

Schs. PH

Kontrollblatt für externe Publikationen und Vorträge

Name des Autors: **C. McCombie, U. Schmocker, W. Seifritz**
Abteilung: **PHYSIK**

Wir beantragen:

- Publikation in folgender Fachzeitschrift:
Schweizerische Technische Zeitschrift
- EIR-Bericht*
- Teilnahme mit Vortrag an folgender Tagung / Konferenz*
(Titel der Konferenz, Datum, Ort, Organisator)

Die Tagung hat offiziellen / inoffiziellen Charakter*

Ein Tagungsbericht wird gedruckt / nicht gedruckt*

Unser Beitrag hat folgenden Titel:

Thorium im schnellen Brüter

Anzahl der bestellten Sonderdrucke (bei EIR-Bericht Auflage): **400**

Dem EIR entstehen dadurch Kosten in der Höhe von Fr.: **ca. 700.-**

Der Verfasser bestätigt, dass die Arbeit keine vertraulichen Angaben enthält.

Weitere Bemerkungen:

Der beiliegende Artikel wurde von der Redaktion der STZ nach Absprache mit U. Schmocker leicht gekürzt.

Datum:

12. September 1978

Unterschrift des Verfassers:

Unterschrift des Abt./Projektleiters:

W. Seifritz

Bemerkungen der Stabsstelle Forschung:

Thorium im Schnellen Brüter

Physikalische Untersuchungen zu neuen Brennstoffzyklen am EIR

von

C. Mc Combie, U. Schmocker, W. Seifritz

Anschrift:

Physikabteilung des Eidg. Institut für Reaktorforschung (Leiter:
PD Dr. W. Seifritz) CH-5303 Würenlingen.

publiziert im Sept. 78 (Sonderausgabe)
in Schweiz. Techn. Zeitschrift (Erdbe-
gehung).

(Später als EIR-Bericht vorhanden).

Zusammenfassung

Im Zusammenhang mit der neuen Nuklearpolitik der US-Administration ist das Interesse an Brennstoffzyklen, die gegenüber der Proliferation von Spaltmaterial technisch resistenter als der gegenwärtige Uran/Plutoniumzyklus sind, stark gestiegen. In der Physikabteilung des Eidg. Instituts für Reaktorforschung (EIR), Würenlingen, beschäftigt man sich intensiv mit diesem Problem. Gegenwärtig wird mit Hilfe des Forschungsreaktors PROTEUS das neutronen-physikalische Verhalten von Thorium in einem schnellen Reaktorgitter untersucht, um die technischen Grunddaten für das Erbrüten von U-233 in schnellen Reaktoren und dessen Einsatz in sog. "denaturierten" Brennstoffzyklen zu überprüfen. Im folgenden Artikel wird diese weltweit diskutierte Möglichkeit näher untersucht.

1. Uran als Energiequelle

In der Natur gibt es nur ein einziges Isotop, mit dem der Brennstoffzyklus eines Reaktorsystems gestartet werden kann - U235. Dieses ist aber nur zu 0,71% in Natururan enthalten, das hauptsächlich aus dem Isotop U238 besteht. Heute werden Natururanvorkommen abgebaut, die Gewinnungskosten bis etwa 30\$/lb U_3O_8 (1 lb = 454 g) verursachen. Für diesen Kostenbereich werden die Reserven der westlichen Welt auf rund 3.7 Mio. t geschätzt, die bei Nutzung in heutigen Leichtwasserreaktoren (LWR) einen Energieinhalt von rund 100 Mia. t Steinkohle darstellen. Leichtwasserreaktoren heutiger Bauart nützen aber nur etwa 1% des Natururans zur Energiegewinnung aus; sie stellen daher eine Energiereserve dar, die grössenordnungsmässig nur jener der Erdöl- und Erdgasvorräte entspricht. Daran erkennt man, dass die heutigen LWR keine langfristige Lösung des Energieproblems darstellen. Genauso wie die Oelvorkommen würden auch die Uranreserven in der ersten Hälfte des nächsten Jahrhunderts erschöpft sein.

Die Kohlevorräte könnten unseren Energiebedarf zwar für wesentliche Zeit decken, doch sind die dabei auffallenden Umweltsbelastungen sehr gross. Kohle muss trotzdem in nächster Zeit ein wichtiger Träger unserer Energieversorgung bleiben, aber wir brauchen für die Zukunft saubere und langfristig ertragreiche Energiesysteme.

Neben dem spaltbaren U235-Isotop stellt uns die Natur aber auch sogenanntes Brutmaterial, namentlich U238 und Th232, in grosser Menge zur Verfügung. Dieses Brutmaterial lässt sich durch Neutroneneinfang in spaltbaren Kernbrennstoff umwandeln. (Abb. 1) In einem LWR werden pro 100 gespaltenen U235-Kerne etwa 60 U238-Kerne ein Neutron einfangen und sich in Pu239 umwandeln. 70% dieses Plutoniums wird während des Reaktorbetriebs wieder gespalten, die restlichen 30% können für spätere Benützung in anderen Reaktoren verwendet werden. Rund 30% der produzierten Leistung werden in LWR durch die Plutoniumspaltung erzeugt!

Brutmaterial lässt sich aber durch Neutroneneinfang auch direkt spalten. Dazu werden allerdings schnelle Neutronen mit einer

Energie von rd. 1 MeV (Mega-Elektronenvolt) benötigt. In einem sogenannten thermischen Reaktor, zu denen auch die Leichtwasserreaktoren gehören, besitzen wenige Neutronen diese Energie, die meisten haben Energien, die nur einem Bruchteil eines eV entsprechen. Von 100 in U²³⁸-Kerne eingefangenen Neutronen haben etwa 5 genügend Energie, um den Kern zu spalten.

Eine Möglichkeit, Brutmaterial besser auszunützen, ist deren Einsatz in Schnellen Brutreaktoren (SBR). Sowohl die Konversion in spaltbares Material als auch die Ausnützung der direkten Spaltung durch schnelle Neutronen sind viel günstiger als im LWR. Ein schneller Reaktor besitzt im Gegensatz zum LWR keinen Moderator, um die Neutronen abzubremesen. Die mittlere Energie der Neutronen in einem SBR beträgt deshalb einige 100 keV. Als Spaltmaterial wird bei heutigen SBR-Konzepten vorwiegend Plutonium eingesetzt. Pro 100 gespaltene Plutoniumkerne werden in einem SBR rund 110 bis 120 (und mehr) U²³⁸-Kerne durch Neutroneneinfang in Plutonium verwandelt - das Konversionsverhältnis (CR) ist grösser als 1, Plutonium wird "erbrütet". Ein SBR erzeugt nicht nur Energie, er produziert auch Spaltmaterial für weitere Reaktoren. Nach rund 10 bis 30 Betriebsjahren (abhängig vom speziellen Reaktortyp) ist genügend Brennstoff produziert um einen weiteren Reaktor zu betreiben. Man nennt dies die Verdopplungszeit des Reaktors. SBR nützen im Idealfall das Natururan vollständig aus. In der Praxis ist eine Ausnützung zwischen 50 bis 70 % zu erwarten, eine rund 60 mal bessere Verwertung des Urans gegenüber heutigen LWR. Bei diesem günstigen Ausnutzungsgrad des Urans in SBR wird es zudem interessant, auch uranärmere Erze mit höheren Urangewinnungskosten abzubauen. Für den Kostenbereich bis zu 250\$/lb U₃O₈ werden die Reserven auf etwa 100 Mio. t geschätzt. Darauf basierte unter anderem auch die vor einigen Jahren bekannt gewordene Idee, Uran und Thorium aus dem Granit der Schweizer Alpen für ein Brutreaktor-system zu gewinnen.

Um einen SBR zu betreiben, wird zu Beginn ein Plutoniuminventar von einigen Tonnen benötigt, das aber bereits in den heutigen LWR produziert wird.

Trotz dieser langfristigen Vorzüge stösst die Einführung von Schnellen Brutreaktoren heute auf Widerstand. Gesellschaftspolitische Konsequenzen einer sogenannten Plutoniumwirtschaft, ungenügende Sicherheitsmassnahmen und die Gefahr des Plutoniummissbrauches sind die Hauptargumente der Opposition. Besonders die Abzweigung von Plutonium aus dem friedlichen Bereich der Kernenergienutzung zur Herstellung von nuklearen Waffen, die Frage der sogenannten Proliferation, ist durch die amerikanische Nuklearpolitik sehr aktuell geworden. In den letzten Jahren sind deshalb Anstrengungen unternommen worden, Nuklearkonzepte zu entwickeln, die den Missbrauch von Spaltstoff erschweren wenn nicht ~~gar~~ *gar* verunmöglichen sollen.

Wir möchten hier aber feststellen, dass die Verwendung von Plutonium zur Kernwaffenproduktion aus unseren elektrizitätserzeugenden Leistungsreaktoren sehr kompliziert und aufwendig wäre. Um an geeignetes Spaltmaterial heranzukommen, gibt es eine ganze Reihe einfacherer und vor allem billigerer Methoden, als die Benutzung von Spaltstoffen aus Kernkraftwerken. So haben beispielsweise alle heutigen Atomwaffenstaaten das Spaltmaterial für ihre Kernwaffen ohne den Umweg über die friedliche Nutzung der Kernenergie produziert. Die Produktion einer Kernwaffe ist keineswegs von der Existenz von Kernkraftwerken abhängig und wir sind der Meinung, dass das Proliferationsproblem eher durch politische Uebereinkünfte zwischen gleichberechtigten Staaten in den Griff zu bekommen ist, als durch einseitige Ge- und Verbote. Trotzdem ist es sinnvoll, bei einer weltweiten Einführung der Kernenergie, Konzepte und Techniken zu studieren, die das Risiko eines Brennstoffmissbrauches von der technischen Seite her auf ein Minimum beschränkt.

2. Warum Thorium?

Im Zusammenhang mit den Bedenken einer reinen Plutoniumwirtschaft finden Brennstoffzyklen, die kein oder nur wenig Plutonium benützen und produzieren, vermehrtes Interesse. Eine Möglichkeit ist dabei die Verwendung von Thorium als Brutmaterial anstelle von U238.

Th232, das in der Natur in etwa der gleichen Menge vorhanden ist wie Uran, lässt sich durch Neutroneneinfang in spaltbares U233 umwandeln, ein Isotop mit ähnlichen Eigenschaften wie U235 und Pu239. In einem thermischen Reaktor hat U233 sogar bessere neutronenphysikalische Eigenschaften als U235 und Pu239. Aus diesem Grunde ist der Thoriumzyklus in einer Reihe von Ländern näher untersucht worden. (z.B. Kanada, Indien, BRD und USA). Darüber hinaus bietet die Anwendung des Th232-U233-Brennstoffzyklus in thermischen Reaktoren die Möglichkeit die Uranreserven langfristig zu strecken.

Die Ausnützung des Energiepotentials beider Brennstoffzyklen, des Pu239-U238 und des U233-Th 232-Zyklus, in thermischen Reaktoren ist aber gering verglichen mit den Möglichkeiten, die ein Schneller Brutreaktor (SBR) liefert. Allein der Energieinhalt der Uranvorräte, ausgenützt in Schnellen Reaktoren auf der Basis des Plutoniumzyklus, würde den Energiebedarf der Erde für mehrere Jahrhunderte decken. Diese Tatsache erübrigte längere Zeit nähere Untersuchungen zum Einsatz alternativer Brennstoffe im SBR.

Im Zusammenhang mit dem oben erwähnten Problem der Proliferation ist das Interesse am Einsatz von Thorium in Schnellen Brutreaktoren stark gestiegen. Beim Plutoniumzyklus enthalten die Brennelemente eine Mischung von Plutonium- und Uranoxyd. Theoretisch könnte im Falle des Missbrauchs, Plutonium chemisch abgetrennt und für Kernwaffen abgezweigt werden. Benützt man hingegen den

U233-Th-232-Zyklus, könnte man das U233 so stark mit U238 verschneiden, dass diese Uranmischung nicht mehr direkt als Waffensmaterial benützlich ist. Aus diesem Brennstoff liesse sich das als Bombenmaterial interessante U233-Isotop nur noch durch Isotopentrennung separieren. Durch die Benützung von Thorium im Reaktor wird zudem eine gewisse Menge an U232 aufgebaut. Beim Zerfall dieses Isotops bilden sich radioaktive Zwischenkerne (Pb 212, Bi 212, Tl 208), deren starke Strahlung einen natürlichen Schutz gegen den Missbrauch des Brennstoffs bildet. Die Separation von U233 aus diesem Brennstoff wäre nur noch mit grösserem technischen Aufwand möglich, was einen Missbrauch ganz beträchtlich erschweren würde. Andererseits würde aber auch für den Brennstoffhersteller die Produktion von Brennelementen für Kernkraftwerke entsprechend kompliziert.

Die physikalischen Eigenschaften des Thoriumzyklus in thermischen und schnellen Reaktorsystemen sollen in den beiden folgenden Abschnitten untersucht werden, wobei nochmals auf die heute diskutierten Probleme der Proliferation näher eingegangen wird.

3. Thorium im thermischen Reaktor

In heutigen LWR lässt sich bei Verwendung von U238-Brutstoff Plutonium produzieren, beim Einsatz von Thorium wird U233 als neues spaltbares Material erzeugt. Benützt man Thorium als Brutmaterial, ist allerdings eine grössere U235-Brennstoffmenge im Reaktor notwendig. Dafür gewinnt man als Spaltmaterial U233, ein für thermische Reaktoren ausgezeichnet verwendbarer Brennstoff. Für jedes in einem U233-Isotop eingefangenes Neutron werden durchschnittlich 2.28 Neutronen freigesetzt. Für Pu239 und U235 beträgt dieser sogenannte η -Wert 2.11 respektive 2.07. Dieser scheinbar kleine Unterschied in den η -Werten ist aber für die Neutronenbilanz in einem Reaktor äusserst wichtig. Direkte Konsequenzen des höheren η -wertes von U233 gegenüber Pu239 und U235 sind beispielsweise eine kleinere Menge an Spaltmaterial im Reaktor und ein günstigeres Konversionsverhältnis (CR). Dieser Wert ist allerdings stark vom Aufbau des Reaktorkerns abhängig, insbesondere vom Verhältnis zwischen Spalt- und Brutmaterial. Als Beispiel sind in der folgenden Tabelle CR-Werte für einen 587 MW(e) Druckwasserreaktor zusammengestellt, wobei verschiedene Kombinationen von Spalt- und Brutmaterialien untersucht wurden. Die Beispiele wurden mit oxydischen Brennstoffen gerechnet.

| Spalt- material | Brut- material | Konversions- verhältnis | <u>Tabelle 1</u> |
|--------------------|----------------------|----------------------------|---|
| U 235 | - U238 | 0.61 | Vergleich von Konversionsverhältnissen für einen 587 MW(e) Druckwasserreaktor (a. ORNL/TM-5565) |
| Pu239 | - U238 | 0.72 | |
| Pu239 | - Th232 | 0.69 | |
| U 233 | - TH232 ⁺ | 0.73 | |

+ Benützt man Thoriummetall, steigt der CR-Wert auf 0.79.

Gegenüber einem LWR besitzen Schwerwasserreaktoren (HWR) und Hochtemperaturreaktoren (HTR) eine günstigere Neutronenbilanz. In schwerem Wasser (D_2O) und Graphit (Moderator im HTR) werden bedeutend weniger Neutronen absorbiert als im normalen Wasser (H_2O). Somit stehen in einem HWR oder HTR mehr Neutronen zur Spaltung und Konversion zur Verfügung, was sich positiv auf das Konversionsverhältnis auswirkt. Bei optimaler Reaktorauslegung und verhältnismässig kurzer Bestrahlungszeit ist es in einem HWR sogar möglich, mit U_{233} - Th_{232} -Brennstoff einen Konversionswert knapp über eins zu erreichen. Auch einen Hochtemperaturreaktor kann man als "Nahebrüter" auslegen, so dass er mit U_{233} - Th_{232} Brennstoff ein Konversionsverhältnis von 0.9-0.95 erreichen kann. Wann solche thermischen Hochkonverter wirtschaftlich arbeiten hängt von der Entwicklung der Brennstoffzykluskosten ab. Sicher ist aber, dass der Einsatz von Thorium in thermischen Reaktoren die Uranvorräte strecken kann.

4. Thorium im Schnellen Reaktor

Die Verwendung von U233 als Spalt- und Th232 als Brutmaterial in einem SBR ist vom rein physikalisch-technischen Standpunkt aus ungünstiger als der Einsatz von Pu239 und U238. In einem harten Neutronenspektrum besitzt Pu239 einen höheren η -Wert als U233. Der Beitrag der direkten Spaltung von U238 ist im SBR zudem bedeutend grösser als derjenige von Th232. Die U238-Spaltung trägt in einem SBR rund 17% zur Energieproduktion bei, die Th232-Spaltung nur etwa 3%. Diese physikalischen Tatsachen bewirken einen kleineren CR-Wert für den U233-Th232-Zyklus gegenüber dem Pu239-U238-Zyklus. Für beide Brennstoffsysteme sind aber in einem SBR Konversionsraten >1 ohne grosse Schwierigkeiten möglich.

Der Einsatz von Thorium in einem SBR bietet - nebst der Erschliessung einer neuen Energiequelle - einige Vorteile. Bei Anlagen heutiger Konzeption mit Natrium als Kühlmittel (sogenannte Natriumbrüter) führt das Entfernen von Natrium aus dem Kühlkreislauf - der sogenannte "Voideffekt" - zu einem Anstieg der Reaktorreaktivität, d.h. der Neutronendichte und somit der Leistung, was mit entsprechenden sicherheitstechnischen Gegenmassnahmen verhindert werden muss. In einem mit Thorium geladenen SBR führt der "Voideffekt" vorteilhafterweise meist zu einer Reaktivitätsabnahme.

Das gegenüber dem Pu239-U238-Zyklus kleinere Konversionsverhältnis des U233-Th232-Zyklus kann teilweise durch Benützung von metallischen anstelle des oxydischen Thoriums kompensiert werden. Thoriummetall hat für Metalle einen hohen Schmelzpunkt (1700°C) und günstige Bestrahlungseigenschaften. Die bessere thermische Leitfähigkeit des Metalls gegenüber dem Oxyd erlaubt einen Reaktorbetrieb mit höherer Leistungsdichte. Das härtere Neutronenspektrum und die grosse Thoriumdichte ergeben schliesslich eine Verbesserung des Konversionsfaktors um rund 10% gegenüber einem System mit Thoriumoxyd. Im Gegensatz zu Thorium lässt sich Uranmetall wegen

ungünstigeren metallurgischen Eigenschaften nicht in einem Reaktor einbauen.

Die vom neutronenphysikalischen Standpunkt wohl beste Anordnung eines Schnellen Reaktors mit Thorium als Brutmaterial ist dessen Einbau in einer sogenannten Brutzone (im sog. Blanket), die die Zentrale, mit PuO_2/UO_2 gefüllte Brennstoffzone umschliesst. Dabei wird immer nur soviel Plutonium erbrütet, als der Reaktor selbst verbraucht, das heisst das Plutonium wirkt nur als eine Art Katalysator, um $\text{U}238$ zu verbrauchen. Der im Ueberschuss erbrütete Brennstoff ist $\text{U}233$, der in thermische Reaktoren zurückgeführt werden soll. Dies führt dann zu einer sogenannten "Symbiose" von schnellen und thermischen Reaktoren, wobei im Gleichgewicht ein SBR den Brennstoff für mehrere thermische Reaktoren liefern könnte und eine Energiequelle für die nächsten Jahrhunderte - bis wir vielleicht noch ein besseres Energiesystem gefunden haben - erschlossen wäre.

5. Massnahmen gegen die Proliferation von Spaltmaterial

Das heutige Interesse an Thorium, vor allem sein Einsatz in Schnellen Reaktoren, ist vorwiegend im Zusammenhang mit Fragen der Sicherheit des Brennstoffzyklus zu sehen.

Bekanntlich ist das Plutonium-Isotop 239 ein geeignetes Spaltmaterial für Kernwaffen. Plutonium wird immer aus U^{238} erbrütet d.h. es wird in jedem Reaktor mit Uran vermischt sein. Da Plutonium und Uran aber chemisch verschiedene Elemente sind, lassen sie sich vor allem bei neuem Brennstoff mit relativ geringer Radioaktivität, leicht trennen. Benützt man hingegen Th^{232} als Brutmaterial um U^{233} -Spaltstoff zu erzeugen, liegen die Verhältnisse günstiger. U^{233} kann nämlich, wie wir bereits früher erwähnten, mit dem U^{238} -Isotop so stark verdünnt werden, dass die Mischung als Bombenmaterial nicht mehr geeignet ist. Eine chemische Trennung dieser Uranmischung ist aber nicht mehr möglich. Diese Idee, Spaltstoffe mit Brutmaterial so stark zu vermischen, dass sie für Waffenproduktion nicht mehr direkt missbraucht werden können, gab Anlass zu intensiven Untersuchungen von sogenannten isotopisch verschnittenen oder "denaturierten Brennstoffzyklen".

Am Oak Ridge National Laboratory (ORNL) sind umfangreiche Studien zu diesem Problemkreis durchgeführt worden. Die Ergebnisse zeigen, dass denaturierte Brennstoffzyklen die Proliferation erschweren. Dies muss aber mit einem in allgemeinen niedrigeren Konversionsverhältnis erkauft werden. Zudem muss beachtet werden dass in jedem Fall eine kleinere Menge Plutonium erbrütet wird. Dieses Plutonium ist allerdings nur in bescheidenen Mengen in abgebrannten Brennelementen enthalten. Ein Missbrauch wäre wegen der starken radioaktiven Strahlung abgebrannter Stäbe äusserst schwierig.

Um vorteilhaftere Verhältnisse zu erzielen, ist die bereits erwähnte Symbiose zwischen SBR mit Thorium im Brutmantel und thermischen Reaktoren, betrieben auf der Basis des denaturierten Brennstoffzyklus, vorgeschlagen worden. Die Schnellen Brutreaktoren müssten dabei in gesicherten, international kontrollierbaren Zonen ("safeguarded areas") gebaut werden - den sogenannten Energieparks . Alle Arbeiten, bei denen grössere Mengen von Spaltmaterial gehandhabt werden muss, sollen in diesen abgeschlossenen Zonen durchgeführt werden. Ausserhalb dieser Energieparks werden nur Reaktoren mit schwach bis mittel angereichertem Brennstoff betrieben. Die Wiederaufarbeitung und die Brennelementfertigung erfolgt innerhalb der kontrollierten Zone. Das gewonnene Plutonium wird wie bereits erwähnt als Katalysator in SBR benützt, die ebenfalls innerhalb der Parks betrieben werden und die den U233-Brennstoff für Reaktoren ausserhalb des Energieparks produzieren. Dabei würde ein SBR genügen, um etwa vier externe Reaktoren mit Brennstoff zu versorgen, wenn diese optimal ausgelegt sind. Innerhalb dieser Parks würden auch die radioaktiven Abfälle, die hauptsächlich bei der Wiederaufarbeitung anfallen, für die entgeltliche Lagerung konditioniert und wenn möglich an Ort und Stelle entsorgt. Hochaktive Abfälle und hochangereicherter Brennstoff würden nur innerhalb dieser Energieparks gehandhabt, was eine mögliche Gefährdung der Oeffentlichkeit durch Ueberlandtransporte stark reduziert. Diese Idee der Energieparks erschwert nicht nur den Missbrauch von Brennstoff erheblich, sie erlaubt auch eine optimale Ausnützung der vorhandenen Energiereserven. In Abb. 2 ist schematisch die Idee eines möglichen Energieparks veranschaulicht.

Vom politischen Standpunkt aus ist dieser Vorschlag sicher vorerst nicht leicht durchführbar, obwohl es eine vernünftige und sinnvolle Idee ist. Ob wir bereit sind, eine so starke internationale Zusammenarbeit und Kontrolle zu akzeptieren, ist nicht leicht zu beantworten.

Andererseits haben aber bereits viele Nichtatomwaffenstaaten den "Nichtverbreitungsvertrag" unterschrieben und die Wiener Agentur IAEA kontrolliert bereits die Kernmaterialverwendung in Anlagen von 101 Mitgliedstaaten des Atomsperrvertrags und darüber hinaus einzelne Anlagen in nicht dem Abkommen angehörenden Ländern auf Grund bi- oder trilateraler Verträge. Darüberhinaus liegt es in der Rationalität der Sache, dass die Schweiz mit einem Weltenergieverbrauchsanteil von nur 2-3 Promillen ihr Energieproblem nur gemeinsam und durch einen internationalen Konsens lösen kann. So gesehen, stehen die Chancen für internationale Energieparks mit gemeinsam und sicher verwalteter Kernbrennstoffbank, mit gemeinsam betriebener Wiederaufarbeitung und Endlagerung der Abfälle in einer wirtschaftlich sinnvollen Grösse, nicht schlecht.

6. Die Bedeutung nuklearer Daten für den Brennstoffzyklus

International werden zur Zeit grosse Anstrengungen unternommen um alle noch hängigen Fragen zum Thoriumbrennstoffzyklus abzuklären. Auf Anregung Präsident Carters wurde die INFCE (International Nuclear Fuel Cycle Evaluation) gegründet. Alle Studien und Untersuchungen zu möglichen Brennstoffzyklen werden der INFCE zur Verfügung gestellt mit dem Ziel, verschiedene Vorschläge schnell und objektiv miteinander zu vergleichen. Neue Brennstoffzyklen werden meistens mit dem heute bestbekannten, dem Pu239-U238-Zyklus, verglichen, und zwar nicht nur vom physikalisch-technischen Standpunkt aus, auch politische, ökologische, gesellschaftliche und sicherheitstechnische Punkte werden berücksichtigt.

Um Brennstoffzyklen miteinander vergleichen zu können, sollten alle wichtigen Entscheidungsgrössen verschiedener Zyklen mit ähnlicher Genauigkeit berechnet werden können. Diese Forderung bedingt, dass die für diese Studien notwendigen nuklearen Datensätze vergleichbare Zuverlässigkeit haben. Um diese Bedingung zu erfüllen, ist es notwendig, nukleare Datensätze zu überprüfen. Sogenannte integrale Experimente sind dafür eine wichtige Hilfe. Dabei werden grundlegende Reaktorparameter experimentell ermittelt und mit den berechneten Werten verglichen. Die Reaktorordnung muss bei solchen Experimenten so einfach sein, dass Unterschiede zwischen berechneten und gemessenen integralen Parametern hauptsächlich durch die in der Rechnung benutzten Kerndaten verursacht werden und Unsicherheiten auf Grund der Rechenmethoden klein sind. Ein wichtiger integraler Parameter für den Pu239-U238-Zyklus ist zum Beispiel das Verhältnis zwischen Neutroneneinfang in U238 und der Spaltung von Pu239. Will man für einen SBR den effektiven Neutronenmultiplikationsfaktor (k_{eff}) auf 1 % und die Konversionsrate auf 3 % genau berechnen - diese Genauigkeiten werden heute von Reaktorbetreibern erwünscht -, muss dieser Wert auf 1 % genau bekannt sein.

Für den Pu²³⁹-U²³⁸-Brennstoffzyklus sind bereits umfangreiche Messungen durchgeführt worden, um die Güte der nuklearen Parameter dieses Zyklus zu testen. Für den U²³³-Th²³²-Zyklus, vor allem für dessen Einsatz in Schnellen Reaktoren, sind bis heute relativ wenig integrale Experimente ausgeführt worden. Es sind deshalb in der nächsten Zeit noch spezifische Untersuchungen notwendig, um die nuklearen Daten des U²³³-Th²³²-Zyklus zu testen und eventuell zu verbessern. Dies betrifft vor allem eine Überprüfung der wichtigsten Wirkungsquerschnittsdaten. Dazu eignet sich besonders die Bestimmung der entsprechenden Reaktionsraten, die über das Neutronenspektrum eines Reaktors gemittelten Wirkungsquerschnitte. Die entscheidenden Größen für den U²³³-Th²³²-Zyklus sind Einfangs-, Spalt- und (n,2n)-Raten für Thorium sowie Einfangs- und Spaltquerschnitte für U²³³ und Protactinium (Pa).

7. Ueberprüfung der Thorium-Daten am Reaktor PROTEUS

Zu Beginn dieses Jahres wurde am PROTEUS-Reaktor, der von der Physikabteilung des Eidg. Instituts für Reaktorforschung (EIR) in Würenlingen betrieben wird ein Messprogramm gestartet, das einige wichtige Beiträge zur Ueberprüfung der nuklearen Daten des Thoriumzyklus liefern wird. Dieses Programm wurde in enger Zusammenarbeit mit dem Oak Ridge National Laboratory in den USA ausgearbeitet und ist ein Teil des sogenannten "Umbrella Agreement", einem Forschungsprogramm der USA, Frankreichs, Deutschland und der Schweiz über gasgekühlte Reaktoren. Die Ergebnisse dieser Thoriumarbeiten werden auch der INFCE zur Verfügung gestellt.

Diese Arbeiten bilden eine Fortsetzung von Studien zu nuklearen Daten des Pu239/U238-Zyklus für Schnelle Reaktoren, wie sie seit 1972 am PROTEUS-Reaktor durchgeführt werden. PROTEUS ist ein sogenannter Nullleistungsreaktor, er produziert selbst keine Energie und dient ausschliesslich Forschungszwecken. In Bild 3 ist die Reaktorkonfiguration dargestellt. Eine zentrale, selbst unterkritische schnelle Zone (5) wird mit einem ringförmigen thermischen Treiber gekoppelt, um die Kritikalität des Reaktors zu erreichen. Diese Anordnung erlaubt eine Reduktion des Spaltinventars um ca. einen Faktor 20 - 30 gegenüber demjenigen eines grossen Schnellen Brutreaktors. Die schnelle Reaktorzone besteht aus ca. 2000 Brennstoffstäben mit einer PuO₂/UO₂-Mischung, welche wie in einem gasgekühlten Schnellen Brutreaktor angeordnet sind. Der thermische Treiber ist in eine D₂O- und eine graphitmoderierete Zone unterteilt. Beide Zonen enthalten 5 % angereicherten UO₂-Brennstoff. Zwischen dem D₂O-Treiber und der schnellen zentralen Reaktorzone ist eine Pufferzone aus U-Metallstäben eingebaut, um die aus dem Treiber einfallenden thermischen Neutronen einzufangen und sie in schnelle Spaltneutronen umzuwandeln. Dadurch wird ein Teil der Leckverluste aus der schnellen Zone kompensiert. Eine optimale Zoneneinteilung ermöglicht eine gute An-

näherung des zentralen Neutronenspektrums an dasjenige eines gasgekühlten schnellen Leistungsreaktors, ein entscheidendes Kriterium, um relevante Experimente für diesen Reaktortyp durchzuführen.

Eine bewegliche zentrale Kolonne (6) kann aus dem Reaktorkern ausgefahren und ausgewechselt werden. Den Experimenten entsprechend wird sie mit Messdetektoren bestückt und nachher wieder in die schnellen Zone eingefahren.

Bei bisherigen Experimenten am PROTEUS wurden hauptsächlich wichtige physikalische Parameter von Gittern gasgekühlter Brüter untersucht. Ein Vergleich der gemessenen mit berechneten Werten dient im Falle einfacher Gitteranordnungen als wichtiger Test für die benutzten Datensätze, bei komplizierterem Gitteraufbau lassen sich auch die verwendeten Rechenmethoden und Modelle überprüfen. Sind die Vergleiche befriedigend, können Methoden und Daten bei der Auslegung künftiger Leistungsreaktoren benutzt werden, andernfalls geben die Ergebnisse wichtige Hinweise auf Fehler in den Berechnungsmethoden und Datensätzen.

8. Das PROTEUS-Thoriumprogramm

Nach der bisherigen Planung werden in vier verschiedenen Gitteranordnungen Messungen zum Thoriumzyklus durchgeführt.

Das Thorium steht in Form gesinterter Thoriumoxydkügelchen von rund 0.4 mm Durchmesser zur Verfügung. 200 kg ThO_2 wurden in Stahlhüllen von 335 mm Länge und 7 mm Durchmesser abgefüllt und luftdicht verschlossen. Diese ThO_2 -Zigarren lassen sich in die üblichen Brennstoffstabhüllen des PROTEUS einbauen, womit die grosse Flexibilität beim Aufbau der zentralen Testzone im Reaktor gewährt bleibt.

In der ersten Gitterkonfiguration wurde die zentrale schnelle Zone des PROTEUS-Reaktors mit PuO_2/UO_2 gefüllten Stäben beladen. Diese Anordnung entspricht dem Standardaufbau der Brennstoffzone eines gasgekühlten Brütters. Im Zentrum dieser Zone wurden nun die wichtigsten Reaktionsraten für Thorium und U233 gemessen, nämlich Einfangs-, Spalt- und $(n,2n)$ -Reaktion.

Dünne Folien aus Thorium und U233 wurden zwischen einzelnen Brennstoffpellets montiert und bestrahlt, um danach mittels Gammaskopie die Reaktionsraten zu bestimmen (Bild 4). Mit diesen Messungen lassen sich die Thorium- und U233-Wirkungsquerschnitte direkt überprüfen, da das Neutronenspektrum im Reaktorzentrum nicht von den zu untersuchenden Wirkungsquerschnitten beeinflusst wird.

In einer zweiten Gitteranordnung wurde ein Drittel der PuO_2/UO_2 -Stäbe durch ThO_2 -Stäbe ersetzt. Thoriumoxyd als Brutmaterial in der zentralen Brennstoffzone bewirkt ein weiches Neutronenspektrum und eine Reaktivitätsabnahme dieser Zone gegenüber einer reinen PuO_2/UO_2 -Anordnung. Messungen der wichtigsten Reaktionsraten in Uran und Thorium, die experimentelle Bestimmung des Neutronenspektrums und der Reaktivitätswerte wichtiger Materialien

im Zentrum des Gitters vervollständigten das Messprogramm. In diesem Gitter lassen sich nebst den eigentlichen Wirkungsquerschnittsdaten für Thorium auch dessen Selbstabschirmungseffekt überprüfen. Dieses Phänomen tritt immer auf, wenn grössere Mengen desselben Materials im Reaktor vorhanden sind, und führt zu einer Reduktion der Reaktionsraten pro Thoriumatom.

In zwei weiteren Gitteranordnungen sollen Brutzonen, die nur Thoriumoxyd enthalten, eingebaut werden. Geplant ist die Konstruktion einer zentralen und einer axialen Zone aus ThO_2 . Diese Trennung von spaltbarem Brennstoff und Brutmaterial erhöht die Konversionsrate des Reaktors gegenüber einer Anordnung mit homogener Vermischung von Spalt- und Brutmaterial in der eigentlichen Brennstoffzone. In diesen "heterogenen" Gitterkonfigurationen interessiert insbesondere der relative Verlauf der Reaktionsraten innerhalb der ThO_2 -Zonen und im Uebergangsbereich zwischen Thorium und PuO_2/UO_2 -Brennstoffzone. In ausgedehnten Messerien werden radiale und axiale Traversen der wichtigsten Uran- und Thoriumreaktionen gemessen. Diese Ergebnisse dienen einerseits zur Überprüfung der verwendeten Rechenmethoden und -modelle, andererseits erlauben sie wichtige Rückschlüsse auf die Neutronen- und Leistungsverteilung innerhalb der Brut- und Spaltzone zu ziehen. Solche Daten werden zur optimalen Auslegung von Leistungsreaktoren benötigt.

Die Berechnungen, womit die experimentellen Ergebnisse verglichen werden, erfolgen in mehreren Schritten (Abb. 5). Ausgehend von den nuklearen Datenbibliotheken ENDF/B-4 werden in mehreren Zwischenstufen Wirkungsquerschnitte für Ganzreaktorrechnungen erzeugt. Erst diese Rechnungen liefern schliesslich die

gesuchte Neutronenflussverteilung im Reaktor, womit dann Reaktionsraten, Neutronenspektren und Reaktivitätswerte berechnet werden können.

Aus den vorliegenden Resultaten ist ersichtlich, dass die berechneten Einfangsraten in Thorium mit den gemessenen Werten innerhalb des Messfehlers von 2% übereinstimmen. Dieses Ergebnis ist bedeutungsvoll, da die Thoriumseinfangsrate wesentlich die Konversionsrate des Reaktors beeinflusst. Die berechneten Spaltraten in Thorium unterschätzen andererseits aber die gemessenen Grössen um rund 10-15%. Da die Spaltung der Thoriumkerne selbst in Schnellen Reaktoren die Neutronenbilanz nur unwesentlich beeinflusst, brauchen die Spaltraten nicht genauer bekannt zu sein.

Detaillierte und vollständige Ergebnisse werden an internationalen Tagungen vorgetragen und interessierten Wissenschaftler zur Verfügung gestellt.

9. Schlussbemerkung

Mit den heute verfügbaren nuklearen Thoriumdaten wurden in verschiedenen Ländern Studien zum U233-Th232-Brennstoffzyklus durchgeführt, die zeigten, dass dieser eine technisch und auch wirtschaftlich sinnvolle Ergänzung oder vielleicht sogar eine Alternative zum Pu239-U238-Zyklus darstellen könnte. Bei Berücksichtigung der Proliferationsgesichtspunkte bietet der Thoriumzyklus vor allem bei Anwendung der denaturierten Variante, einige Vorteile gegenüber dem Plutoniumzyklus. Um diese Vorzüge und die Wirtschaftlichkeit der Brennstoffzyklen zuverlässiger bestimmen zu können, sind für die wichtigsten Nuklide bessere nukleare Daten notwendig. In diesem Zusammenhang sind die PROTEUS-Arbeiten am EIR ein wichtiger und solidarischer Beitrag zu den weltweiten Anstrengungen, nukleare Datensätze für den Thoriumzyklus zu überprüfen und zu vervollständigen.

Sind nach dieser ersten Phase zuverlässige nukleare Datensätze vorhanden so sind noch weitere Entwicklungsarbeiten vor allem für die Wiederaufarbeitung thoriumhaltigen Brennstoffs notwendig, bevor der Thoriumzyklus kommerziell eingesetzt werden kann. Es wurde geschätzt, dass noch gut 15 Jahre lang Forschungs- und entwicklungsarbeiten notwendig sind, um dieses Ziel zu erreichen.

Die weltweiten Anstrengungen auf dem Gebiet der Energieforschung und speziell hier zum Problem des Thoriumzyklus zeigen aber das grosse Interesse der meisten Länder, diese proliferationsresistentere Option als sinnvolle Ergänzung oder Alternative zum Plutoniumzyklus offen zu halten. Abschliessend betonen wir aber nochmals ausdrücklich, dass unseres Erachtens die Lösung des Problems der Proliferation in allererster Linie eine politische Aufgabe und erst in zweiter Linie eine technische Aufgabe darstellt. Es wäre wünschenswert, wenn in Zukunft auf beiden Ebenen diese Aspekte diskutiert würden und ein Konsens herbeigeführt

werden könnte, der es dann erlaubt die Kernspaltenergienutzung wirklich zu einer allgemein akzeptierten und weltweit tragenden Säule der Energieversorgung in einer nachfossilen Aera zu machen.

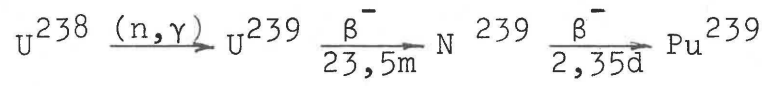
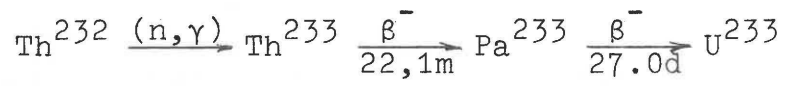


Abb. 1: Umwandlung von Thorium und Uran in Spaltmaterial

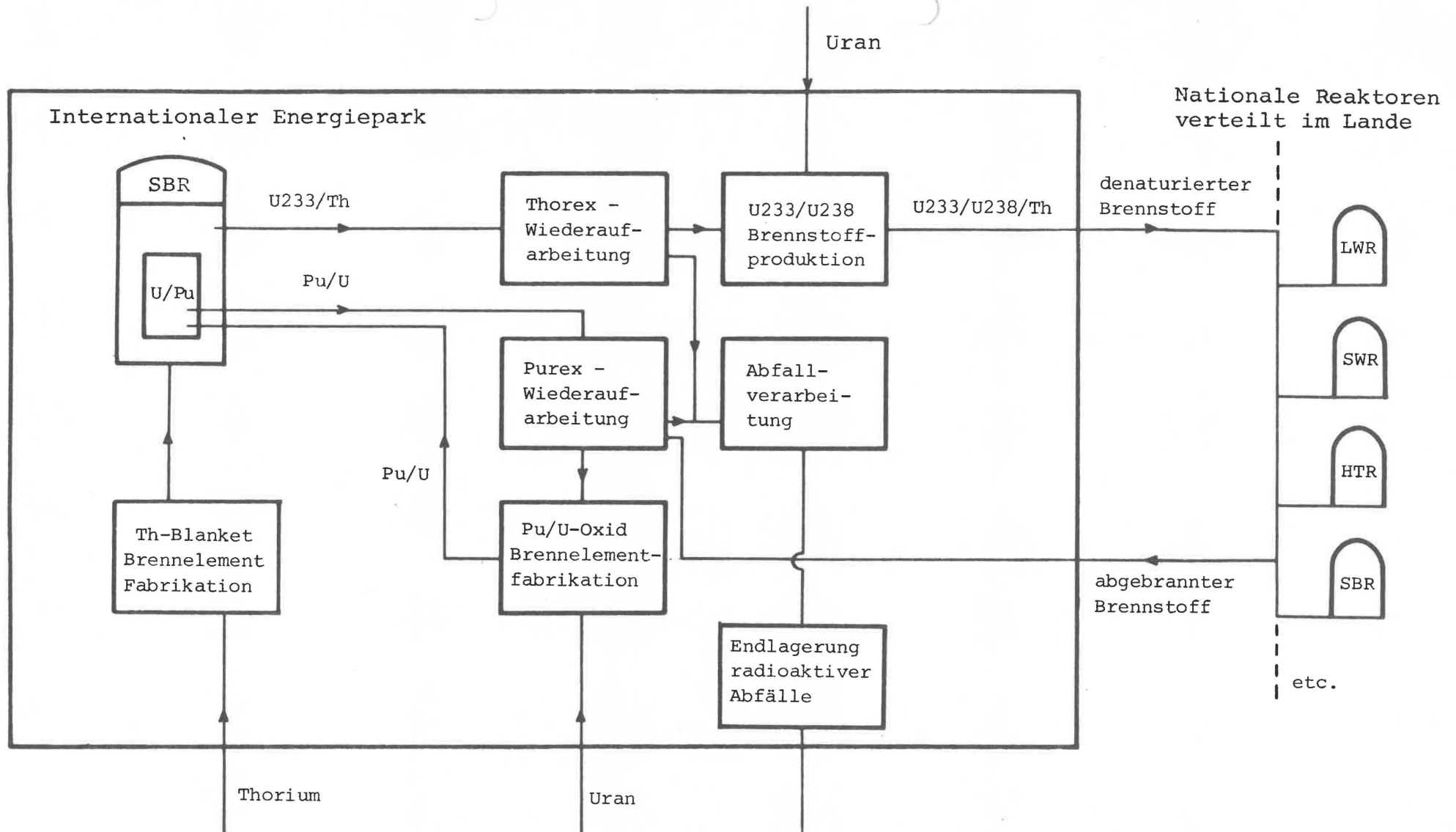
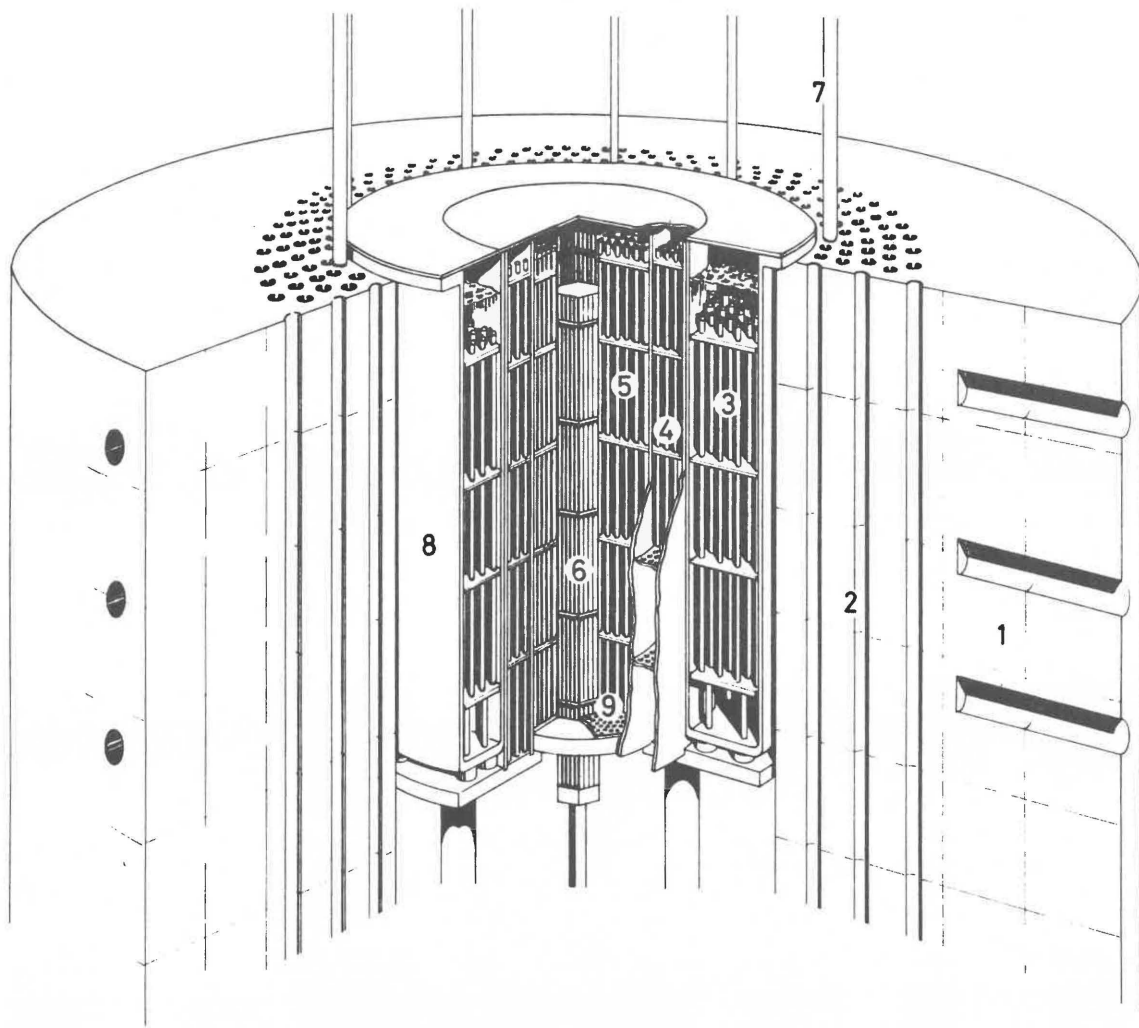


Bild 2 : Schema eines Energieparks, das eine Reaktorpopulation mit denaturiertem U233/U238 Brennstoff ausserhalb des Parks ver- und entsorgt. Die in den Energiepark fliessenden Materialströme sind nur abgebrannte Brennelemente sowie Natururan und Thorium. Zu beachten^{da} ist der Plutoniumfluss ein im Energiepark geschlossener Materialstrom darstellt und so leichter einer internationalen Kontrolle unterstellt und von ihr überwacht werden kann.



- | | |
|--------------------------------|-------------------------------|
| 1 Graphitreflektor | 6 Testkolonne |
| 2 Graphittreiberzone | 7 Sicherheitsstab |
| 3 D ₂ O-Treiberzone | 8 Moderatortank |
| 4 Pufferzone (U-Metall) | 9 Auswechselbare Gitterplatte |
| 5 Schnelle Zone | |

Bild 3 : Aufbau des Reaktors PROTEUS



Bild 4 : Ausmessung bestrahlter Folien.

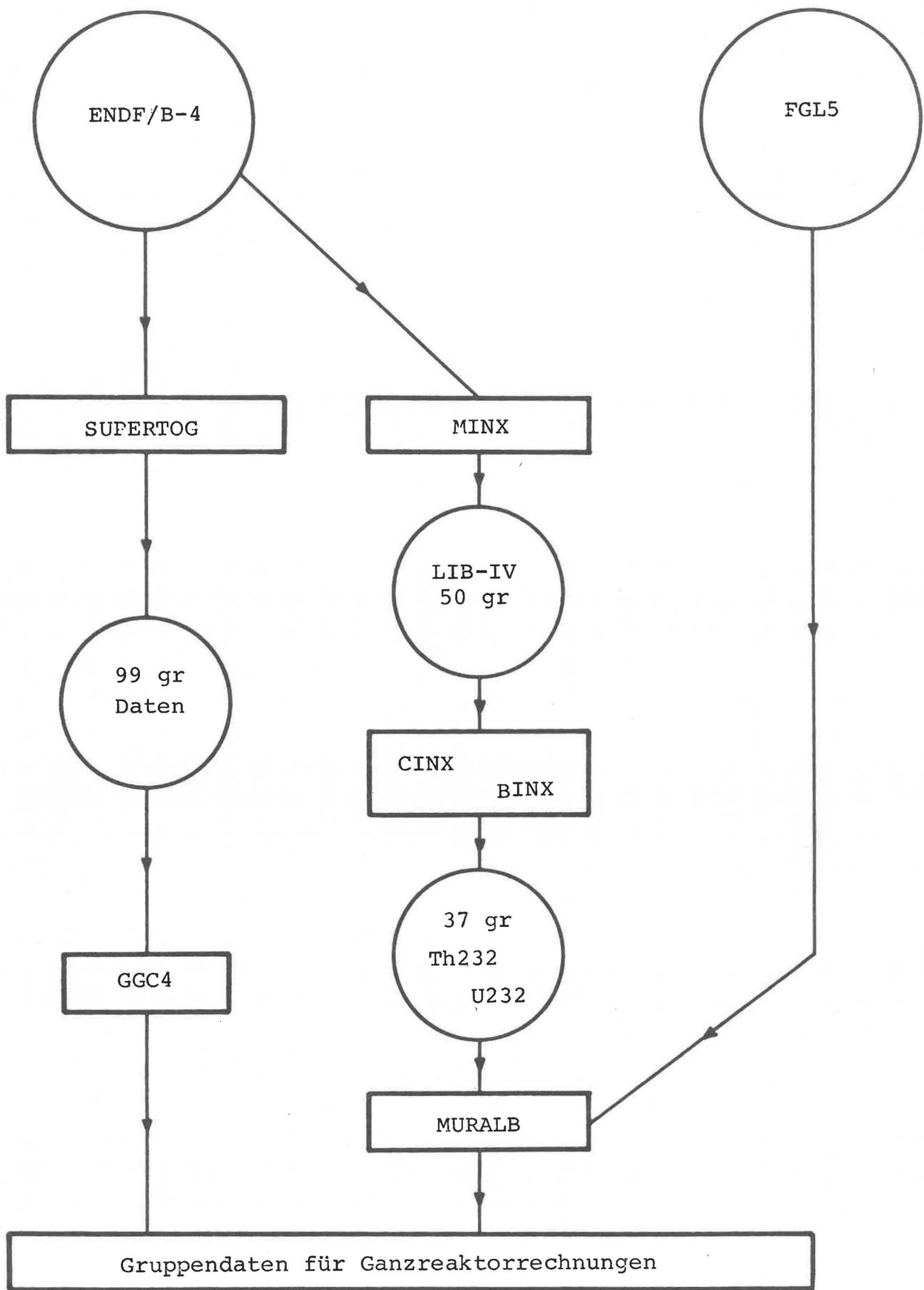


Bild 5 : PROTEUS-Rechenschema

- Bibliotheksdaten
- Computerprogramme