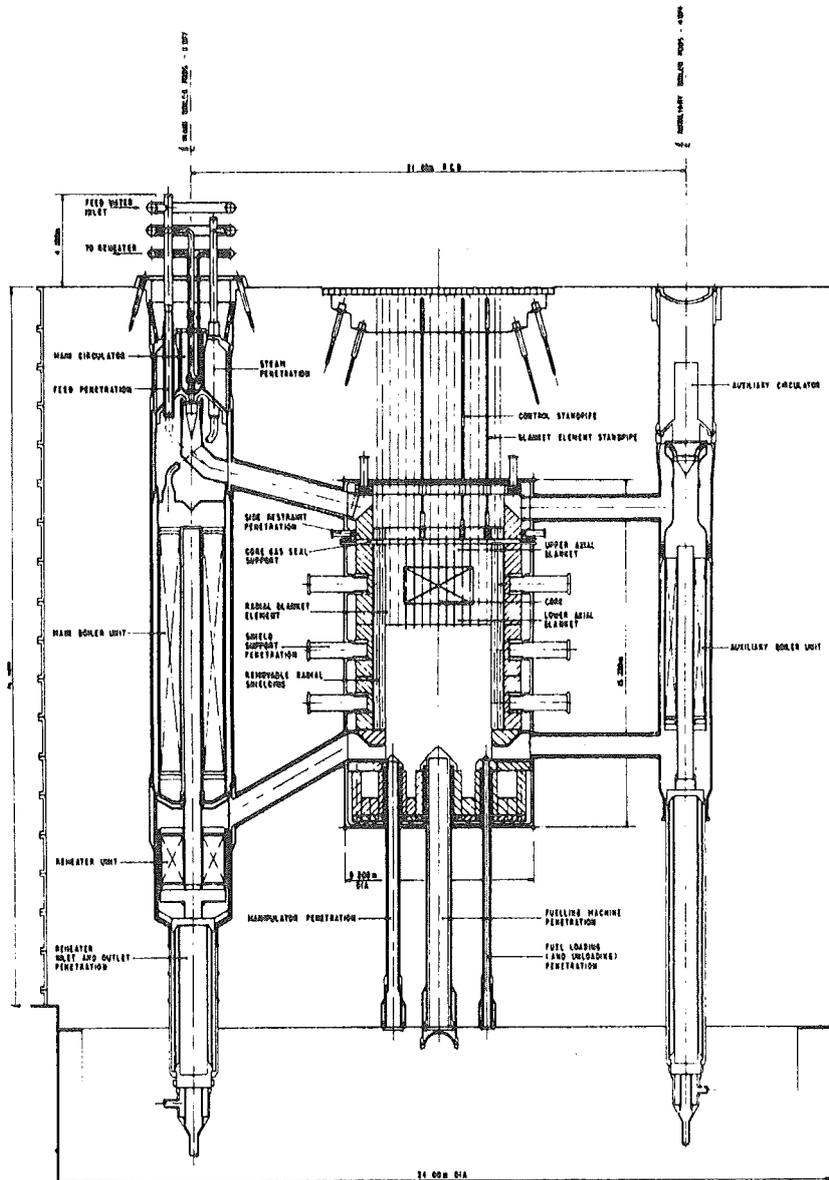


Fig.3: Vertical section through the Nuclear Steam Supply System of the GfK-KWU 1000 MWe GCFR reference design (GSB-1).

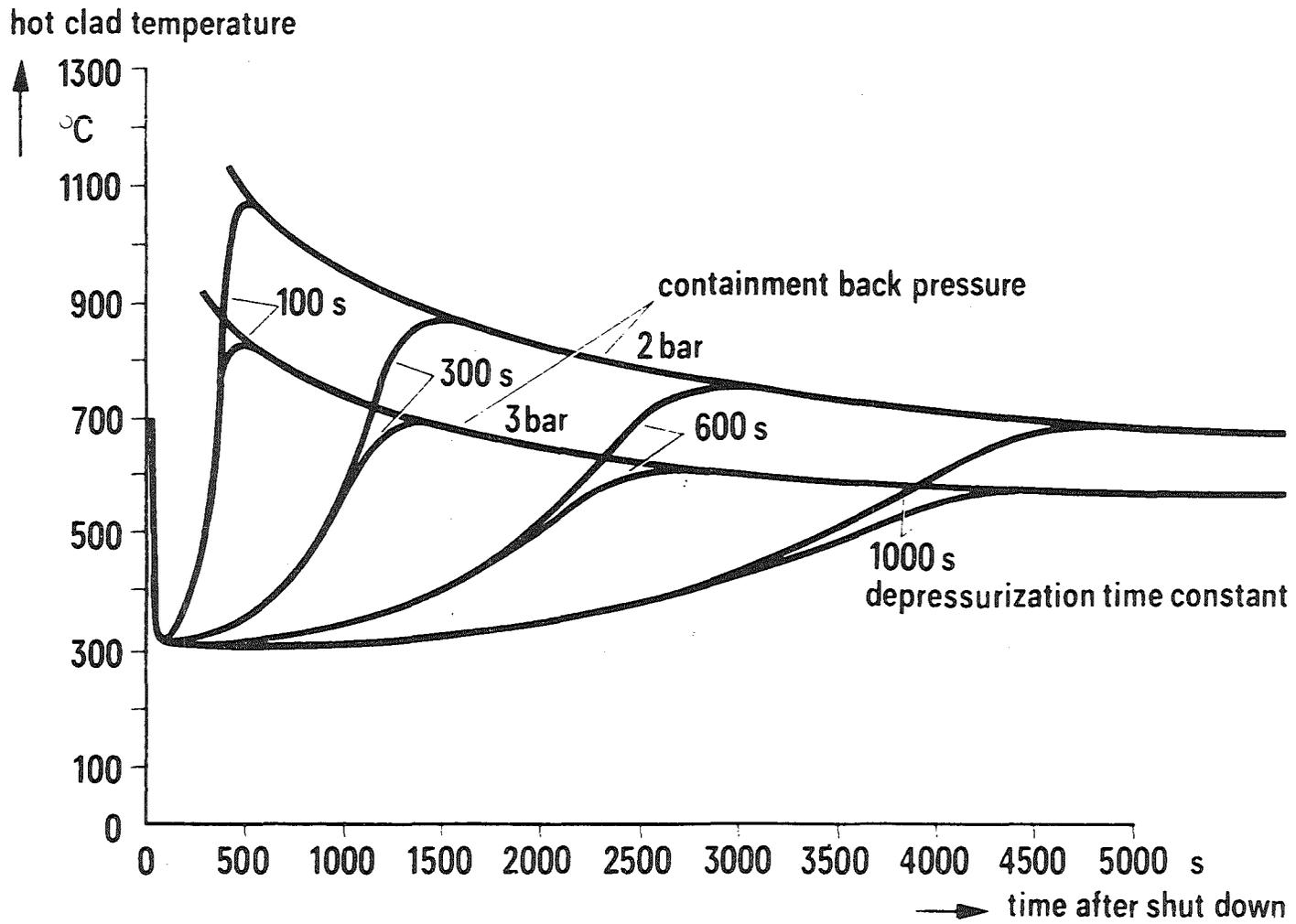


Fig.4: Peak cladding temperature after depressurization accident (GSB-1).

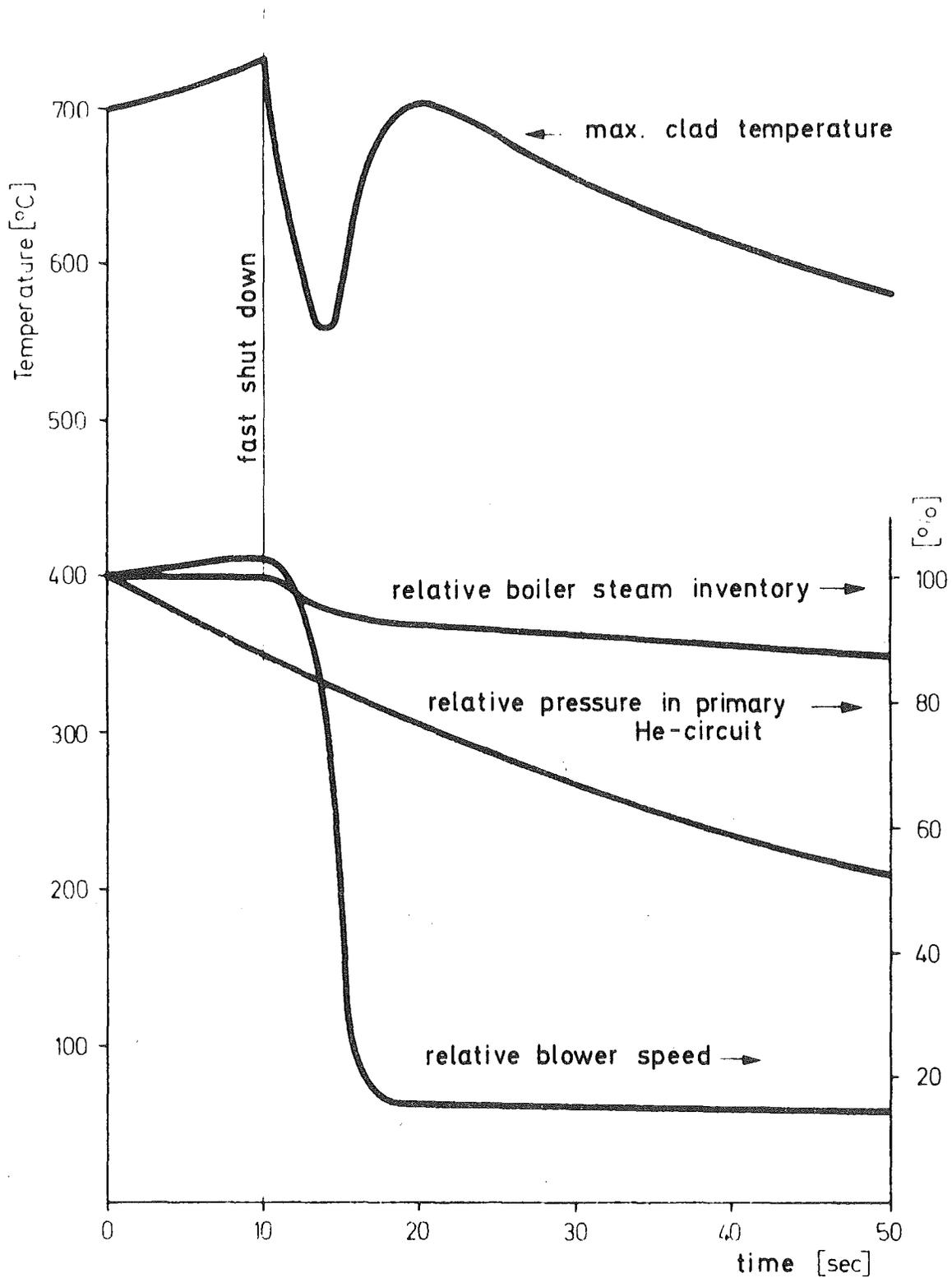


Fig.5: System behaviour by the design basis accident (GSB-1).

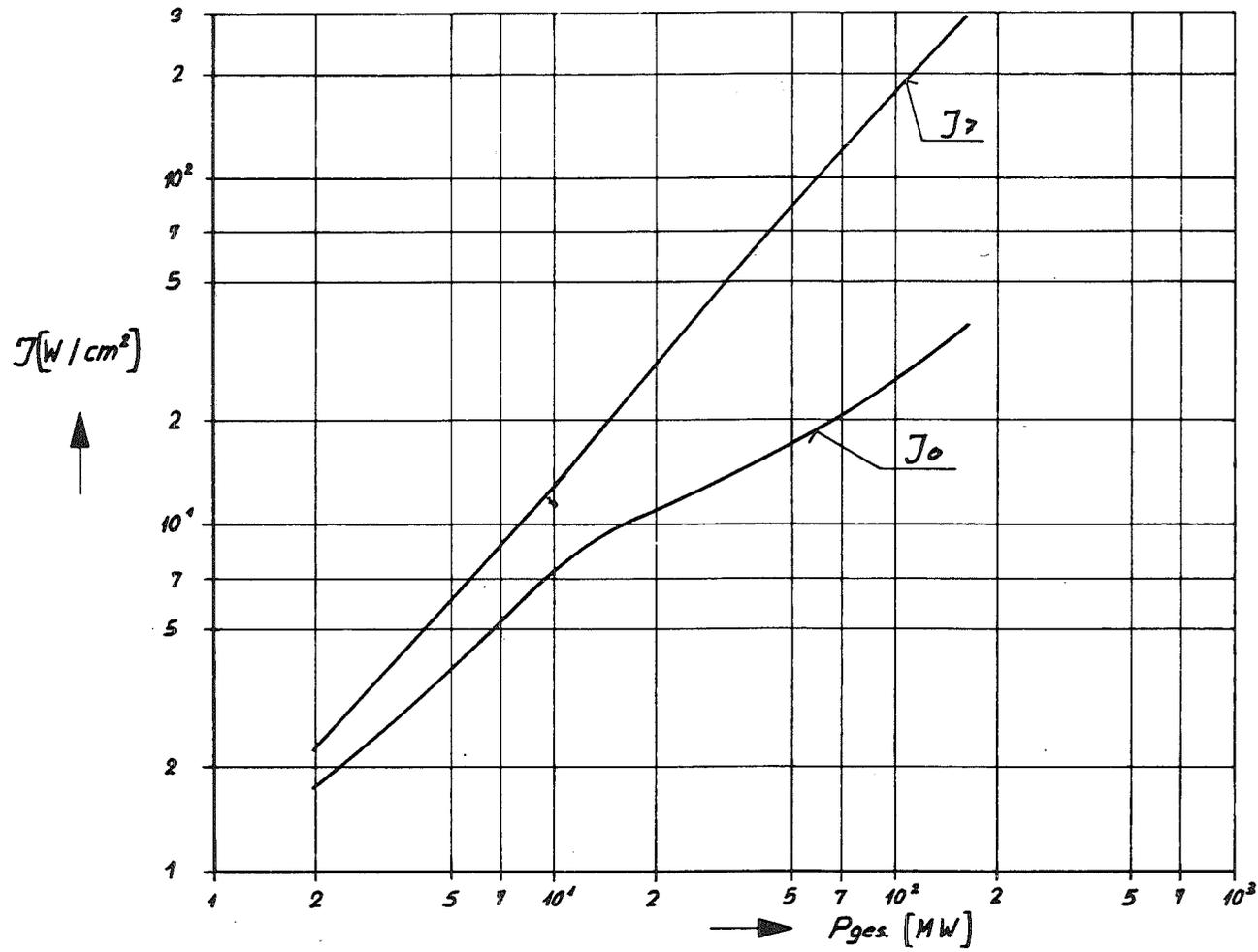


Fig.6: Relation between heat flux and total decay heat in a slab of molten GCFR core and blanket material ( $J_7$ =heat flux upwards,  $J_0$ =heat flux downwards,  $P_{ges}$ =total power in the melt).