

KfK 2540
Dezember 1978

Spaltproduktrezyklierung — ein Verfahren zur Verminderung der Endlagerungsproblematik

L. Barleon, S. Dorner
Institut für Neutronenphysik und Reaktortechnik
Institut für Reaktorbauelemente

Kernforschungszentrum Karlsruhe

KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE

KfK 2540

Institut für Neutronenphysik und Reaktortechnik
Institut für Reaktorbauelemente

Spaltproduktrezyklisierung - ein Verfahren zur
Verminderung der Endlagerungsproblematik

L. Barleon und S. Dorner

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH, Karlsruhe

Als Manuskript vervielfältigt
Für diesen Bericht behalten wir uns alle Rechte vor

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH
ISSN 0303-4003

Spaltproduktrezyklierung - ein Verfahren zur Verminderung der Endlagerungsproblematik

Zusammenfassung:

In dem Bericht wird ein Verfahren zur wiederholten Rezyklierung von Spaltprodukten dargestellt. Mit diesem Verfahren soll die Problematik um die Endlagerung verringert werden. Die ersten Untersuchungen über die Technologie, Neutronenökonomie, Sicherheitsaspekte, Wirtschaftlichkeit u.a.m. erbrachten keine grundsätzlichen Gegenargumente, zeigte jedoch auf, daß zur praktischen Verwirklichung umfangreiche Untersuchungen und Entwicklungen erforderlich sind.

Es wird gezeigt, daß sowohl das Reprozessing als auch die Refabrikation von Brennelementen bei einer Weiterentwicklung der Fernbedienungstechnik möglich ist.

Die Rezyklierung der nichtflüchtigen Spaltprodukte sowie der Aktiniden schafft einerseits einen Zeitgewinn zwischen Energieerzeugung im Reaktor und der endgültigen Entsorgung der dabei entstehenden Abfallprodukte, andererseits wird das Potential erhöht, mit kommerziellen Reaktoren Spaltprodukte und Aktiniden abzubrennen. Dadurch wird die Menge der Abfallstoffe, welche endgelagert werden müssen, sowie deren Langzeitaktivität verringert.

Mit dem aufgezeigten Verfahren lassen sich die leicht abtrennbaren, flüchtigen Spaltprodukte, wie z.B. Jod in konzentrierter Form gewinnen, so daß sie in kommerzielle Reaktoren zurückgeführt und in stabile Isotope umgewandelt werden können.

Die ersten Untersuchungen zeigten, daß bei einer Spaltproduktrezyklierung der Spaltstoffeinsatz nur geringfügig beeinflußt wird. Das gilt sowohl für thermische Reaktoren als auch für Schnelle Brüter. Bei der Anwendung auf Schnelle Brüter ist das Problem der Verringerung der Brutrate durch die rezyklierten Spaltprodukte noch genauer zu untersuchen.

Obwohl die absoluten Kosten von Wiederaufarbeitungstechniken außerordentlich schwierig und unsicher vorauszusagen sind und Fehlschlüsse möglich sind, läßt eine vergleichende Abschätzung der Kosten des Verfahrens keine nennwerte Nachteile gegenüber anderen Brennstoffzyklen mit Endlagerung erwarten.

Fission Product Recycling - A Method to Reduce Problems Connected with Waste Disposal

Summary:

In this report a method is presented which allows repeated fission product recycling. It is intended to reduce the problems connected with waste disposal. Preliminary studies of the technology, neutron economy, safety aspects, economy, etc. did not reveal counterarguments of a fundamental nature, but showed, that their realisation needs extensive investigations and developments.

It is shown that both reprocessing and fuel element refabrication are possibly feasible procedures if remote handling is further developed. On the one hand, recycling of nonvolatile fission products and Actinides helps to gain time between energy production in the reactor and the final disposal of the produced waste and, on the other hand, it enhances the potential of commercial reactors to burn up fission products and Actinides. In that way the quantity of waste to be desposed and his long time activity would be reduced.

By the method indicated the volatile fission products which can be easily separated, such as iodine, can be obtained at high concentrations so that they can be recycled into commercial reactors and transformed into stable isotopes.

First studies have shown that fission product recycling influences the fissile inventory to a minor extent only. This applies both to thermal reactors and fast breeder reactors. If the method is to be employed in fastbreeders, the problem of a reduction of the breeding ratio by recycled fission products still calls for a detailed investigation.

Although the prediction of the absolute costs of the reprocessing technology is very difficult and uncertain and false conclusion are possible, a comparative estimate of the costs incurred by this method does not point to noticeable drawbacks as compared with other fuel cycles including ultimate storage.

Inhaltsangabe

1. Einleitung und Problemstellung
2. Das Verfahren der mehrfachen Rezyklierung von Spaltprodukten
3. Technologie der Spaltproduktrezyklierung
 - 3.1 Refabriktion der Brennelemente
 - 3.2 Einfluß der Spaltprodukte auf die Brennstoffeigenschaften
 - 3.3 Spaltstoffzugabe zum Brennstoff
 - 3.4 Kostenvergleich
4. Nukleares Verhalten eines Reaktors bei mehrfachrezykliertem Brennstoff, Spaltprodukten und Transaktiniden
 - 4.1 Neutronenökonomie
 - 4.1.1 Kritikalität
 - 4.1.2 Konversions- und Bruterate
 - 4.2 Das Abbrandverhalten von Spaltprodukten und das Aktivitätspotential eines Reaktorkernes im Gleichgewichtszustand
 - 4.3 Thermodynamische Eigenschaften des Kerns
 - 4.4 Sicherheitsaspekte
 - 4.4.1 Der Doppler-Effekt
 - 4.4.2 Das Spaltproduktinventar als Gefährdungspotential
5. Zusammenfassung
6. Literatur, Tabellen, Bilder

1. Einleitung und Problemstellung

Die Energiegewinnung durch Kernspaltung läuft in folgenden wesentlichen Verfahrensstufen ab:

- Brennstoffgewinnung und Brennelementfabrikation
- Kernspaltung und Energieerzeugung in Kernreaktoren
- Wiederaufarbeitung und Brennelement-Refabrikation
- Behandlung und Beseitigung der radioaktiven Abfälle.

Hiervon haben die ersten beiden Stufen einen hohen Stand der technologischen Entwicklung erreicht, die bei der Energieerzeugung mit Leichtwasserreaktoren bis zur Marktreife gelangt ist. Die 3. Stufe, die Wiederaufarbeitung, die vor allem für die Weiterentwicklung der Stufe 2 hin zu den Brutreaktoren unverzichtbar ist, sowie die Abfallbehandlung, befinden sich erst im Stadium der großtechnischen Entwicklung. Abgesehen von einer einzigen größeren Entwicklung, nämlich dem Thermischen Salzschnmelzenbrüter, hatte diese zeitliche Differenz der Entwicklung der Stufen 1 und 2 einerseits und 3 und 4 andererseits zur Folge, daß keine integralen Lösungen für alle Verfahrensstufen gesucht wurden.

Relativ früh wurde auch bei den Reaktorstrategieüberlegungen dieser Mangel deutlich; als man anfang, über das gezielte Abbrennen von Spaltprodukten und Aktiniden in Reaktoren nachzudenken. Dabei stellte sich heraus, daß zu diesem Zweck spezielle Reaktorkonzepte erforderlich werden, meist als Spaltproduktbrenner bezeichnet.

Da nun solche speziellen Brenner zur kommerziellen Nutzung nicht in Aussicht stehen, ist zur Zeit vor allem in der Bundesrepublik Deutschland nur noch in Diskussion, die abgebrannten Brennelemente unter Wiedergewinnung von U-238 und Plutonium aufzuarbeiten und alle weiteren vorhandenen radioaktiven Stoffe in geologischen Formationen zu endlagern /1/. Bei dem z. Zt. verwendeten

Wiederaufarbeitungsprozeß wird beabsichtigt, das Uran von dem Plutonium, den Aktiniden und den Spaltprodukten mit so hohem Trennfaktor abzutrennen, daß es wie frisches Material zu Brennelementen verarbeitet werden kann. Zieht man die Plutoniumrezyklierung auch beim LWR in Betracht, was ja beim Schnellen Brüter sowieso zwingend ist, ist diese scharfe Trennung von Uran und Plutonium nur noch wegen der erleichterten, inaktiven Brennstabfabrikation gerechtfertigt. Die scharfe Trennung ist jedoch nicht konzeptbestimmend. Unter den bei der Kernspaltung auftretenden Spaltprodukten sowie bei den durch n- γ -Einfang in Brut- und Spaltstoff entstehenden Aktiniden gibt es Isotope, wie z.B. I-129 sowie Americium- und Curiumisotope, die sehr lange Zerfallszeiten besitzen und deshalb die Endlagerung zu einem Langzeitproblem machen, wobei sichere Verwahrung für hunderte bis tausende von Jahren /2/ gefordert werden muß. Als eine solche sichere Verwahrung wird in der Bundesrepublik Deutschland die Einlagerung in Salzstöcke vorgesehen.

Die vorliegende Arbeit stellt nun einen Versuch dar, die Langzeitproblematik der Endlagerung zu reduzieren. Hierzu wird vorgeschlagen, alle nichtflüchtigen Spaltprodukte sowie das flüchtige, Jod wieder durch Einsetzen in die Brennstäbe im Reaktor zu rezyklieren, wobei gezeigt werden soll, daß die Menge von langlebigen Spaltprodukten verringert werden kann. Ein weiterer Grundgedanke bei der Überlegung ist, daß aufgrund des hohen erreichten Niveaus bei der Entwicklung der Spaltreaktoren vor allem im Hinblick auf den dort erreichten Sicherheitsstandard der Reaktor selbst ein sicherer Ort für eine Zwischenlagerung der Spaltprodukte darstellt. Damit kann auch zum Teil dem stets erhobenen Vorwurf begegnet werden, daß unsere Generation in dem Atommüll ein belastendes Erbe für alle nachfolgenden Generationen hinterläßt, da zu jeder Zeit, in der Reaktoren betrieben werden, dort auch ein Teil der erzeugten, langlebigen, radioaktiven Abfälle rezykliert und abgebrannt, beziehungsweise zwischengelagert werden.

2. Das Verfahren der mehrfachen Rezyklierung von Spaltprodukten

Die Grundidee des Verfahrens ist die mehrfache Rezyklierung der bei dem Abbrand des Kernbrennstoffes entstehenden Spaltprodukte. Durch die mehrfache Rezyklierung der Spaltprodukte wird deren mittlere Verweilzeit im Reaktor verlängert und damit die Rate für die Transmutation von radioaktiven Spaltprodukten in stabile Isotope erhöht. Die mit diesem Prozeß gleichzeitig verbundene Rezyklierung des erbrüteten Spaltstoffes (z.B. Pu) und der für die Langzeitproblematik der Endlagerung verantwortlichen Aktiniden ist als ein vorteilhaftes Nebenprodukt zu betrachten.

Wie schon zu Beginn der Entwicklung der 3. Verfahrensstufe, der Wiederaufbereitung von bestrahlten Kernbrennelementen, festgestellt wurde /3, 4/, ist die wesentliche Aufgabe der Wiederaufarbeitung bei den thermischen Reaktoren mit oxidischem Brennstoff vornehmlich die entstandenen parasitären Neutronenabsorber zu entfernen. Bei den Schnellen Reaktoren hingegen dient sie vornehmlich der Rückgewinnung des Brutstoffes U-238, sowie des nicht abgebrannten bzw. neu erbrüteten Spaltstoffes und der Reformierung der abgebrannten Brennstäbe nach Ablauf der Standzeit.

Die Standzeit der Brennstäbe in Schnellen Reaktoren wird vorwiegend durch die große Volumenzunahme des Brennstoffes bei dem für Schnelle Reaktoren spezifischen hohen Abbrand, sowie dem Schwellen des Hüllmaterials im hohen, schnellen Neutronenfluß begrenzt.

Das vorgeschlagene Verfahren zur Spaltproduktrezyklierung lehnt sich an diese Grundforderungen für eine Wiederaufarbeitung an. Wie in Abb. 1 schematisch dargestellt, werden die bestrahlten Brennelemente aus dem Reaktor so aufgearbeitet, daß nur die flüchtigen Spaltprodukte wie z. B. Kr, Xe, Rb, Cs, Br, J und Tritium abgezogen werden. Für die Separierung der einzelnen flüchtigen Spaltprodukte lassen sich daher einfache physikalische Trennmethode aufzeigen.

In einer aktiven Brennelementfabrik werden die Brennelemente refabriziert, wobei zur Kompensation des abgebrannten Spaltstoffes, sowie der durch die Konzentrierung von Spaltprodukten gestörten Neutronenökonomie, Spaltstoff zugegeben und eine Gesamtmassenbilanz des Brennstoffes gemacht wird (Abbn. 2 und 3). Nach mehrfacher Rezyklierung wird der nunmehr hochkonzentrierte Spaltproduktanteil aus dem Kreislauf entnommen und der Endlagerung zugeführt. Bei diesem Aufarbeitungsschritt ist nur ein geringer Dekontaminationsfaktor erforderlich, da der restliche Spalt- und Brutstoff wiederum einer aktiven Brennelementfabrikation zugeführt wird.

Die Größe der Gesamtaktivität der mehrfach rezyklierten, nichtflüchtigen Spaltprodukte hängt stark von ihrem Abbrandverhalten im jeweiligen Reaktorsystem ab, wie dies in einem nachfolgenden Kapitel noch behandelt wird. Bei Reaktorsystemen mit geringem Abbrand von vor allem langlebigen Spaltprodukten würde sich eine der jeweiligen Spaltproduktisotopenkonzentration proportionale Erhöhung der Radioaktivität ergeben. Für diesen Fall wäre eine wärmetechnische Nutzung z. B. für Heißwasserbereitung dieser hochkonzentrierten, radioaktiven Produkte zu erwägen. Zur Herstellung der hierzu erforderlichen aktiven Heizstäbe wäre wiederum eine aktive Brennelementfabrik erforderlich.

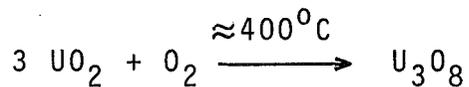
Das bei den flüchtigen Spaltprodukten enthaltene J-129/131-Isotopengemisch mit dem langlebigen J-129, Halbwertszeit $1,57 \cdot 10^7$ a, und dem relativ kurzlebigen J-131, Halbwertszeit 8,0 d, die nur mit einem Isotopentrennverfahren zu trennen wären, zerfällt direkt (J-131) oder geht nach Neutroneneinfang über ein kurzlebigen Isotop in stabile Xenonisotope über.

Es wird deshalb vorgeschlagen, dieses Isotopengemisch in spezielle Abbrandloops (Abbrandstäbe) bei kommerziellen Reaktoren zu rezyklieren, wobei das entstehende Xenon-Gas kontinuierlich entfernt wird.

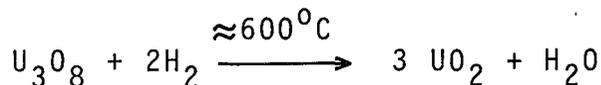
3. Technologie der Spaltproduktrezyklierung

3.1 Refabrikation der Brennelemente

Ein geeignetes Verfahren für eine einfache Refabrikation der Brennelemente ist in der Literatur bereits beschrieben und entsprechende Versuche in kg-Bereich sind durchgeführt. Es handelt sich um den sogenannten AIROX-Prozeß (Atomics International Reduction-Oxidation-Prozeß) /5/. Bei diesem Verfahren wird der Brennstoff zuerst unter Volumenvergrößerung bis zu 30 % bei ca. 400°C oxidiert:



und danach mit Wasserstoff bei 600°C reduziert:



Durch dreimalige Wiederholung des Oxidation-Reduktionsvorganges erhält man nun Pulver, das sich sehr gut sintern läßt. Zur Trennung des Brennstoffs von dem Hüllmaterial werden die Hüllen in Abständen von 3 cm angebohrt oder eventuell vorteilhafterweise zerhackt. Bei der anschließenden Oxidation mit Sauerstoff bei 400°C werden die Hüllen durch die Volumenzunahme aufgerissen und der Brennstoff kann aus den Hüllen herausfallen. Bei dem AIROX-Prozeß wird das Xenon, Krypton, Jod, sowie Cäsium vollends und das Tellur zu einem merkbaren Teil abgetrennt. Ruthenium kann bei oxidierender Atmosphäre und bei einer Temperatur über 725°C vom Brennstoff entfernt werden. Der Spalt- und Brutstoff (Pu und U) wurde zu 99,9 % vom Hüllmaterial getrennt /5/. Die Seltene Erden, Strontium, Barium, Molybdän sowie das Zirkonium und Niob verblieben beim dreimaligen Oxidation-Reduktion-Zyklus im Brennstoff /6,7/. Von den Seltenen Erden wurde das Lanthan, Cer, Praseodym, Neodym, Samarium sowie das Yttrium bei den chemischen Analysen des AIROX-Prozesses mitberücksichtigt. Nach mehrmaligen (dreimaligen) Oxidation-Reduktion-Zyklen erhält man ein sehr gut sinterbares Pulver /7/. Die chemische Reaktivität

des Pulvers hat sich bei Konzentrationen von 10 % Spaltprodukte nicht erhöht /5/. Obwohl der AIROX-Prozeß für Brennelemente für thermische Reaktoren vorgesehen ist, könnte er auch für die Aufarbeitung von Brennelementen aus Schnellen Reaktoren verwendet werden. Dabei ist der Einfluß des höheren Plutoniumgehaltes und der höheren Anreicherung an Spaltprodukten zu beachten.

3.2 Einfluß der Spaltprodukte auf die Brennstoffeigenschaften

Aus den bei der Atomics International, Canoga Park, Cal. /7/ durchgeführten Versuche konnte gezeigt werden, daß der mehrmals, d. h. bis zu fünfmal, mit den verbliebenen Spaltprodukten rezyklierte Brennstoff keine Verschlechterung der technologischen Eigenschaften brachte. Da diese Versuche aber unter dem Gesichtspunkt des thermischen Reaktors vorgenommen wurden, erscheint es notwendig, zumindest erste Abschätzung auch für den Schnellen Brüter zu machen. Die Aufkonzentration der Spaltprodukte bei den Schnellen Reaktoren wird wegen des hohen Zielabbrandes erheblich höher sein, als bei den bis jetzt mit der Rezyklierung erfolgten Versuchen. Die Grenze der Aufkonzentration wird im Wesentlichen durch neutronenphysikalische Randbedingungen festgelegt. Für unsere ersten Überlegungen soll eine extreme Grenze von 90 % Spaltprodukte und 10 % Spalt- und Brutstoff angenommen werden. Da die gasförmigen und leichtflüchtigen Spaltprodukte bei der Rezyklierung entfernt werden, hätte man es hauptsächlich mit den in Tabelle 1 (vgl. auch Abb. 4) angeführten Spaltprodukten und zwar in oxidischer bzw. metallischer Form zu tun. Bei den oxidischen Spaltprodukten kann man drei Gruppen unterscheiden: Erdalkali, Seltene Erden, die Refraktory-Metalle (wie Zr, Nb, Mo). Hinzu kommen die Transurane (wie Np, Am, Cm). Diese Elemente werden in oxidischer Form vorliegen und sind in ihren Eigenschaften mit dem Uranoxid vergleichbar. So haben diese Oxide einen hohen Schmelzpunkt, dagegen ist die Wärmeleitung der Oxide in reiner Form besser als von UO_2 /8/, ausgenommen Zirkonoxid, welches bei niedrigeren Temperaturen eine schlechtere Wärmeleitfähigkeit als das UO_2 aufweist, die jedoch

mit höherer Temperatur zunimmt. Die Innenkorrosion der Brennstabhüllen wird vorwiegend durch einige Spaltprodukte, wie: Cäsium, Tellur, Jod; in Verbindung mit dem Sauerstoffpotential des Brennstoffs verursacht. Bei der Rezyklierung des Brennstoffs würden die korrosionsverursachenden Spaltprodukte entfernt und die Einstellung des Sauerstoffpotentials des Brennstoffs würde nach den herkömmlichen Verfahren erfolgen, so daß keine neuen Probleme diesbezüglich zu erwarten sind. Zu klären wäre, ob der Rezyklierungsmechanismus, d. h. die Pulverisierung des Brennstoffes bei der Oxidation, auch bei sehr hoher Spaltproduktansammlung erhalten bleibt. Die Pulverisierung wird durch die verschiedene Dichte der Uranoxide ($\rho_{\text{UO}_2} = 10,96 \text{ g/cm}^3$ - $\rho_{\text{U}_3\text{O}_8} = 8,3 \text{ g/cm}^3$) bewirkt. Diese Funktion könnten die verschiedenen Oxide einiger Spaltprodukte übernehmen, wie:



Eine definitive Aussage kann nur auf Grund einer genauen Analyse des Aufbaus der Spaltprodukte und einer experimentellen Untersuchung erfolgen. Ebenso wäre zu klären, ob sich im Brennstoff eine derartige Konzentration metallischer Spaltprodukte ansammelt, so daß durch Diffusionslegierungsbildung die Standzeit der Brennstoffhülle sich unzulässig verringern würde.

Beiden Effekten, d.h. der Herabsetzung der Pulverisierungsfähigkeit wie einer eventuellen Verringerung der Hüllstandzeit, kann man durch gezielte Maßnahmen entgegensteuern. Im ersten Fall kann ein geeignetes Oxid (im einfachsten Fall UO_2) zudosiert werden, im zweiten Fall kann die Innenseite der Hülle mit einer Diffusionsbarriere versehen werden.

Es bleibt festzustellen, daß die erste Überlegung keine technologischen Einwände gegen ein Rezyklierungsverfahren des Brennstoffes hervorbringen. Dabei ist noch hinzuweisen, daß keineswegs nur an den AIROX-Prozeß zu denken wäre, gegebenenfalls müßten modifizierte Oxidation-Reduktions-Verfahren (auch mit anderen Agenzien) beachtet werden. So ist aus der Aufdampftechnik bekannt, daß sich MoO_3 bei 700°C verdampfen läßt, d. h., daß bereits durch Erhöhung der Temperatur beim Oxidationsschritt

im AIROX-Prozeß die Abtrennung des Molybdän zu erreichen wäre. Da Molybdän in hoher Konzentration als Spaltprodukt anfällt und kein hohes Gefährdungspotential darstellt, würde man auf einfache Weise das Mitschleppen eines unnötigen Ballasts im Brennstoffkreislauf umgehen.

3.3 Spaltstoffzugabe zum Brennstoff

Bei der Refabrikation der Brennelemente nach dem AIROX-Prozeß wird es wegen des vorherigen Spaltstoffabbrandes und gleichzeitiger, laufender Anreicherung mit Spaltprodukten erforderlich, neuen Spaltstoff zuzuführen. Bei den thermischen Reaktoren erfolgt das üblicherweise durch Zugabe von U-235 aus einer Anreicherungsanlage.

Berechnungen über die Mehrkosten aufgrund der zusätzlichen Spaltstoffzugabe zur Kompensation der Spaltproduktvergiftung sind bereits durchgeführt /9/. Ähnliche Untersuchungen für Schnelle Reaktoren sind nicht bekannt. Bei den Schnellen Brutreaktoren wird man den Spaltstoff, und zwar das Plutonium, aus dem Blanket holen. Dazu ist nur eine Separierung des Plutoniums aus dem Blanket erforderlich, wozu man auf eine einfache Fällungsmethode zurückgreifen kann. Diese Fällungsmethode war auch die Grundlage des ersten Wiederaufbereitungsprozesses. Im Fällungsverfahren wird das Plutonium in Gegenwart eines großen Überschusses an Uran niedergeschlagen. Bei den ersten Wiederaufbereitungen in den USA während des Krieges benutzte man BiPO_4 zur Mitfällung von Pu /4, 10/.

Bei dieser Fällung wurde keine Abtrennung von Zirkon und den Seltenen Erden erreicht, weil sie ebenfalls schwerlösliche Phosphate bilden. Die Abtrennung des Plutoniums von diesen Spaltprodukten erfolgt durch mehrmalige Oxidation des Plutoniums zu löslichem PuO_2^{2+} mit Bichromat oder Wismutat mit anschließender Phosphatfällung. Das Zirkon und die Seltenen Erden gingen

dabei in den Niederschlag. Die Aufkonzentrierung des Pu erfolgte durch LaF_3 -Fällungen und eine direkte Plutoniumperoxid-Fällung (Pu_2O_7) /11, 12/. Das ganze Verfahren war durch seine mehrfachen Fällungs- und Löseschritte diskontinuierlich, was sich bei der notwendigen "remote handling" als nachteilig erwies. Ein weiterer Nachteil war, daß das Ausgangsmaterial Uran gemeinsam mit dem Abfall radioaktiver Spaltstoffe zu dem Abfall wanderte. Dieser Nachteil war untragbar bei der Aufarbeitung von Brennelementen aus Reaktoren mit angereichertem Uran, deshalb ging man bald zur Entwicklung von kontinuierlich arbeitenden Lösungsmittel-Extraktionsprozessen über. Diese Entwicklung führte zum Purex-Prozeß, ein Gegenstrom-Extraktionsverfahren mit Tributylphosphat (TBP) als Extraktionsmittel für Uran und Plutonium. Bei der Anwendung eines Fällungsverfahrens für die Spaltproduktrezyklierung spielen die bei dem obigen Fällungsverfahren angeführten Nachteile keine Rolle. Entscheidend ist nur, daß das Plutonium durch die Fällung angereichert wird. Die Mitfällung des Zirkons und der Seltenen Erden kommt dem Konzeptgedanke entgegen, da diese Spaltprodukte ja rezykliert werden sollen. Das Uran wandert nicht in den Abfall, sondern wird zu neuen Brutelementen verarbeitet. Um die gasförmigen und leichtflüchtigen Spaltprodukte zu entfernen, könnte man den AIROX-Prozeß als "head-end"-Verfahren dem Fällungs-Aufarbeitungsprozeß des Blankets vorschalten. Der Oxidationsschritt des AIROX-Prozesses stellt ohnedies ein vorteilhaftes "head-end"-Verfahren dar /3/.

Auch der Einwand der diskontinuierlichen Arbeitsweise des Fällungsverfahrens würde in unserem Falle wegfallen, da eine alternierende Fällung und Auflösung des Plutoniumniederschlages (wegen der Abtrennung der Spaltprodukte) nicht erforderlich wäre. Den in PuO_2 überführten Niederschlag würde man direkt dem Brennstoff aus dem Core zur Spaltstoffanreicherung und BE-Re-fabrikation zuführen.

3.4 Kostenvergleich

Der Ausgangspunkt des vorliegenden Berichtes ist die Suche nach einer Kernenergiestrategie, bei der die Wiederaufarbeitung und Endlagerung, also Prozeßschritte der Kernenergiegewinnung, die besonders im Rampenlicht der öffentlichen Anfeindung stehen, umgangen oder zumindest ihre Bedeutung im Prozeßschema verringert werden kann. Aus eigenen technologischen Überlegungen sowie aus den Angaben in der Literatur ist zu schließen, daß dieser Weg möglich ist. Neben der technischen Möglichkeit interessiert aber zugleich die wirtschaftliche Seite. Auch dazu kann auf einige Literaturangaben hingewiesen werden. L. J. Colby, jun., K. L. Mattern u. a. /9/ machten einen Kostenvergleich zwischen den Brennstoffzyklen einerseits mit dem AIROX-Prozeß und andererseits mit den wäßrigen Wiederaufbereitungsverfahren für thermische Reaktoren. Sie stellten fest, daß der mehrmalige Einsatz des wenig dekontaminierten Brennstoffs aus dem AIROX-Prozeß günstiger ist, wie das zusammenfassend aus Abb. 5 und Tab. 2 zu entnehmen ist. Dabei muß ausdrücklich darauf hingewiesen werden, daß bei diesem Kostenvergleich die Endlagerung nicht mitberücksichtigt ist. Es darf mit Sicherheit angenommen werden, daß zumindest von der Menge her weniger radioaktiver Abfall bei dem pyrochemischen Prozeß (AIROX-Prozeß) anfällt und damit eine zusätzliche Entlastung der Kosten eintritt. Die nachfolgende grobe Analyse der anfallenden Spaltprodukte wird eine genauere Aussage ermöglichen, es wird jedenfalls erwartet, daß ein großer Teil der Spaltprodukte und Aktiniden bei Rezyklierung zu stabilen Elementen umgewandelt oder z. T. gespalten werden (Transuranelemente). Die Rezyklierung des abgebrannten Brennstoffs verlangt ein "remote handling". Diese Arbeitsweise ist aber beim Reprocessing und beim Umgang mit hochradioaktiven Abfällen sowieso erforderlich. Außerdem erfolgt die Herstellung plutoniumhaltiger Brennelemente in Gloveboxen und weitgehend automatisiert, so daß man mit gewisser Berechtigung annehmen darf, daß ein Brennstoffkreislauf bei Schnellen Reaktoren mit mehrmaliger Rezyklierung der Spaltprodukte (d. h. mit AIROX-Prozeß) kostengünstiger wird als der konventionelle Brennstoffzyklus bei den thermischen Reaktoren /9/.

Zur Abschätzung der Investitionskosten von Chemieanlagen benutzt man die sogenannte "functional units" Methode, wobei man aus Analogiebeispielen und empirischen Werten ausgeht. In /13/ wird z. B. als Berechnungsformel angeführt:

$$C_2 = \frac{0,075}{A} \sum_1^{\rho} (N \cdot F_m \cdot F_p \cdot F_t \cdot R)$$

Darin ist:

- C_2 = Kapitalkosten in Währungseinheiten
- ρ = Anzahl der Haupt- und Nebenproduktionseinheiten
- R = Verhältnis der Neben- zu den Hauptproduktions-einheiten
- N = Anzahl der Prozeßschritte in den Produktions-einheiten
- F_m = Materialfaktor
- F_p = Druckfaktor
- F_t = Temperaturfaktor
- A = Anlagengrößenfaktor

Für die Faktoren werden Zahlenwerte angegeben. Diese Berechnungsformel soll nur einen allgemeinen Hinweis für das Vorgehen bei Kostenschätzungen für Anlagen geben. Die Kostenschätzung einer Refabrikationsanlage mit dem AIROX-Prozeß, d. h. unter "remote handling", werden noch komplexer und unsicherer als bei neuartigen Chemieanlagen, bei denen man immerhin auf gewisse Erfahrungswerte zurückgreifen kann. Das wird bestätigt auch durch die Angaben in einer der letzten Arbeiten über die wirtschaftliche Betrachtung zum Kernbrennstoffkreislauf /14/. Darin wird festgestellt, daß trotz der im Betrieb befindlichen Prototypanlagen für die Herstellung von Plutonium-Brennelementen keine repräsentativen Fertigungskosten angegeben werden können. Das gleiche wäre für den Brennstoffkreislauf von Thoriumhochtemperaturreaktoren zu sagen. Auch hier wird eine "heiße" Refabrikation, d. h. die Herstellung von Kernbrennstoffen und Brennelementen aus dem erbrüteten U-233 notwendig /15/. Neben dem U-233 bildet sich im Thoriumreaktor auch das Uranisotop-232, in dessen Zerfallskette sehr energiereiche Gamma-Quanten bis zu 2,6 MeV auftreten, so daß eine Refabrikation des Urans und des Thoriums nur unter starker

Strahlenabschirmung durchführbar ist. Die Abschirmdicke wird in der Größenordnung von 1 bis 1,5 m Normalbeton bzw. 18 bis 25 cm Blei sein /16/. Die Probleme der fernbedienbaren Refabrikationen, die ausschließlich maschinenbaulicher und verfahrenstechnischer Art sind, werden seit etwa fünf Jahren in USA und zum Teil in KFA-Jülich bearbeitet /15/.

Eine vergleichende Kostenbetrachtung bei Rezyklierung der Spaltprodukte in Brütern liegt in der Literatur nicht vor. Bei einer solchen vergleichenden Betrachtung müßte der Brutverlust dem Gewinn durch verringerte Endlagerungskosten gegenübergestellt werden. Hier sei ausdrücklich darauf hingewiesen, daß die Kostenanalysen schwierig und unsicher sind und daher endgültige Aussagen nur auf Grund von Betriebserfahrungen möglich wären.

3.5 Die Spaltprodukte bei dem Rezyklierungsprozeß

Von den Spaltprodukten werden mit dem AIROX-Prozeß entfernt /9, 17/:

Elemente	% der Abtrennung
Kr, Xe, Cs, J	99
Ru	90
Tc, Cd, In	50
Mo, Nb	2

Die Abtrennung der Edelgase mit dem Oxidation-Reduktion-Prozeß (AIROX) ist plausibel. Bei den anderen Spaltprodukten findet man keine Angaben über den Abtrennungsvorgang. Bei Jod darf man aber annehmen, daß es weitgehend elementar abgetrennt wird, da die anderen Spaltprodukte in Anwesenheit von Sauerstoff bei höheren Temperaturen stabile Oxide bilden. Cäsium könnte z. T. als Oxid, aber mit Sicherheit als Metall abdampfen. Die Cäsiumoxide haben relativ niedrige Schmelzpunkte bzw. sie zersetzen sich. Cs_2O zersetzt sich bei $400^{\circ}C$, der Schmelzpunkt unter Stickstoff ist bei $490^{\circ}C$ festgestellt. Cs_2O_2 (Peroxid) hat einen Schmelzpunkt von $400^{\circ}C$ und gibt Sauerstoff bei $650^{\circ}C$ ab. Bei Cs_2O_3 ist ein

Schmelzpunkt von 400°C angegeben. Da die Bildungsenergie von Cäsiumoxid bei höherer Temperatur (etwa ab 330°C) niedriger ist als vom Wasser, dürfte das Cäsium beim Reduktionsvorgang mit H_2 (600°C) als Metall von Brennstoffen abdampfen, um bei tieferen Temperaturen wieder zu oxidieren. Der Siedepunkt vom metallischen Cäsium liegt bei 690°C . Die teilweise Abtrennung von Technetium, Kadmium und Indium läßt sich ebenfalls mit teilweiser Verdampfung von Oxid bzw. Metall erklären. Der Siedepunkt von Cd liegt bei 767°C . Das Indiums sesquioxid, In_2O_3 ist bei 850°C flüchtig, und das In_2O (Suboxid) sublimiert bei $565 - 700^{\circ}\text{C}$ im Vakuum. Die Rutheniumabtrennung erfolgt über das leichtflüchtige Tetroxid RuO_4 . Die Oxidation des Metalls zu RuO_4 findet im Sauerstoffstrom bei $700 - 800^{\circ}\text{C}$ statt /18/. Die Bildung des RuO_4 ist sowohl zur Reindarstellung des Metalls wie zum Nachweis geeignet. Durch die stark unterschiedlichen chemischen Eigenschaften dieser durch den AIROX-Prozeß abgetrennten Elemente (Edelgas, Halogen, Edelmetall, niedrigsiedendes Schwermetall (Cd)) wäre eine Einzelabtrennung möglich und somit eine spezifische Behandlung dieser radioaktiven Abfälle gewährleistet. Die Behandlung der Spaltprodukte sollte jedenfalls dazu führen, daß sie kein Sicherheitsfaktor darstellen. Die Nachzerfallswärme jener radioaktiven Spaltprodukte, die sich bei der Rezyklierung nicht in stabile Isotope überführen lassen, sollte durch technische Verfahren ausgenutzt werden.

4. Nukleares Verhalten eines Reaktors bei mehrfach rezykliertem Brennstoff, Spaltprodukten und Aktiniden

Um eine Bewertung vornehmen zu können, wie sich ein Reaktorsystem bei mehrfacher Rezyklierung der Spaltprodukte und der Transaktiniden vor allem im Vergleich zu den zur Zeit üblichen Systemen verhält, sollen hier einige integrale Abschätzungen zu folgenden Problemkreisen gemacht werden:

Neutronenökonomie, Massenbilanzen für Spaltstoff, Brutstoff und Spaltprodukte, langfristige Veränderung der Aktivität des Kerninventars, Veränderung der Thermo- und Fluidodynamik des Kernes und Vergleich der Sicherheitsaspekte.

4.1 Neutronenökonomie

Bei mehrfacher Rezyklierung von Spaltprodukten und Transaktiniden muß aus Gründen der Erhaltung der Volumenbilanz des Kerninventars Brutstoff (z. B. U-238) wegen der Spaltprodukte entfernt werden, da sich die Spaltprodukte im Brennstoff anreichern. Dies hat folgende Auswirkung:

- Durch die Erhöhung des parasitären Einfangs in den Spaltprodukten wird die Kritikalität des Systems verringert, was durch eine Erhöhung des Spaltstoffanteils kompensiert werden muß.
- Durch den Austausch von Brutstoff (z. B. U-238) durch Spaltprodukte, wird der Bruteinfang in den Brennelementen des Kernes im Verhältnis Einfangrate im Brutstoff zu Einfangrate in den Spaltprodukten verringert.

4.1.1 Kritikalität

Die Menge an Spaltprodukten (primären und abgebrannten), die nach n Rezyklierungen im Brennstoff vorhanden ist, läßt sich aus folgenden einfachen Beziehungen ableiten:

Spaltungsäquivalent: 1,06 g Pu - gespalten = 1 MWd
Massenerhaltung: 1 kg Pu - gespalten \approx 1 kg Spaltprodukte
(Masse der Neutronen vernachlässigt)
Zielabbrand des Brennstoffes: A in MWd/kgU
Anteil der rezyklierten Spaltstoffe: ϵ

Hieraus folgt für den Massenanteil μ_{FP} der Spaltprodukte im Brennstoff nach n Rezyklierungen.

$$\mu_{FP} \approx \epsilon \cdot n \cdot 1,06 \cdot 10^{-3} \cdot A \text{ in } \frac{\text{kg Spaltprodukte}}{\text{kg U}}$$

Zur Berechnung der erforderlichen Spaltstoffzugabe wurde ausgehend von der Eingruppenreaktorgleichung folgende Beziehung für die Änderung des Spaltproduktmassenanteils hergeleitet:

$$\frac{d\mu_{FP}}{d\mu_{Fiss}} = \frac{\rho_{Fiss}}{\rho_{FP}} \cdot \frac{(\overline{\nu\sigma}_f^{Fert} - \overline{\sigma}_a^{Fert}) + \overline{\sigma}_c^{FP} \frac{\rho_{FP}}{\rho_{Fert}}}{\frac{\rho_{Fiss}}{Fert} \cdot (\overline{\nu\sigma}_f^{Fiss} - \overline{\sigma}_a^{Fiss}) - (\overline{\nu\sigma}_f^{Fert} - \overline{\sigma}_a^{Fert})}$$

Es bedeuten:

Index Fiss = Spaltstoff

Index Fert. = Brutstoff

Index FP = Spaltproduktpaar

μ = Massenanteile in kg/kg

ρ = die theoretische Dichte der jeweiligen Oxide

σ_c = der Einfangquerschnitt für Neutronen in barn

σ_f = der Spaltquerschnitt in barn

$\sigma_a = \sigma_c + \sigma_f$ = der Absorptionsquerschnitt in barn

ν = Spaltneutronenausbeute

Querstrich = Wichtung über Neutronenspektrum

In Tabelle 3 sind die zur Berechnung benötigten Daten sowie die Ergebnisse zusammengestellt. Bei der Berechnung wurde der Thermische Reaktor mit U-235, der Schnelle Brüter mit Pu-239 als Spaltstoff betrieben angenommen. Die Rechnungen, die für den Thermischen Reaktor mit einem Zielabbrand von $A = 15$ MWd/kgU und $n = 9$ Rezyklierungszyklen, für den Schnellen Brüter mit $A = 80$ MWd/kgU und $n = 6$ durchgeführt wurden, zeigen:

Thermischer Reaktor:

- 8,6 Gewichtsprozent Spaltprodukte befinden sich im Brennstoff

- Die erforderliche Spaltstoffzugabe zur Kompensation der parasitären Neutroneneinfänge beträgt ca. $4,7 \cdot 10^{-3}$ kg Spaltstoff/kg Brennstoff. Bei einer mittleren Ausgangsanreicherung von ca. 3% entspricht dies einer Erhöhung des Spaltstoffanteils um ca. 15 %.

Dieses unter sehr vereinfachenden Annahmen gefundene Ergebnis wird durch Arbeiten, die von L. J. Colby et al. /9/ im Zusammenhang mit dem AIROX-Wiederaufarbeitungsprozeß durchgeführt wurden, gestützt. Dort wurde für ein Abbrand von ebenfalls 15 MWd/kg U und 9-facher Rezyklierung aller beim AIROX-Prozeß nicht abgetrennter Spaltprodukte für die Menge des zusätzlichen Spaltstoffes der Wert: $2,65 \cdot 10^{-3}$ kg Spaltstoff/kg Brennstoff gefunden.

Schneller Brüter:

- ca. 31 Gewichtsprozent Spaltprodukte im Brennstoff
- Zur Kompensation der Spaltproduktzugabe wären $0,688 \cdot 10^{-3}$ kg Spaltstoff/kg Brennstoff dem Brennstoff zuzufügen. Dies würde bei einer mittleren Ausgangsanreicherung des Spaltstoffes von ca. 14 % nach einer 6-fachen Rezyklierung aller entstandenen Spaltprodukte eine zusätzliche Erhöhung des Spaltstoffanteils um ca. 0,5 % bedeuten.

Letzteres Ergebnis kann, da die Einfangquerschnitte von Brutmaterial und Spaltprodukten sehr nahe beieinander liegen und die Unsicherheit für den σ_C^{FP} -Wert relativ groß ist, nur qualitativ verwendet werden: Bei einem Schnellen Brüter ist die mehrfache Rezyklierung von Spaltprodukten nur von geringem Einfluß auf die Spaltstoffanreicherung!

4.1.2 Konversions- und Bruterate

Beim Ersetzen von Brutstoff (z. B. U-238) durch Spaltprodukte ändert sich das Verhältnis von Bruteinfang im Brutstoff zum parasitären Einfang von Neutronen in den Spaltprodukten. Dadurch wird die Konversionsrate beim thermischen Reaktor bzw. die Bruterate beim Schnellen Brüter verringert. Im Rahmen dieses Berichtes kann hierfür nur eine qualitative Abschätzung gemacht

werden, da eine genaue Beschreibung aufwendige Multigruppenrechnungen erfordern würde. Für die Abschätzung legen wir zugrunde, daß die Spaltproduktrezyklisierung nur den Kern betrifft (d. h. beim Schnellen Brüter nicht den Brutmantel). In diesem Fall gilt in erster Näherung für die Konversionsrate im Kern bei Spaltproduktrezyklisierung:

$$CR_{\text{Rezykl}} \approx CR_0 \cdot \frac{\sum_c^{\text{Fert}}}{\sum_c^{\text{Fert}} + \sum_c^{\text{FP}}}$$

wobei

CR_0 = Konversionsrate des Kerns bei konventioneller Behandlung

\sum_c^{Fert} = Makroskopischer Einfangquerschnitt des Bruttstoffes

\sum_c^{FP} = Makroskopischer Einfangquerschnitt der Spaltprodukte

Mit $\sum_c = \mu \cdot \frac{\rho_{\text{Brst}}^L}{\bar{M}} \sigma_c$

L = Loschmidt-Zahl

\bar{M} = Mittelwert des Molekulargewichtes

folgt für CR_{Rezykl}

$$CR_{\text{Rezykl}} \approx CR_0 \cdot \frac{\sigma_c^{\text{Fert}}}{\sigma_c^{\text{Fert}} + \frac{\mu_{\text{FP}}}{\mu_{\text{Fert}}} \cdot \sigma_c^{\text{FP}}}$$

wobei: μ_{Fert} = Gewichtsanteil des Bruttstoffes im Brennstoff bei Rezyklisierung

$$\mu_{\text{Fert}} \approx \mu_{\text{Fert}}^0 - \frac{\rho_{\text{Fert}}}{\rho_{\text{FP}}} \cdot \mu_{\text{FP}}$$

woraus folgt:

$$CR_{\text{Rezykl}} \approx CR_0 \frac{\sigma_c^{\text{Fert}}}{\sigma_c^{\text{Fert}} + \frac{1}{\frac{\mu_{\text{Fert}}^0 - \frac{\rho_{\text{Fert}}}{\rho_{\text{FP}}}}{\mu_{\text{FP}}}} \cdot \sigma_c^{\text{FP}}}$$

$$\approx CR_0 \frac{1}{1 + \frac{1}{\frac{\mu_{\text{Fert}}^0 - \frac{\rho_{\text{Fert}}}{\rho_{\text{FP}}}}{\mu_{\text{FP}}}} \cdot \frac{\sigma_c^{\text{FP}}}{\sigma_c^{\text{Fert}}}}$$

Die Konsequenzen einer mehrfachen Spaltproduktrezyklisierung auf die Änderung der Konversionsrate sind ebenfalls in Tabelle 3 in Form von CR_{Rezykl}/CR_0 eingetragen. Aus diesen ersten abschätzenden Berechnungen ist zu ersehen, daß die Konversionsrate sowohl beim thermischen Reaktor, als auch im Kern eines Schnellen Brütters beachtlich verringert würde. Diese Verringerung der Gesamtbrutrate eines Schnellen Brütters stellt eine Grenze für die Anzahl der Rezyklisierungen dar, könnte jedoch durch eine geschickte Kombination von Hochbrüter und Schnellem Brenner erweitert werden.

Eine Verbesserung der Konversionsrate ließe sich erreichen, wenn es gelänge einige der stabilen bzw. kurzlebigen Spaltprodukte, die mit hoher Ausbeute anfallen, wie z. B. Mo, Ru, Ba und Ce, aus dem Brennstoff zu entfernen, wie das für Molybdän vorher bereits diskutiert wurde. Für die anderen stabilen Spaltprodukte mit hoher Ausbeute müßten spezielle Abtrennmethoden erarbeitet werden.

In dem vorliegenden Beispiel eines Schnellen Natrium Brütters von 1000 MWe1, bei dem man nach /36,37/ mit einer Aufteilung von interner zu externer Konversionsrate von 2.3:1 zu rechnen hat, müßte der Brüter mit der Erstladung (ohne rezyklierte Spaltprodukte) eine Gesamtbrutrate von 1.4 bzw. 1.3 bei Abtrennung der Molybdännuklide aufweisen, um an Ende einer 6-fachen Rezyklisierung gerade noch zu brüten.

4.2 Das Abbrandverhalten von Spaltprodukten und das Aktivitätspotential eines Reaktorkernes im Gleichgewichtszustand

Die bei der Spaltung erzeugten Spaltprodukte sind vorwiegend nicht stabile Isotope und daher radioaktiv. Die Halbwertszeiten für den Zerfall dieser Isotope zu stabilen Isotopen sind für einige Isotope, wie z. B. Strontium 90, welches mit einer Halbwertszeit von 28a über ein kurzlebiges Zwischenprodukt in das stabile Isotop Zr-90 übergeht, so groß, daß die Aktivität dieser Isotope auch nach längerer Abklingzeit (ca. 1 Jahr im üblichen Brennstoffkreislauf) nicht unter die zulässigen Grenzen abgesunken ist. Da man aus kommerziellen Gründen bislang eine aktive Brennelementfabrikation vermeiden wollte, blieb als Lösung nur die langfristige Endlagerung dieser aktiven Spaltprodukte.

Um das Problem der Endlagerung dieser Spaltprodukte zu entschärfen, wurde deshalb schon früh das Abbrennen dieser langlebigen Spaltprodukte in eigens hierfür vorgesehene Reaktoren (Bürner) vorgeschlagen /19, 20/. Der Grundgedanke hierbei ist, die primär entstandenen Spaltprodukte durch Neutroneneinfang in solche aktiven Isotope zu überführen, die mit kurzen Halbwertszeiten in stabile Isotope zerfallen.

In Abb. 6 sind für die primären Spaltprodukte Cs-135/137, Sr-90 und Tc-99 solche Transmutationsprozesse aufgetragen.

Ähnliche Überlegungen wurden für die durch Einfangreaktionen in Plutonium entstehenden Transplutoniumelemente angestellt /2, 22/. Dort sind es nach Haug /2/ vor allem die Elemente Americium und Curium, die mit Halbwertszeiten, die z. B. Am-243 bei 7400a und bei Cm-247 bei $1,56 \cdot 10^7$ a liegen, zur Langzeitproblematik der Endlagerung beitragen, wie dies in Abb. 7 und 8 zu erkennen ist. Für das Abbrennen dieser Transplutoniumelemente wird in der Literatur sowohl der thermische Reaktor /21/ als auch der Schnelle Brüter /20, 22/ vorgeschlagen.

Der Flaschenhals bei diesen Umwandlungsprozessen ist meist die Umwandlung der primären Spaltprodukte, die entsprechend der Einfangrate $R_E = \bar{\phi} \cdot \bar{\sigma}_e^j \cdot N_{FP}^j$ abläuft. Sieht man von dem Einsatz spezieller Reaktoren zum Abbrennen der Spaltprodukte ab, so ist festzustellen, daß bei den kommerziellen Leistungsreaktoren der Neutronenfluß eine nahezu konstante Größe darstellt, die bei den Leichtwasserreaktoren bei ca. $5 \cdot 10^{13}$ $1/\text{cm}^2\text{s}$ und bei Schnellen Brüttern bei ca. $1 \cdot 10^{16}$ $1/\text{cm}^2\text{s}$ liegt. Der Einfangquerschnitt σ_e^j ist stark abhängig von dem Energiespektrum der Neutronen. Er ist jedoch innerhalb der Streubreite des Energiespektrums der einzelnen Reaktortypen nahezu konstant. So beträgt der über alle Spaltproduktpaare und das jeweilige Energiespektrum gemittelte Einfangquerschnitt bei den Leichtwasserreaktoren 39 barn und bei den Schnellen Brüttern 0,45 barn.

Will man daher bei einem gegebenen Reaktorsystem die Abbrennrate erhöhen, bliebe im wesentlichen nur der Weg über eine Erhöhung des Inventars N_{FP} der Spaltprodukte. Dies könnte z. B. durch das mehrfache Rezyklieren der Spaltprodukte in den Reaktor erreicht werden. Das zeitliche Verhalten bei der Bildung und dem Abbrennen von Spaltprodukten läßt sich mit Hilfe folgender Bilanz einfach darstellen, wobei eine stetige Rezyklierung der Spaltprodukte angenommen wird.

Produktion durch Spaltung:

$$\dot{N}_{FP} = \dot{N}_{\text{Fiss-gesp.}} \cdot Y_j = \frac{1,06 \cdot 10^{-6}}{8,64 \cdot 10^4} \cdot P_{th} \cdot \frac{L}{A} \cdot Y_j$$

$$\dot{N}_{FP}^{\text{Prod.}} \approx 3,092 \cdot 10^{10} \cdot P_{th} \cdot Y_j \quad (\text{s}^{-1})$$

Vernichtung durch Einfang: $\dot{N}_{FP}^C = \bar{\phi} \cdot \bar{\sigma}_c \cdot N_{FP} \quad (\text{s}^{-1})$

Vernichtung durch Zerfall: $\dot{N}_{FP}^D = \lambda_j \cdot N_{FP}^j \quad (\text{s}^{-1})$

Für den gesamten Reaktorkern gilt dann die Differentialgleichung:

$$\frac{dN_{FP}^j}{dt} = 3,092 \cdot 10^{10} \cdot P_{th} \cdot Y_j - \bar{\phi} \cdot \sigma_c \cdot N_{FP}^j - \lambda_j \cdot N_{FP}^j$$

Als Lösung ergibt sich:

$$N_{FP, \text{Reaktor}}^j = \frac{3,092 \cdot 10^{10} \cdot P_{th}}{\bar{\phi} \bar{\sigma}_c + \lambda_j} \{1 - \exp - (\bar{\phi} \bar{\sigma}_c + \lambda_j) \cdot t\} \cdot Y_j$$

Für den asymptotischen Zustand beträgt die Teilchenzahl der primären Spaltprodukte im Reaktorkern

$$N_{FP, \text{Reaktor}}^{j\infty} = \frac{3,092 \cdot 10^{10} \cdot P_{th}}{\bar{\phi} \bar{\sigma}_c + \lambda_j} \cdot Y_j$$

und die Zeit, um an den asymptotischen Zustand bis auf 1/e heranzukommen

$$t_{1/e} = \frac{1}{\bar{\phi} \bar{\sigma}_c + \lambda_j} \quad (\text{s})$$

Es bedeuten:

Y_j	=	Spaltausbeute für das Spaltprodukt j	
$\dot{N}_{FP}^{Prod.}$	=	Produktionsrate für das Spaltprodukt j	(s ⁻¹)
$\dot{N}_{Fiss-gesp.}$	=	Die Spaltrate des Spaltstoffes	(s ⁻¹)
$\left. \begin{array}{l} \dot{N}_{FP}^C \\ \dot{N}_{FP}^D \end{array} \right\}$	=	Vernichtungsrate des Spaltisotops N_{FP}^j durch Einfang und radioaktiven Zerfall	(s ⁻¹)
λ_j	=	Zerfallskonstante des Isotops N_{FP}^j	(s ⁻¹)
$\bar{\phi}$	=	Spektrums- und volumengemittelter Neutronenfluß	(1/cm ² s)
σ_c	=	Spektrumsgewichteter Einfangquerschnitt des Spaltproduktes j für Neutronen	(barn)
N_{FP}^j	=	Die zeitabhängige Zahl der Spaltprodukte im Reaktor	
P_{th}	=	Die thermische Leistung des Reaktors	(W)

In Tab. 4 sind die Ergebnisse dieser Rechnungen dargestellt. Für einen Thermischen Reaktor und einen Schnellen Brüter von jeweils 1000 MW elektrischer Leistung sind an den Beispielen Rb-87, Tc-99, J-129 sowie für einen Mittelwert über alle Spaltprodukte Teilchenzahlen für den Gleichgewichtszustand berechnet, d.h. für den Zustand, bei dem sich die Spaltprodukterzeugung und Vernichtung durch Abbrennen gerade die Waage halten. Zur Bewertung, bei welchen Spaltprodukten ein Abbrennen in kommerziellen Reaktoren sinnvoll ist, sind in der Tabelle ferner die Relaxationszeit $t_{1/e}$ zum Erreichen des Gleichgewichtszustandes, sowie das Verhältnis N_j^∞/N_j^A angegeben. Hierbei ist N_j^∞ die Teilchenzahl der Spaltprodukte im Reaktor im Gleichgewichtszustand bei kontinuierlicher Rezyklierung und Abbrennen, N_j^A die Teilchenzahl im Reaktor bei einfachem Zielabbrand ohne Abbrennen der Spaltprodukte. Dieser Zielabbrand wurde für den thermischen Reaktor zu 30 MWd/kg Brennstoff für den Schnellen Brüter zu 80 MWd/kg Brennstoff angesetzt. Bei den angeführten Beispielen erscheint für Tc-99 und J-129 die Relaxationszeit $t_{1/e}$ kurz genug, um ein Abbrennen dieser Isotope in kommerziellen Reaktoren zu ermöglichen. Ein Vergleich dieser Zeiten für den Thermischen Reaktor und den Schnellen Brüter zeigt, daß beim Rezyklieren von Spaltprodukten in "kommerziellen" Reaktoren der Schnelle Brüter ein höheres Potential zum Abbrennen der obigen Spaltproduktisotope besitzt.

4.3 Thermodynamische Eigenschaften des Kerns

Die wichtigste Größe, die bei einer vergleichenden Betrachtung von konventionellem Betrieb und Betrieb mit Spaltproduktrezyklisierung zu beachten ist, ist die Stableistung .

$$\chi = 4\pi \int_{T_a}^{T_i} \lambda(T) dT \quad (\text{W/m})$$

wobei: T_i = die Zentraltemperatur (K)
 T_a = die Temperatur an der Oberfläche des Brennstabs (K)
 $\lambda(T)$ = die temperaturabhängige Wärmeleitfähigkeit des Brennstoffes in $\text{W/m}\cdot\text{grd}$.

Die Annahme der homogen verteilten Leistungsdichte ist sowohl für den Schnellen Brüter, als auch in 1. Näherung für den thermischen Reaktor bei geringer Anreicherung erfüllt. Für die Zentraltemperatur gilt, daß sie unter der Schmelztemperatur des Brennstoffes liegen muß: $T_i < T_{\text{MP};\text{Brst}}$.

Das bedeutet, daß die Stableistung auch im Fall der Spaltproduktrezyklisierung nur von den Materialeigenschaften des Brennstoffes abhängt. Wie in Kapitel 3 gezeigt wurde, wird durch das Rezyklisieren der nichtflüchtigen Spaltstoffe, die vorwiegend Oxide mit Eigenschaften von Hochtemperaturwerkstoffen bilden, der Schmelzpunkt des Brennstoffes nur geringfügig herunter-, die Wärmeleitfähigkeit jedoch eher heraufgesetzt.

In Ermangelung exakter Materialdaten können wir in erster Näherung voraussetzen, daß die Stableistung beim Rezyklisieren von Spaltprodukten konstant bleibt. Mit der Größe der Stableistung ist bei unveränderter Kerngeometrie die Kühlungseigenschaften des Kernes festgelegt. Abweichungen sind demnach bei unveränderter Stableistung nur über die geringfügigen Änderungen der Neutronenleckage aus dem Reaktorkern und damit der Änderungen des Leistungsformfaktors möglich.

Das bedeutet, daß die Kühlung eines Reaktorkernes bei Spaltproduktrezyklisierung sich nur geringfügig von der Kühlung beim konventionellen Betrieb unterscheiden wird.

4.4 Sicherheitsaspekte

4.4.1 Der Doppler-Effekt

Im Hinblick auf die Änderung der Brennstoffzusammensetzung durch den Austausch von Brutstoff gegen Spaltprodukte ist die Größe des Doppler-Effektes der wichtigste Sicherheitsfaktor. Der Doppler-Effekt wird durch die Verbreiterung der Resonanzwirkungsquerschnitte im Brut- als auch im Spaltstoff bei Temperaturerhöhung bewirkt. Bei homogener Vermischung von Spalt- und Brutstoff ist er prompt wirksam und bis etwa zu einer Spaltstoffanreicherung von 50 % (bei $\text{PuO}_2\text{-UO}_2$ -Brennstoff) negativ /27/. Die Auswirkung des Doppler-Effektes auf ein Reaktorsystem wird meist durch den Dopplerkoeffizienten der Reaktivität

$$DC = \frac{1}{K} \cdot \frac{dK}{dT} = \frac{C}{T^\gamma}$$

beschrieben, wo K die Reaktivität, T die Temperatur in K und C eine Konstante (Dopplerkonstante) sind.

Der Exponent γ gibt die Temperaturabhängigkeit des Dopplerkoeffizienten DC an. Er kann, je nach Reaktorsystem zwischen 1/2 und 3/2 liegen.

Der Dopplerkoeffizient bei 900 K beträgt z. B. bei einem 1000 MWe SNR

$$DC = -0,791 \cdot 10^{-5} \text{ K}^{-1}$$

Nach Fröhner /28/ weisen die meisten der rezyklierten Spaltprodukte ausgeprägte Resonanzquerschnittsverläufe für den Neutroneneinfang auf. Das bedeutet, daß eine mit dem Entfernen von Brutstoff wie z. B. U-238 verbundene Verringerung des Dopplerkoeffizienten durch die Spaltprodukte mit ihren Resonanzstrukturen in den Wirkungsquerschnitten kompensiert würde, so daß auch bei der Rezyklierung von Spaltprodukten Dopplerkoeffizienten in ähnlicher Größe zu erwarten sind. Eine Rezyklierung von Spaltprodukten würde also im Hinblick auf den prompt wirkenden Doppler-Effekt die inhärente Sicherheit des Systems nicht wesentlich verändern.

Um präzisere Aussagen zur Größe des Doppler-Effektes bei Spaltproduktrezyklisierung zu erhalten, wäre zunächst eine genaue Kenntnis der energieabhängigen Wirkungsquerschnitte der Spaltprodukte (Resonanzen) erforderlich. Hieraus wäre dann ein Multigruppenquerschnittssatz zu erstellen und der Doppler-Effekt mit dem im Karlsruher Nuklearen Programm System KAPROS /29/ enthaltenen Doppler-Programm von Fröhlich /30/ zu berechnen.

4.4.2 Das Spaltproduktinventar als Gefährdungspotential

Bei den Überlegungen zu den Konsequenzen von schweren Reaktorstörfällen, z. B. dem Kühlmittelverluststörfall von Druckwasserreaktoren, wird davon ausgegangen, daß nur ein geringer Teil der nichtflüchtigen Spaltprodukte aus dem Brennstab freigesetzt wird /31/. Das bedeutet, daß bei den Betrachtungen zur Umgebungsbelastung nach einem Unfall vor allem die flüchtigen Spaltprodukte ins Gewicht fallen. Bei dem für eine Spaltproduktrezyklisierung vorgeschlagenen Wiederaufarbeitungsprozeß werden jedoch wie in Kapitel 3 behandelt, die flüchtigen Spaltprodukte nahezu vollständig abgetrennt, so daß auch nach mehrfacher Rezyklisierung das Inventar an flüchtigen Spaltprodukten im Vergleich zum konventionellen Brennstoffkreislauf nicht erhöht würde. Bei mehrfacher Rezyklisierung würde also das Gefährdungspotential entsprechend der Erhöhung des Inventars an den wenig wirksamen, nicht flüchtigen Spaltprodukten nur um ca. 4 % erhöht werden.

Das Problem der Abfuhr der Nachzerfallswärme bei einem Kühlmittelstörfall im Reaktor wird bei mehrfacher Rezyklisierung der Spaltprodukte nicht wesentlich vergrößert, vor allem was die hohe Nachzerfallswärme kurz nach dem Störfall betrifft, welche die größte Anforderung an die Notkühlssysteme stellt. Wie aus Abb. 9 zu ersehen ist, würde das Verhältnis von Zerfallsleistung zu Reaktornennleistung bei unendlich langer Bestrahlungszeit um höchstens 0,25 % der Nennleistung erhöht werden.

5. Zusammenfassung und Schlußfolgerung

Das Verfahren der wiederholten Rezyklierung von Spaltprodukten wurde vorgestellt. Um einen Vergleich mit dem konventionellen Brennstoffkreislauf zu erhalten, wurden Abschätzungen und qualitative Berechnungen zur Chemie, Technologie, Neutronenökonomie und Sicherheitsaspekten dieses Brennstoffkreislaufes durchgeführt. Infolge der hohen Anforderungen an die Sicherheit der Reaktoren konnte für alle Überlegungen folgende Prämisse zugrundegelegt werden:

"Der Reaktor selbst bietet sich für ein Konzept zur sicheren "Lagerung" von Spaltprodukten an!"

Aus den Abschätzungen und Berechnungen für dieses Konzept ergeben sich folgende Aussagen:

- Die Technologie der Spaltproduktrezyklierung erscheint sowohl vom Reprocessing als auch von der Refabrikation möglich.
- Mit der Rezyklierung der nichtflüchtigen Spaltprodukte lassen sich die Transurane Americium und Curium ebenfalls rezyklieren, so daß die durch sie verursachte Langzeitproblematik der Endlagerung entschärft werden kann.
- Das bei diesem Verfahren getrennt anfallende Jodisotopengemisch J-129/131 könnte durch stetige Rezyklierung in besondere Abbrennkanäle kommerzieller Reaktoren zwischengelagert und zu stabilen Xenonisotopen umgewandelt werden, wobei das entstehende Xenongas kontinuierlich abgezogen werden könnte.
- Wie die Ergebnisse der Rechnungen zum Abbrennen von Spaltprodukten zeigen, wird bei dem vorliegenden Verfahren eine Reduzierung des aktiven Spaltproduktinventars erreicht, wenn die Zeit für die Einstellung des Gleichgewichts zwischen dem Aufbau und der Vernichtung (d. h. Abbrennen und Zerfall) kleiner als die gesamte Standzeit des Brennstoffes im Reaktor bei n-facher Rezyklierung bleibt.

Das bedeutet, daß für kommerzielle Reaktoren ein Abbrennen nur für solche Isotope interessant wird, die für den Fall des thermischen Reaktors (z. B. LWR) einen Einfangquerschnitt $\sigma_c > 25$ barn,

für den Fall des Schnellen Brütters einen Einfangquerschnitt $\sigma_c > 0,3$ bar besitzen. Um eine diesbezügliche Bewertung vornehmen zu können, wäre vor allem eine Kenntnis des Einfangquerschnitts σ_c der aktiven, langlebigen und mit großer Ausbeute bei der Spaltung entstehenden Spaltprodukte Strontium 90, Zirkon 93, Neodym 144 und Samarium 147 erforderlich.

- Eine 9-(LWR) bzw. 6-(SNR) fache Rezyklierung der nichtflüchtigen Spaltprodukte ist auch von Seiten der Neutronenökonomie möglich.
- Ein Brüten wäre zum Beispiel nach 6-facher Rezyklierung der Spaltprodukte dann noch gewährleistet, wenn der verwendete Brüter in der Erstladung eine Gesamtbrutrate von 1.4 bzw. 1.3 bei Abtrennung der Molybdänuklide aufweist.
- Nach Einführung eines solchen Konzeptes wäre der Zeitgewinn zwischen dem 1. Verfahrensschritt - Energieerzeugung im Reaktor - und der endgültigen Endlagerung oder einer thermischen Ausnutzung (Heißwasserreaktor) des verbleibenden, durch Abbrennen reduzierten, radioaktiven Abfalls bei thermischen Reaktoren mit einem Zielabbrand von 30 MWd/kg Brennstoff pro Zyklus ca. 25 Jahre, bei Schnellen Brutreaktoren mit 80 MWd/kg Brennstoff pro Zyklus ca. 20 Jahre. Mit diesem Zeitvorlauf, in dem zusätzlich zum Abbrennen einiger langlebiger Spaltprodukte durch Zerfall kurzlebiger Spaltprodukte im Reaktor bereits eine Aktivitätsverringering eintritt, wird die auf den Abbrand bezogene Wärmeentbindung im Abfall verringert. Damit läßt sich das Volumen des zur Lagerung kommenden radioaktiven Abfalls vermindern.

Aus den Ergebnissen, die aus den Literaturstudien und den eigenen Untersuchungen gewonnen wurden, werden die Möglichkeiten deutlich, welche sich mit der Rezyklierung der Spaltprodukte eröffnen. Es muß jedoch ausdrücklich darauf hingewiesen werden, daß zur praktischen Verwirklichung eines solchen geschlossenen Kernenergiesystems umfangreiche Untersuchungen und technologische Entwicklungen erforderlich sind.

Literatur:

- /1/ H. Dyroff, F. K. Fleischmann, H. Witte: Bericht über die Systemstudie "Radioaktive Abfälle in der Bundesrepublik Deutschland", Reaktortagung Mannheim, 29. März - 1. April 1977, Deutsches Atomforum e. V. (DAtF) und Kerntechnische Gesellschaft im DAtF-Bonn; S. 451.
- /2/ H. O. Haug: Anfall, Beseitigung und relative Toxizität langlebiger Spaltprodukte und Aktiniden in den radioaktiven Abfällen der Kernbrennstoffzyklen. KFK 2022, (Nov. 1975).
- /3/ J. Boetius, H. Rabold: Wiederaufarbeitung bestrahlter Kernbrennstoffe mit nichtwäßrigen Verfahren, Kernenergie, 12 (1969) 41 - 47.
- /4/ F. Baumgärtner und H. Philipp: Die Wiederaufarbeitung von Uran-Plutonium-Kernbrennstoffen, KFK 1046 (1969).
- /5/ L. Burris, jr., K. M. Harmon, G. E. Brand, E. W. Murbach und R. K. Steunenberg: Pyrometallurgical und Pyrochemical Fuel Processing. Third International Conference on the Peaceful Uses of Atomic Energy 1964, Vol.10, S.501, P/251.
- /6/ J. Guon, J. E. Bodine, R. J. Sullivan, F. W. Gandolfo: Low Decontamination Reprocessing Studies on Irradiated Uranium Dioxide Reactor Fuel, NAA-SR-7136 (1962).
- /7/ S. Strausberg, T. E. Luebben: Multicycle Reprocessing and Refabrication Experiments on Simulated UO₂ Fissia Pellets, NAA-SR-7138 (1962).
- /8/ J. E. Campbell and E. M. Sherwood: High-Temperature Materials and Technology, J. Wiley Sons, Inc., New York, 1967.

- /9/ L. J. Colby, jr., K. L. Mattern, H. Pearlman, E. W. Murbach, G. E. Brand: Comparative Fuel Cycle Evaluations, Low Decontamination Pyroprocessing vs. Aqueous Reprocessing Part I. UO₂ Fuel in a Thermal Reactor, NAA-SR-8036 (1963).
- /10/ Gmelins Handbuch der anorganischen Chemie, Transurane Teil A1, II, Die Elemente - Günther Koch -, Springer Verlag, Berlin-Heidelberg-New York 1974.
- /11/ S. M. Stoller, R. B. Richards: Reactor Handbook, Vol. II, Fuel Reprocessing, Interscience Publishers, Inc., New York, 1961.
- /12/ G. Koch: Die chemische Aufarbeitung der bestrahlten Kernbrennstoffe, Chemiker Zeitung 101 (1977) 64 - 91, KFK 2462 (Februar 1977).
- /13/ E. A. Stallworthy: The Viewpoint of a Large Chemical Manufacturing Company, The Chemical Engineer, June 1970, P. 182.
- /14/ H. J. Zech, F. K. Pickert: Wirtschaftliche Betrachtungen zum Kernbrennstoffkreislauf, Chemiker Zeitung, 101 (1977) 9.
- /15/ E. Merz: Brennstoffkreislauf beim gasgekühlten Hochtemperaturreaktor, Chemiker Zeitung 101, (1977) 81.
- /16/ E. Merz, M. Laser, E. Zimmer: Schließung des äußeren Brennstoffkreislaufes von Hochtemperaturreaktoren, Kerntechnik 15 (1973) 249.
- /17/ L. J. Colby, jr.: Ruthenium Removal from Irradiated UO₂ by Reaction with Oxygen to 1300 C, NAA-SR-Memo-6107 (1961).
- /18/ F. P. Treadwell: Kurzes Lehrbuch der analytischen Chemie, Band I, Qualitative Analyse, F. Deuticke-Verlag, Wien, 1930.

- /19/ M. Steinberg, G. Wotzak, and B. Manowitz: "Neutral Burning of Long-Lived Fission Products for Waste Disposal", BNL-8558, (1964).
- /20/ M. Taube: "A Molten Salt Fast Thermal Reactor System with no Waste", EIR-Bericht Nr. 249, 1974.
- /21/ H. C. Claiborne: "Neutron-Induced Transmutation of High-Level Radioactive Waste", ORNL-TM-3964 (1972).
- /22/ P. E. Mc Grath: "Radioactive Waste Management Potentials and Hazards from a Risk Point of View", KFK 1992 (1974).
- /23/ L. P. Abagjan et al.: Gruppenkonstanten schneller und intermediärer Neutronen für die Berechnung von Kernreaktoren, KFK-tr-144 (1963).
- /24/ W. Seelmann-Eggebert, G. Pfennig, H. Münzel: Karlsruher Nuklidkarte, 4. Auflage 1974.
- /25/ K. Wirtz: Lectures on Fast Reactors, GfK (1973).
- /26/ D. Smidt: Reaktortechnik, Bd. 1, Braun Karlsruhe 1971.
- /27/ M. Küchle: private Mitteilungen.
- /28/ F. Fröhner: private Mitteilungen.
- /29/ H. Bachmann, S. Kleinheins: Das Karlsruher Programmsystem KAPRØS, Teil Ia, Kurzes KAPRØS-Benutzerhandbuch, KFK 2317.
- /30/ R. Froehlich: Theorie der Dopplerkoeffizienten schneller Reaktoren unter Berücksichtigung der gegenseitigen Abschirmung der Resonanzen, KFK 367 (1965).
- /31/ L. F. Franzen: "Nuclear Power Plants Safety and Risk", IAEA Interregional Training Course on Nuclear Power Project Planning and Implementation, School of Nuclear Technology, Karlsruhe 1975.

- /32/ G. Lammer: Progress in Fission Product Nuclear Data, INDC (NDS)-86/G+P (1977).
- /33/ S. Glasstone and A. Sesonske: Nuclear Reactor Engineering, D. van Nostrand Comp., New York 1963.
- /34/ Handbook of Chemistry and Physics, 52nd Edition, 1971/72, The Chemical Rubber Comp., Cleveland.
- /35/ G. V. Samsonov, The Oxide Handbook, IFI-Plenum, New York, 1973.
- /36/ E. Kiefhaber: Private Mitteilungen
- /37/ D.E.J. Thornton and K.W. Brindley: Recent commercial fast reactor designs with improved safety features, Proc. of BNES-Conf., Nov. 1977, "Optimisation of Sodium-Cooled Fast Reactors".

Tabelle 1: Physikalische Eigenschaften einiger Spaltprodukte /8, 34, 35/

Element	At. Gew.	Schmpkt. °C	Oxide	Schmpkt. °C	Dichte g/cm ³
Sr	87,62	769	SrO	2415	4,7
Y	88,906	1495	Y ₂ O ₃	2410	4,84
Zr	91,22	1852	ZrO ₂	2715	5,49
Nb	92,906	2468	{ Nb ₂ O ₅	1460	6,27
			{ NbO ₂	2003	
			{ NbO	2377	
Mo	95,94	2610	{ MoO ₃	795	4,5
			{ MoO ₂	1927	6,47
Tc	(99)				
Ru	101,07	2250	RuO ₄	25	3,29
			RuO ₂	zers. 1127	6,97
Rh	102,905	1966	Rh ₂ O ₃	zers. 1100	8,20
Pd	106,4	1552	PdO	870	8,7
Ag	107,868	960,8	AgO	zers. 300	7,143
Ba	137,34	725	BaO	1923	5,72
La	138,905		La ₂ O ₃	2305	6,51
Ce	140,12	795	{ CeO ₂	2600	7,132
			{ Ce ₂ O ₃	1692	6,86
Pr	140,907	935	{ PrO ₂	zers. 500	
			{ Pr ₂ O ₃	2300	
Nd	144,24	1024	Nd ₂ O ₃	2315	7,24
Sm	150,4	1072	Sm ₂ O ₃	2320	8,347
U	238,07	1133	{ UO ₂	2500	10,9
			{ U ₃ O ₈	1300	8,3

Tabelle 2: Vergleich der Brennstoffkosten /9/.

U- und Pu-Rezyklierung 1. Re-enrichment by blending 2. 15.000 MWd/MTU Burnup per cycle in a BWR 3. Costs calculated for equilibrium cycle (5th)			
Charges	AEC Ref Aqueous Plant (mills/kwh)	IDO-Onsite Aqueous Plant (mills/kwh)	AIROX (mills/kwh)
Burnup	0.716	0.716	0.867
Use	0.195	0.197	0.232
Loss	0.032	0.032	0.036
Conversion	0.137	0.137	0.022
Fabrication (Zr-2 Clad)	0.855	0.855	0.942
Shipping	0.202	0.073	0.015
Reprocessing	0.213	0.491	Included in <u>Fabrication</u>
Total	<hr style="width: 50px; margin: 0 auto;"/> 2.35	<hr style="width: 50px; margin: 0 auto;"/> 2.50	2.11

Tabelle 3: Neutronenökonomie von Reaktoren bei mehrfacher Rezyklierung von Spaltprodukten im Gleichgewichtszustand. Daten nach /23, 24, 15/.

Bezeichnung		Symbol	Dim.	Thermischer Reaktor	Schneller Brüter
Zielabbrand		A	$\frac{\text{MWd}}{\text{kgU}}$	15	80
Anteil der rezyklierten Spaltprodukte		ϵ	-	0,6	0,6
Zahl der Rezyklierungen		n	-	9	6
Massenanteil des Bruttostoffes im Brennstoff		μ_{Fert}	-	0,97	0,87
Massenanteile der Spaltprodukte im Brennstoff nach n Zyklen		μ_{FP}	$\frac{\text{kg Spaltprodukt}}{\text{kgU}}$	$8,568 \cdot 10^{-2}$	0,305
Dichte des Spaltstoffoxids		ρ_{Fiss}	$\frac{\text{kg}}{\text{m}^3}$	$11,00 \cdot 10^3$	$11,46 \cdot 10^3$
Dichte von U^{238}O_2		ρ_{Fert}	$\frac{\text{kg}}{\text{m}^3}$	$10,96 \cdot 10^3$	$10,96 \cdot 10^3$
Mittlere Dichte der Spaltprodukttoxide		$\bar{\rho}_{\text{FP}\text{O}_2}$	$\frac{\text{kg}}{\text{m}^3}$	$6,5 \cdot 10^3$	$6,5 \cdot 10^3$
Spektrumsgewichteter Querschnitt	Für Absorption in U-238	$\bar{\sigma}_a^{\text{Fert}}$	10^{-24}cm^2	2,40	0,404
	Für Absorption in Spaltstoff	$\bar{\sigma}_a^{\text{U}235}$	10^{-24}cm^2	618	
		$\bar{\sigma}_a^{\text{Pu}239}$	10^{-24}cm^2		2,481
	Für Empfang gemittelt über alle Spaltprodukt-paare	$\bar{\sigma}_c^{\text{FP}}$	10^{-24}cm^2	38 (u-235)	0,45 (Pu-239)
Spektrumsgewichtetes Produkt aus Spaltneutronenausbeute und Spaltquerschnitt	$\bar{\nu}\sigma_f^{\text{U}235}$	10^{-24}cm^2	1248,7		
	$\bar{\nu}\sigma_f^{\text{Pu}239}$	10^{-24}cm^2			5,878
	$\bar{\nu}\sigma_f^{\text{Fert}}$	10^{-24}cm^2	$\ll \sigma_a^{\text{Fert}}$		0,142
Änderung der Spaltstoffkonzentration mit der Spaltproduktkonzentration		$\frac{d\mu_{\text{Fiss}}}{d\mu_{\text{FP}}}$	-	$5,522 \cdot 10^{-2}$	$2,254 \cdot 10^{-3}$
Spaltstoffzugabe		$\Delta\mu_{\text{Fiss}}$	kgFiss/kgU	$4,731 \cdot 10^{-3}$	$0,687 \cdot 10^{-3}$
Relative Spaltstoffzugabe		$\frac{\Delta\mu_{\text{Fiss}}}{\mu_{\text{Fiss},0}}$	%	15,8 (3 % Ausgangsanreicherung)	0,46 (15 % Ausgangsanreicherung)
Verhältnis der internen Konversionsrate bei n-facher Rezyklierung zur Konversionsrate des frischen Kerns ohne/und mit Abtrennung von Molybdän und Kadmium		$\frac{CR_{\text{Rezykl}}}{CR_0}$	-	0,27 / 0,29	0,59 / 0,70

Bezeichnung	Symbol	Dim.	Thermischer Reaktor (Spaltstoff: U-235)				Schneller Brüter (Spaltstoff: Pu-239)			
			Mittelwert über alle Spaltprod.	Rb-87	Tc-99	J-129	Mittelwert über alle Spaltprod.	Rb-87	Tc-99	J-129
Thermische Leistung	P_{th}	W	$3,5 \times 10^9$				$2,5 \times 10^9$			
Zielabbrand für einen Zyklus	A	$\frac{MWd}{kg}$	30				80			
Bei Zielabbrand gebildete Spaltproduktisotope im Kern	N_j^A	-	$8,37 \times 10^{27} \times Y_j$				$4,40 \times 10^{27} \times Y_j$			
Volumen- und Spektrumsgewichteter Neutronenfluß	$\bar{\phi}$	$cm^{-2} s^{-1}$	5×10^{13}				$1,0 \times 10^{16}$			
Zerfallskonstante	λ	s^{-1}	-	$6,75 \cdot 10^{-19}$	$1,51 \cdot 10^{-15}$	$2,02 \cdot 10^{-15}$	-	$6,75 \cdot 10^{-19}$	$1,51 \cdot 10^{-15}$	$2,02 \cdot 10^{-15}$
Spektrumsgewichteter Einfangsquerschnitt nach	$\bar{\sigma}_c$	$10^{-24} cm^2$	5,0	0,12	19,0	27	0,454	0,0135	0,274	0,181
	$\bar{\phi} \bar{\sigma}_c$	s^{-1}	$2,5 \cdot 10^{-10}$	$6,0 \cdot 10^{-12}$	$9,5 \cdot 10^{-10}$	$1,35 \cdot 10^{-9}$	$4,54 \cdot 10^{-10}$	$1,35 \cdot 10^{-10}$	$2,74 \cdot 10^{-9}$	$1,81 \cdot 10^{-9}$
Asymptotische Teilchenzahl der Spaltproduktisotope j	N_j^∞		$4,33 \cdot 10^{29} Y_j$	$1,80 \cdot 10^{31} Y_j$	$1,14 \cdot 10^{29} Y_j$	$8,02 \cdot 10^{28} Y_j$	$1,7 \cdot 10^{28} Y_j$	$5,73 \cdot 10^{29} Y_j$	$2,82 \cdot 10^{28} Y_j$	$4,27 \cdot 10^{28} Y_j$
Relaxationszeit	$t_{1/e}$	a	126,8	5285	33,4	23,5	6,98	234,9	11,57	17,52
Verhältnis N_j^s / N_j^A		-	51,7	2150	13,6	9,58	3,86	130,2	6,41	9,70

Tabelle 4

Abbrennen von Spaltprodukten in einem Thermischen Reaktor (LWR) und einem Schnellen Brüter. Y_j ist dabei die Ausbeute des Spaltproduktisotops j, Daten nach /24, 32/.

URANERZ

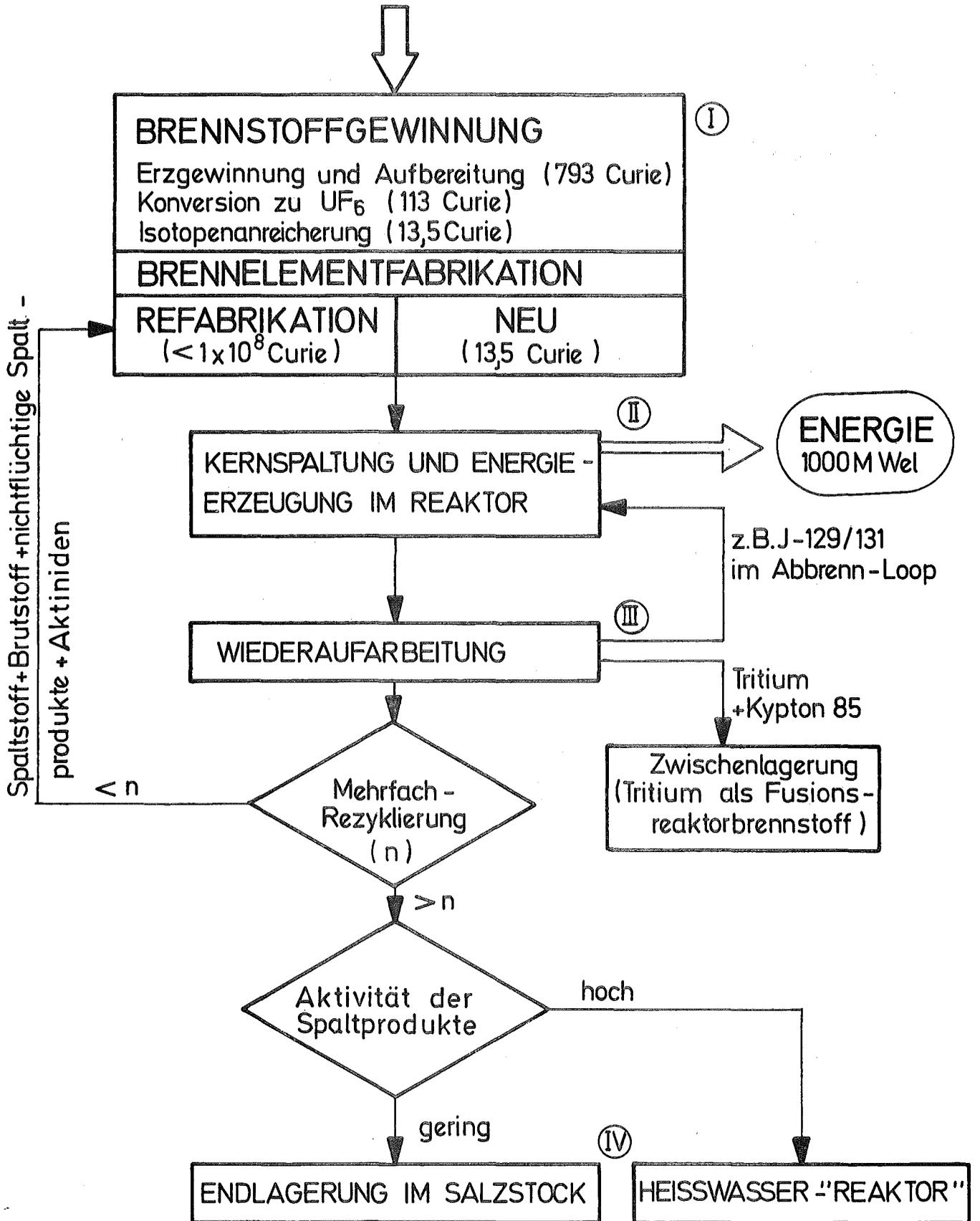


Abb.1 FLIESSSCHEMA FÜR DIE SPALTPRODUKTREZYKLIERUNG

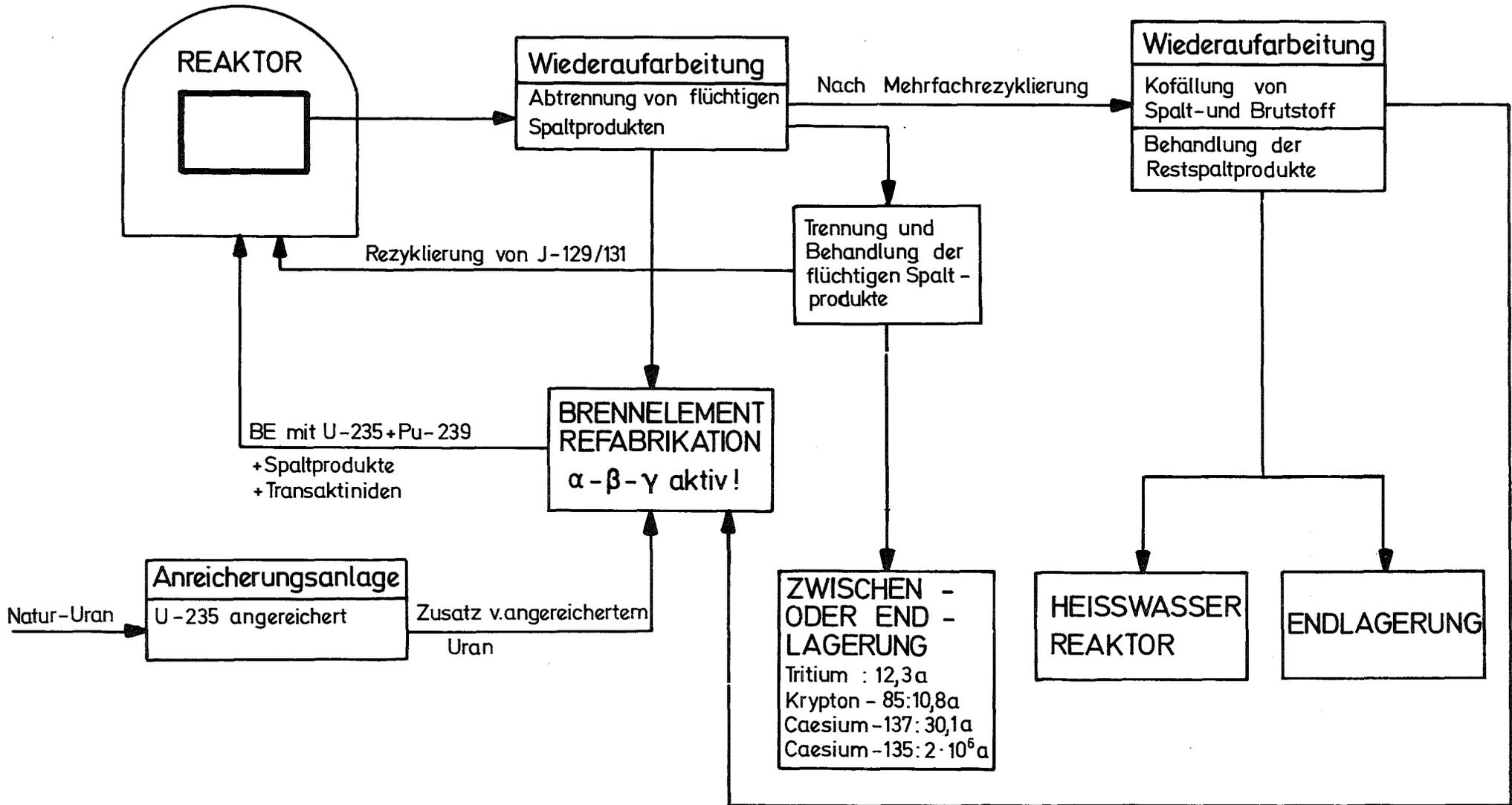


Abb.2 FLUSSDIAGRAMM FÜR EINEN BRENNSTOFFKREISLAUF MIT SPALTPRODUKT-REZYKLIERUNG BEIM LEICHTWASSERREAKTOR

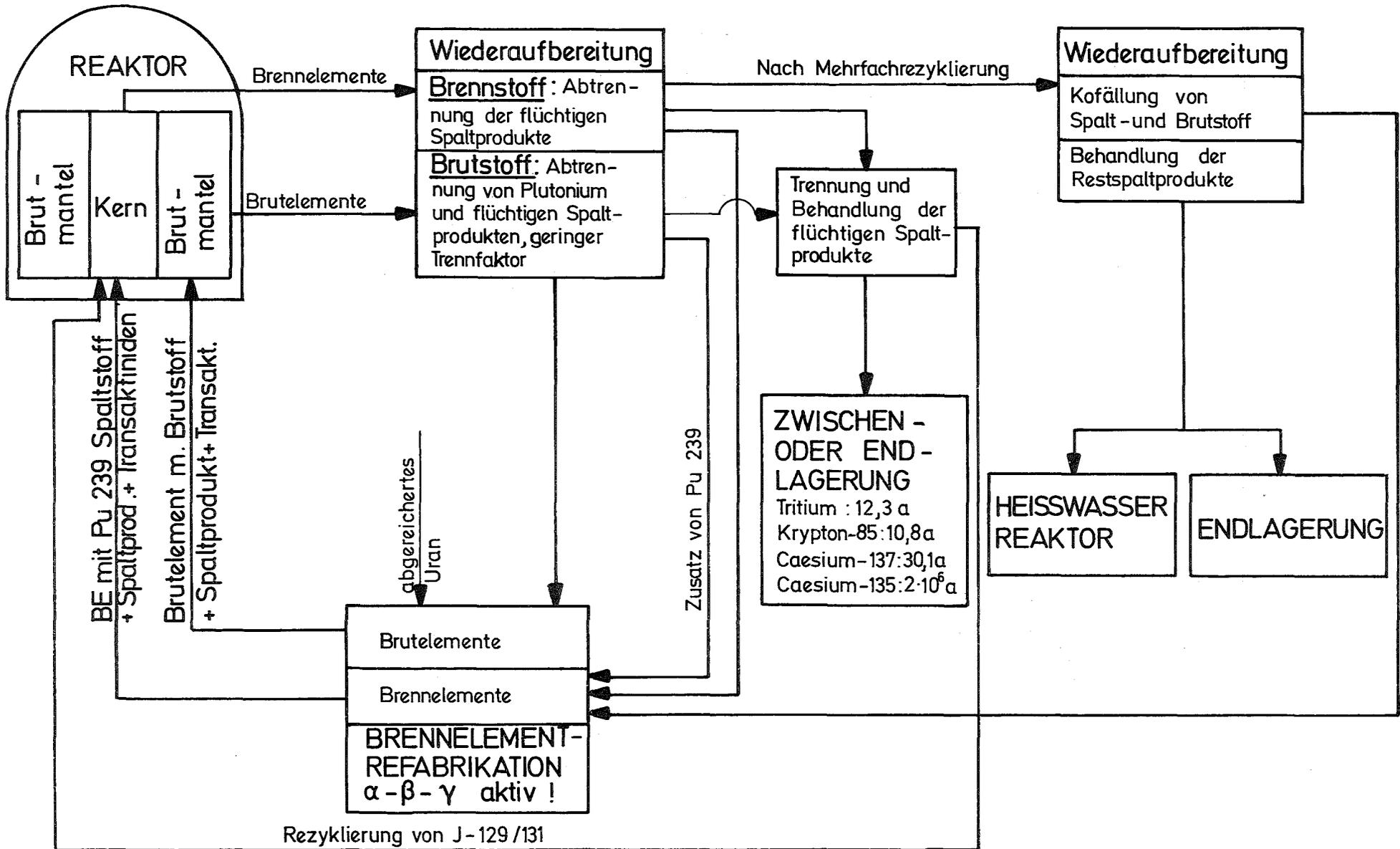


Abb.3 FLUSSDIAGRAMM FÜR EINEN BRENNSTOFFKREISLAUF MIT SPALTPRODUKT - REZYKLIERUNG BEIM SCHNELLEN BRÜTER

Periode	Gruppe 0	Gruppe I	Gruppe II	Gruppe III	Gruppe IV	Gruppe V	Gruppe VI	Gruppe VII	Gruppe VIII			
1	0 n Neutron 1,00867	1 H Wasserstoff 1,0079										
2	2 He Helium 4,00260	3 Li Lithium 6,941	4 Be Beryllium 9,01218	5 B Bor 10,81	6 C Kohlenstoff 12,011	7 N Stickstoff 14,0067	8 O Sauerstoff 15,9994	9 F Fluor 18,99840				
3	10 Ne Neon 20,179	11 Na Natrium 22,98977	12 Mg Magnesium 24,305	13 Al Aluminium 26,98154	14 Si Silicium 28,086	15 P Phosphor 30,97376	16 S Schwefel 32,06	17 Cl Chlor 35,453				
		A B	A B	A B	A B	A B	A B	A B	A B			
4	18 Ar Argon 39,948	19 K Kalium 39,098	20 Ca Calcium 40,08	21 Sc Scandium 44,9559	22 Ti Titan 47,90	23 V Vanadium 50,9414	24 Cr Chrom 51,996	25 Mn Mangan 54,9380	26 Fe Eisen 55,847	27 Co Kobalt 58,9332	28 Ni Nickel 58,71	
		29 Cu Kupfer 63,546	30 Zn Zink 65,38	31 Ga Gallium 69,72	32 Ge Germanium 72,59	33 As Arsen 74,9216	34 Se Selen 78,96	35 Br Brom 79,904				
5	36 Kr Krypton 83,80	37 Rb Rubidium 85,4678	38 Sr Strontium 87,62	39 Y Yttrium 88,9059	40 Zr Zirkonium 91,22	41 Nb Niob 92,9064	42 Mo Molybdän 95,94	43 Tc Technetium [99]	44 Ru Ruthenium 101,07	45 Rh Rhodium 102,9055	46 Pd Palladium 106,4	
		47 Ag Silber 107,868	48 Cd Cadmium 112,40	49 In Indium 114,82	50 Sn Zinn 118,69	51 Sb Antimon 121,75	52 Te Tellur 127,60	53 J Jod 126,9045				
6	54 Xe Xenon 131,30	55 Cs Cäsium 132,9054	56 Ba Barium 137,34	57—71 Lanthanoide s. unten *)	72 Hf Hafnium 178,49	73 Ta Tantal 180,9479	74 W Wolfram 183,85	75 Re Rhenium 186,2	76 Os Osmium 190,2	77 Ir Iridium 192,22	78 Pt Platin 195,09	
		79 Au Gold 196,9665	80 Hg Quecksilber 200,59	81 Tl Thallium 204,37	82 Pb Blei 207,2	83 Bi Wismut 208,9804	84 Po Polonium [210]	85 At Astat [210]				
7	86 Rn Radon [222]	87 Fr Francium [223]	88 Ra Radium [226]	89—103 Actinoide s. unten **)	104 Ku Kurtschatovium [260]	105 Element 105 [260]						

*) Lanthanoide

57 La Lanthan 138,9055	58 Ce Cer 140,12	59 Pr Praseodym 140,9077	60 Nd Neodym 144,24	61 Pm Promethium [147]	62 Sm Samarium 150,4	63 Eu Europium 151,96	64 Gd Gadolinium 157,25	65 Tb Terbium 158,9254	66 Dy Dysprosium 162,50	67 Ho Holmium 164,9304	68 Er Erbium 167,26	69 Tm Thulium 168,9342	70 Yb Ytterbium 173,04	71 Lu Lutetium 174,97
------------------------------	------------------------	--------------------------------	---------------------------	------------------------------	----------------------------	-----------------------------	-------------------------------	------------------------------	-------------------------------	------------------------------	---------------------------	------------------------------	------------------------------	-----------------------------

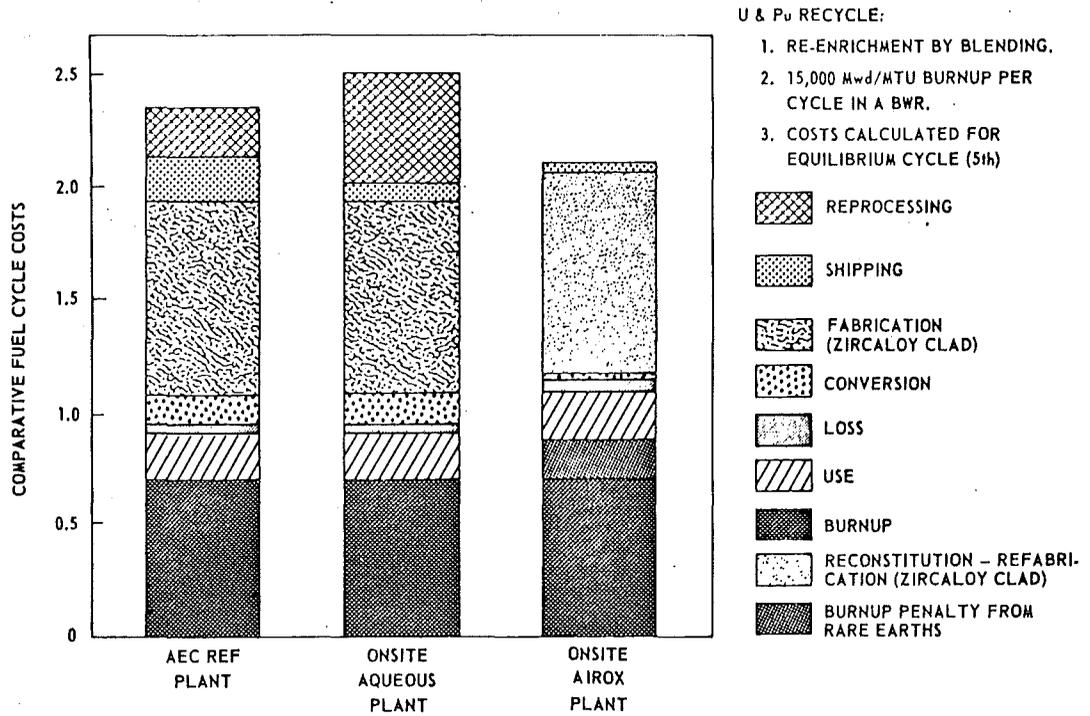
**) Actinoide

89 Ac Actinium [227]	90 Th Thorium 232,0381	91 Pa Protactinium 231,0359	92 U Uran 238,029	93 Np Neptunium 237,0482	94 Pu Plutonium [244]	95 Am Americium [243]	96 Cm Curium [247]	97 Bk Berkelium [247]	98 Cf Californium [252]	99 Es Einsteinium [254]	100 Fm Fermium [257]	101 Md Mendelevium [258]	102 No Nobelium [255]	103 Lr Lawrencium [256]
----------------------------	------------------------------	-----------------------------------	-------------------------	--------------------------------	-----------------------------	-----------------------------	--------------------------	-----------------------------	-------------------------------	-------------------------------	----------------------------	--------------------------------	-----------------------------	-------------------------------

Massenzahl des längstlebigen der bekannten Isotope in [], bei den Elementen 43, 61, 84 u. 98 Massenzahl des am besten untersuchten Isotops.

Abb. 4 Die Spaltprodukte und Transurane im Periodischen System.

Der umrandete Teil umfaßt die bei den Spaltproduktisotopen vertretenen Elemente.



7522-1009●

Abb.5 Vergleich der Kosten der Brennelement-Zyklen

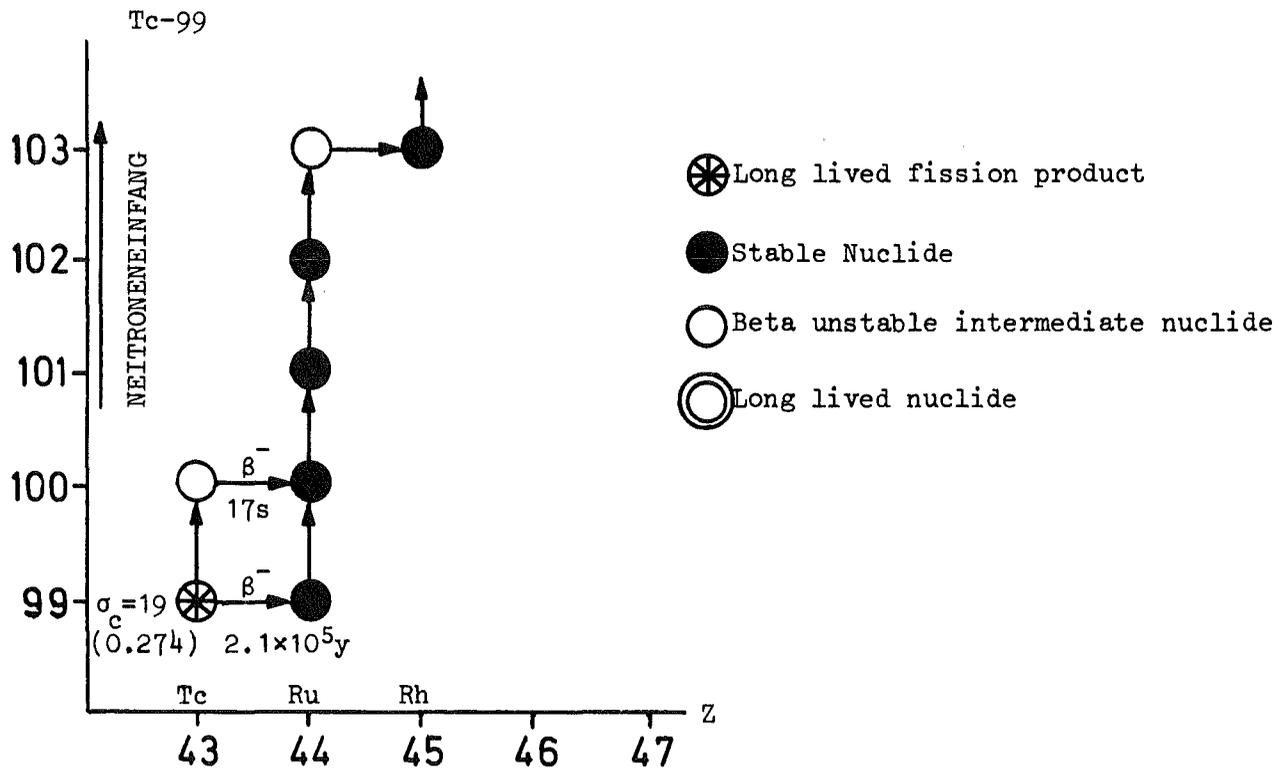
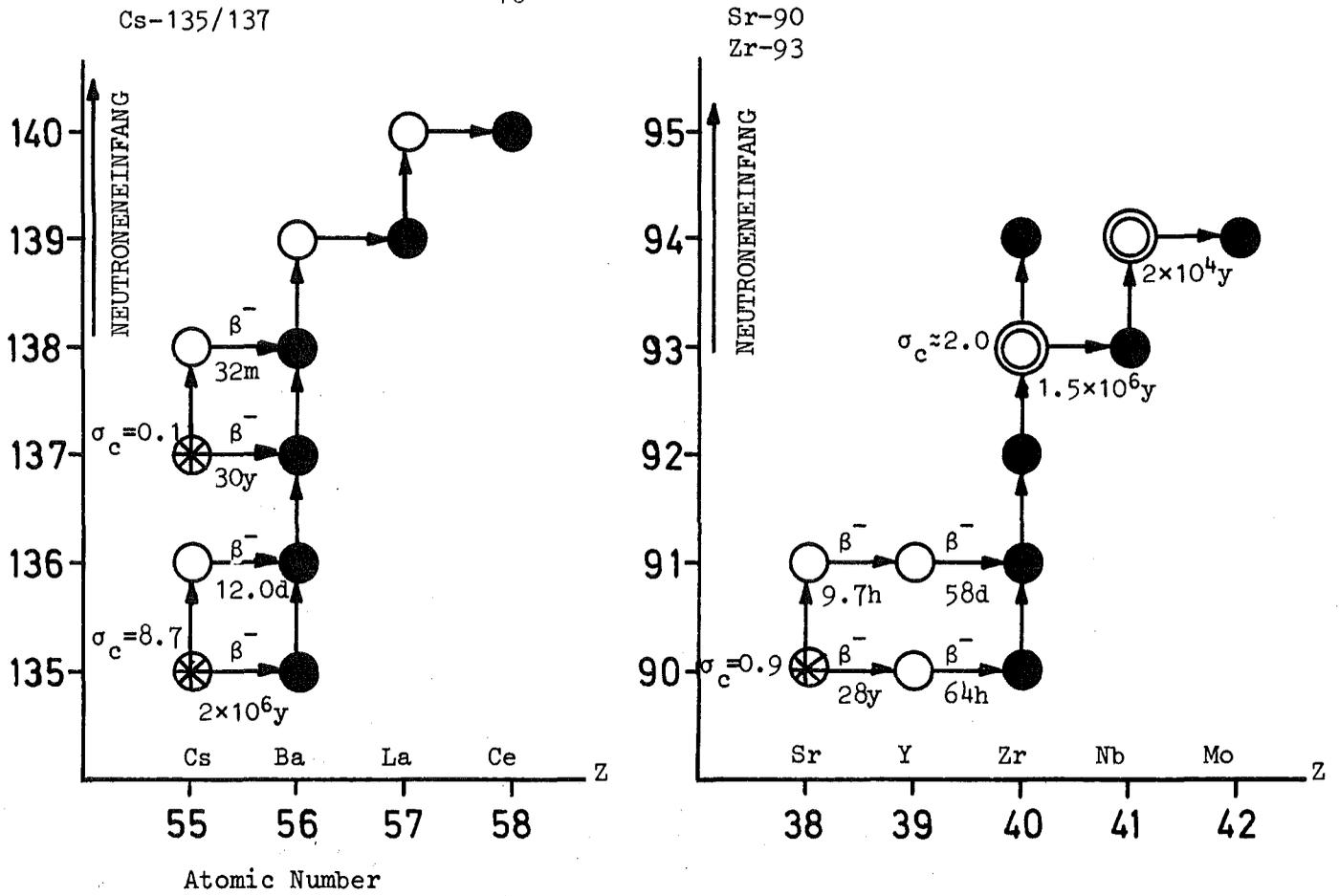


Abb.6 Das Abbrennen ausgesuchter Spaltprodukte im Neutronenfluß. Der Einfangquerschnitt der Ausgangsisotopes für thermische Neutronen ist in barn ($\approx 10^{-24}$ cm²) angegeben. Der Einfangquerschnitt für ein Schnellbrüterspektrum ist soweit bekannt in Klammer beigefügt.

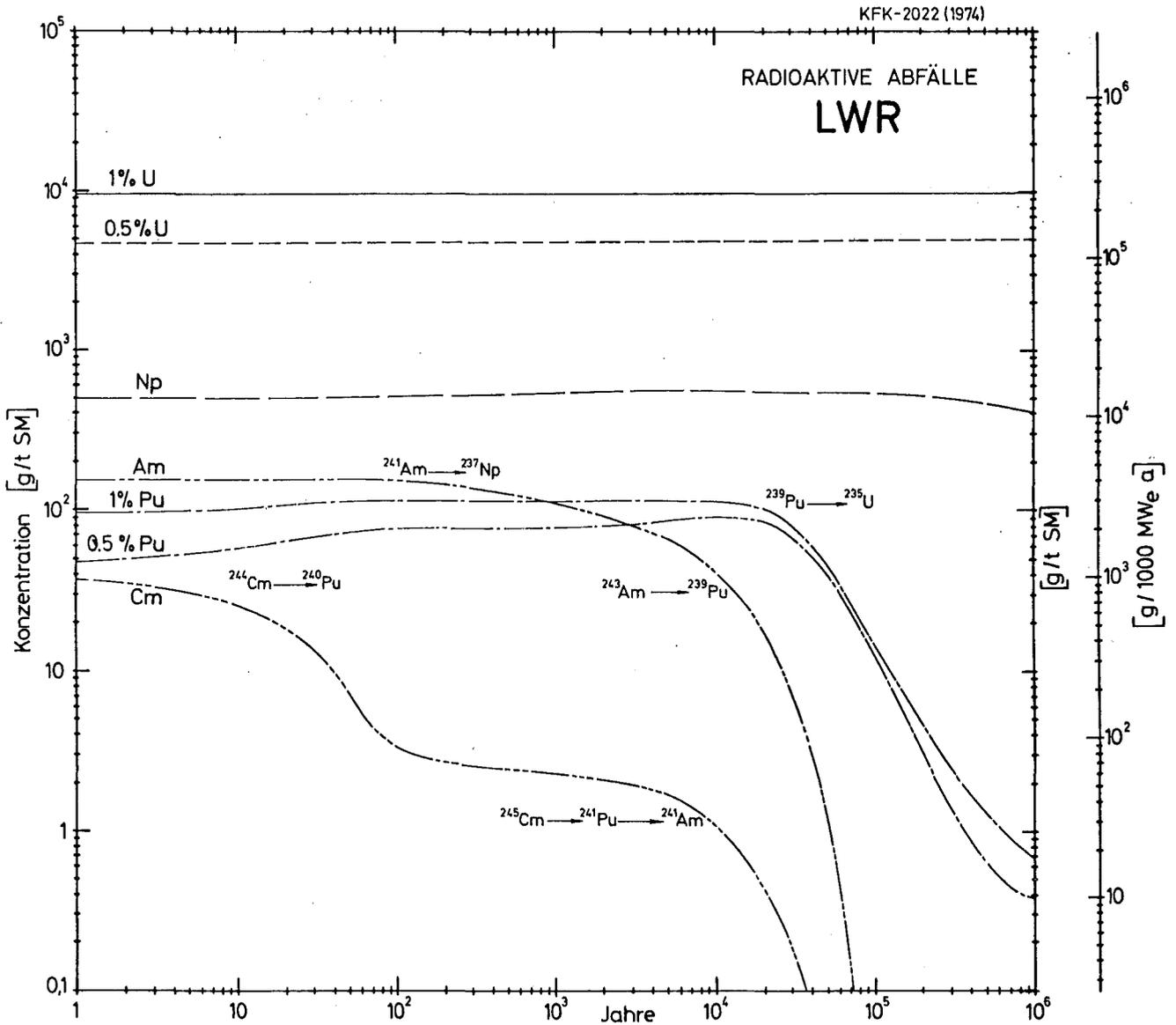


Abb. 7 Konzentration von Actiniden im radioaktiven Abfall von LWR-Brennstoff
 3.3% U-235 Gleichgewichtszyklus, Abbrand 34 000 MWd/t SM,
 Wiederaufbereitung nach 150 Tagen Kühlzeit;
 Verluste 1% U und 1% Pu bzw. 0.5% U und 0.5% Pu nach /2/

KFK - 2022 (1974)

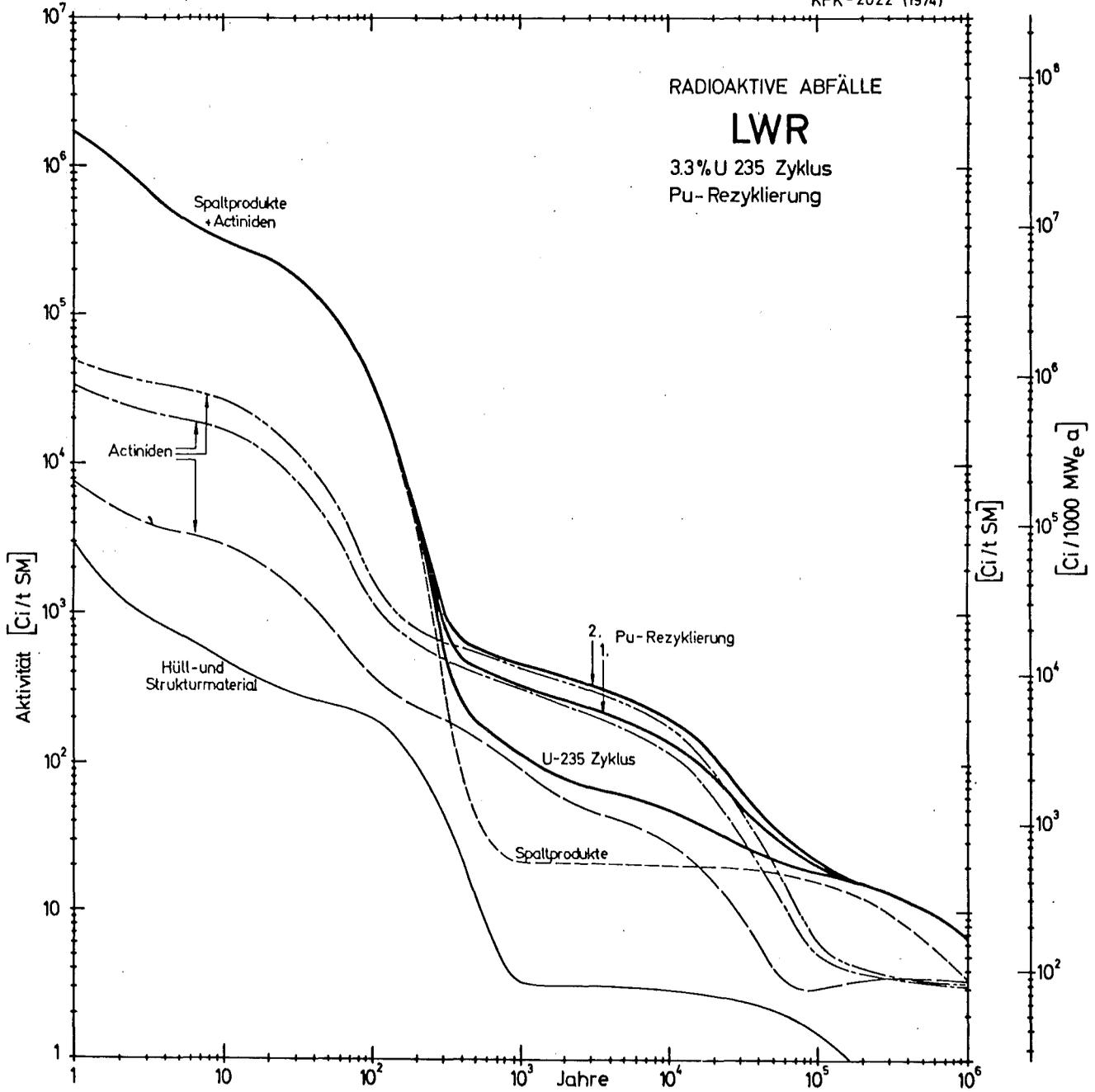


Abb. 8 Aktivität von Spaltprodukten, Actiniden und Hüll- und Strukturmaterial im radioaktiven Abfall von LWR-Brennelementen (U-235, 1. u. 2. Pu-Rezyklierung, Abbrand je 34000 MWd/t SM), Wiederaufarbeitung nach 150 Tagen Kühlzeit. Verlust: 1% Pu und 1% U nach /2/

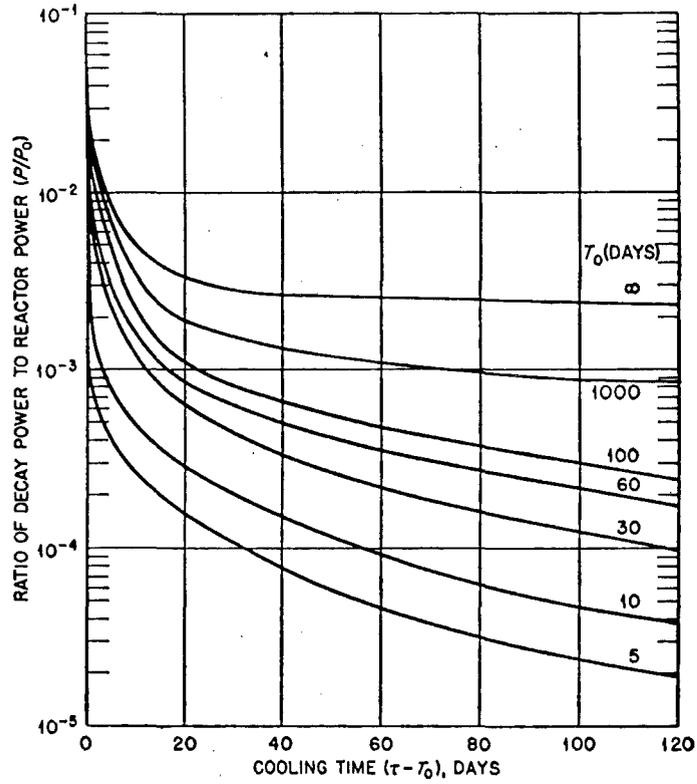


Abb.9 Einfluß der Bestrahlungszeit des Brennstoffs auf das zeitliche Abklingen der Zerfallswärme unter Vernachlässigung des Abbrennens von Spaltprodukten, Bestrahlungszeit T_0 als Parameter nach /33/.