# **MODERNE STRATEGIEN ZUR BESEITIGUNG VON PLUTONIUM**

**G. Keßler<sup>\*</sup>, K. Gompper<sup>\*\*</sup>** <sup>\*</sup>Institut für Neutronenphysik und Reaktortechnik, <sup>\*\*</sup>Institut für Nukleare Entsorgungstechnik, Forschungszentrum Karlsruhe GmbH

#### 1. Einleitung

Plutonium (Pu) entsteht in den heute überwiegend betriebenen Leichtwasserreaktoren (LWR) aus dem natürlichen Uranisotop 238 durch Einfang von Neutronen. Das dabei gebildete kurzlebige U-239<sup>1</sup> zerfällt über das ebenfalls kurzlebige Np-239<sup>3</sup> zum langlebigen Pu-239. Ein Teil davon wird durch Neutronen gespalten während aus einem anderen Teil des Pu-239 und durch weiteren Neutroneneinfang die höheren Plutoniumisotope Pu-240, Pu-241, Pu-242 gebildet werden.

Aus zwei Gründen ist Plutonium wohl dasjenige radioaktive Element, das am nachhaltigsten in der öffentlichen Diskussion steht. Der eine Grund ist seine Radiotoxizität als Alphastrahler, verbunden mit seiner Langlebigkeit (t\_Pu-239 = 24.110 Jahre). Der andere Grund ist, dass Plutonium wegen seines hohen Energieinhaltes sowohl zur Energiegewinnung in Kernkraftwerken als auch - genauso wie U-233 und höchstangereichertes U-235 - zur Herstellung von Kernwaffen geeignet ist.

# 2. Plutoniumbestand

# 2.1 Plutonium aus Kernkraftwerken

Zur Zeit produzieren weltweit 436 Kernkraftwerke rund 16 % des elektrischen Stromes. 36 Kernkraftwerke sind im Bau, davon 34 in Osteuropa und Asien<sup>2</sup>. Bis heute sind in den Kernkraftwerken der Welt rund 222 000 t abgebrannter Kernbrennstoff angefallen. Pro Jahr kommen zur Zeit knapp 9500 t dazu<sup>3</sup>. zeigt die zeitliche Entwicklung, wobei für die Zukunft angenommen wurde, dass alle laufenden Reaktoren entsprechend ihrer vorgesehenen Lebensdauer betrieben werden. Wie Abb. 1 ebenfalls zeigt, sind mittlerweile durch die Kernenergienutzung aus den verschiedenen Reaktortypen weltweit rund 1400 Tonnen Plutonium entstanden, z. Zt. kommen pro Jahr rund 70 t dazu. Ein Teil dieses Plutoniums wurde durch Wiederaufarbeitung zurückgwonnen, der größte Teil befindet sich noch in den abgebrannten Brennelementen.

In Deutschland sind zur Zeit 19 Reaktoren am Netz, die mit einer installierten Leistung von 22 GWe rund ein Drittel zur deutschen Stromversorgung beitragen. Bis heute sind rund 8400 t abgebrannter Kernbrennstoff mit etwa 83 t Plutonium angefallen. Pro Jahr kommen knapp 450 t mit etwa 4,7 t Plutonium dazu<sup>5</sup>.



## 2.2 Plutonium aus Kernwaffen

Der Bestand an militärischem Plu-tonium (weltweit) wurde für 1990 auf knapp 260 t geschätzt<sup>6</sup>. Im Rahmen des 1993 geschlossenen START-II Abkommens sollen die strategischen und taktischen Kernwaffen bis zum Jahr 2003 beträchtlich reduziert werden. Im Jahr 1998 haben die USA und Russland beschlossen, dass beide je 50 t Waffenplutonium aus ihrem militärischen Lagervorrat herausnehmen und so behandeln, dass dieses Plutonium nicht mehr zur Kernwaffenherstellung verwendet werden kann<sup>7</sup>

<sup>&</sup>lt;sup>1</sup> U: Uran, Np: Neptunium

<sup>&</sup>lt;sup>2</sup> IAEA-Worldatom - Nuclear Power Plant Information (2000), (http://www.iaea.org/worldatom)

<sup>&</sup>lt;sup>3</sup> D. Albright, F. Berkhout, W. Walker: "World Inventory of Plutonium and Highly Enriched Uranium". Stockholm International Peace Research Institute, Oxford University Press, Oxford (1993

<sup>&</sup>lt;sup>4</sup> ebenda

<sup>&</sup>lt;sup>5</sup> J. I. Kim, K. Gompper, K.D. Closs, G. Kessler, D. Faude: German Approaches to Closing the Nuclear Fuel Cycle and Final Disposal of HLW; Journal of Nuclear Materials 238 (1996) 1-10

<sup>&</sup>lt;sup>6</sup> W. Walker: "World Inventories of Plutonium" in Managing the Plutonium Surplus: Applications and Technical Options, edited by R.L.Garwin et al., Nato ASI Series, Kluwer Academic Publishers, London (1994)

<sup>&</sup>lt;sup>7</sup> National Academy of Sciences: Management and Disposition of Excess Weapons Plutonium, Committee on Inter-

#### Plutonium-Management 3.

Zur Zeit werden international bei der zivilen Nutzung der Kernenergie zwei Entsorgungswege beschritten, einerseits die permanente Endlagerung der abgebrannten Brennelemente, man spricht hier von der Direkten Endlagerung, und andererseits ihre Wiederaufarbeitung mit dem Ziel. Uran und Plutonium für die weitere Energiegewinnung in Kernkraftwerken zu rezyklieren.

#### 3.1 Direkte Endlagerung

Für die Direkte Endlagerung ("Once-Through") haben sich eine Reihe von Ländern entschieden. Allen voran die USA<sup>8</sup>, aber auch beispielsweise Kanada oder Schweden. Bei der Direkten Endlagerung werden die abgebrannten Kernbrennstoffe nach ihrer Entladung aus dem Reaktor zunächst in den sog. Abklingbecken direkt am Reaktorstandort zwischengelagert. Nach dem Abklingen der kurzlebigen Radionuklide werden die Brennelemente in dickwandige Behälter verpackt und nach einer hinreichend langen Zwischenlagerzeit für die Endlagerung konditioniert.

In Deutschland, wo seit der Änderung des Atomgesetzes 1994 (Artikelgesetz) die Direkte Endlagerung abgebrannter Brennelemente ebenso als Entsorgungsnachweis gilt wie die Wiederaufarbeitung, stehen für die Zwischenlagerung die Einrichtungen in Ahaus und Gorleben zur Verfügung.

# 3.2 Plutoniumrezyklierung

Nur ein Teil der Kernenergie nutzenden Länder, wie z.B. Belgien, England, Frankreich, Schweiz, Japan und Russland, aber auch Deutschland, sahen in Plutonium eine nutzbare Energiequelle und verfolgten mit der Wiederaufarbeitung abgebrannter Brennelemente das Ziel, es wieder zur Energiegewinnung einzusetzen. In einigen Ländern, wie der Schweiz, aber auch Deutschland, wird gegenwärtig über ein Verbot der Wiederaufarbeitung nachgedacht.

Bei der Wiederaufarbeitung wird allgemein der PUREX<sup>9</sup>-Prozess angewandt, der in den 40er Jahren entwickelt und in den letzten Jahrzehnten immer weiter optimiert wurde. Der abgebrannte Kernbrennstoff wird in Salpetersäure aufgelöst. Uran und Plutonium werden extrahiert

National Academy of Sciences: Management and Dispositon of Excess Weapons Plutonium: Reactor Related Options, Committee on International Society and Arms Control

und die Spaltprodukte aber auch die sogenannten Minoren Actiniden (Np. Am. Cm) gelangen in den hochradioaktiven Abfall, der nach heutiger angewandter Technik durch Verglasung in ein endlagerfähiges Produkt überführt wird. Zur Zeit gibt es weltweit eine Wiederaufarbeitungskapazität für Uranoxid-Brennstoff von rund 3300 tSM (tSM = Tonne Schwermetall Uran bzw. Plutonium) pro Jahr<sup>10</sup>. Vergleicht man diese Zahl mit der jährlich auf der Welt anfallenden Menge an abgebranntem Brennstoff von rund 9500 t (s. 2.1), so zeigt sich, dass mit der derzeit vorhandenen Wiederaufarbeitungskapazität etwa ein Drittel der jährlich anfallenden abgebrannten Brennelemente aufgearbeitet werden könnte.

Die größten Anlagen stehen in Frankreich und Großbritannien mit insgesamt rund 2800 tSM/a. In diesen Anlagen werden auch Brennelemente aus anderen Ländern, u.a. aus Deutschland, aufgearbeitet. Weltweit wurden in den letzten 40 Jahren etwa 77.000 t abgebrannter Brennstoff wiederaufgearbeitet<sup>11</sup>.

Zur Zeit wird die Strategie der Einmalrezyklierung von Plutonium verfolgt, d. h. das bei der Wiederaufarbeitung zurückgewonnene Plutonium wird zu (U, Pu)-Mischoxidbrennele-menten (MOX-BE) verarbeitet und wieder zur Energieerzeugung in die Reaktoren zurückgeführt. Danach sollen die abgebrannten MOX-BE der Direkten Endlagerung zugeführt werden. Ende 1998 betrug die Fertigungskapazität für MOX-Brennelemente weltweit rund 220 t SM pro Jahr. Für 2010 wird eine Kapazität von knapp 600 t SM pro Jahr angestrebt. In Belgien, Deutschland, Frankreich, Japan und der Schweiz hatten 1998 40 Kernkraftwerke (Druckwasserreaktoren und Siedewasserreaktoren) die Genehmigung, MOX-BE einzusetzen, 13 weitere haben die Genehmigung beantragt. In 33 Reaktoren werden MOX-BE bereits eingesetzt<sup>12</sup>.

In Deutschland stellt sich die Plutoniumsituation folgendermaßen dar: Geht man bis 2010 von knapp 13.000 Tonnen abgebrannter Brennelemente in Deutschland aus<sup>13</sup> (s. Abb. 1) und nimmt weiter an, dass die jetzigen Wiederaufarbeitungsverträge mit Frankreich und England von insgesamt rund 7000 t<sup>14</sup> abgearbeitet werden, dann stehen im Jahr 2010 zusätzlich noch etwa 6000 t abgebrannte Brennelemente mit ca. 60 t Plutonium zur Direkten Endlagerung an. Dazu kommt noch das rezyklierte Plutonium aus der bisher geplanten Einmalrezyklierung, dessen Menge sich durch den Einsatz in MOX-BE um etwa ein Drittel verringert haben wird (s. Abb. 2). Dies sind nochmals rund 45 Tonnen, D.h. aus der deutschen Kernenergienutzung bis 2010 fallen rund 100 t Plutonium in abgebrannten BE (UOX und MOX) zur Endlagerung an.

national Society and Arms Control; National Academy Press, Washington DC, USA, 1994;

National Academy Press, Washington DC, USA, 1995.

<sup>&</sup>lt;sup>8</sup> In den USA sieht man die Möglichkeit der Rückholung endgelagerter abgebrannter Brennelemente vor

<sup>&</sup>lt;sup>9</sup> PUREX: Plutonium and Uranium Recovery by Extraction

<sup>&</sup>lt;sup>10</sup> Nuclear Fuel Cycle and Reactor Strategies: Adjusting to New Realities, IAEA-Proceeding Series, International Atomic Energy Agency, Wien (1997); Status and trends in spent fuel reprocessing: Proceedings of an Advisory Group meeting held in Vienna, 7-10 September 1998, IAEA, Wien (1999)

<sup>&</sup>lt;sup>11</sup> ebenda (Advisory Group meeting in Vienna) 12 ebenda

<sup>&</sup>lt;sup>13</sup> Annahme: Die deutschen Kernkraftwerke werden weiterbetrieben wie bisher

<sup>&</sup>lt;sup>14</sup> Altverträge: 5540 t; Neuverträge: 1430 t



#### 3.3 Plutoniumentsorgung

Plutonium aus Leistungsreaktoren hat eine andere Isotopenzusammensetzung als für Waffenzwecke hergestelltes Plutonium. Waffenplutonium enthält zu über 95% die spaltbaren Isotope Pu-239 (ca. 94%) und Pu-241(ca. 1,3%). Bei Plutonium aus modernen Leichtwasserreaktoren sind es nur rund 67% Pu-239 und Pu-241. Trotzdem ist Reaktorplutonium, wenn auch nur eingschränkt, prinzipiell waffenfähig und muss hinsichtlich Sicherheits- und "Non-Proliferations"- Fragen langfristig überwacht werden. Dies gilt insbesondere, wenn das Plutonium in abgetrennter, reiner Form vorliegt. Überlegungen zur Entsorgung von Waffenplutonium können deshalb auch auf Reaktorplutonium übertragen werden<sup>16</sup>.

Die Abrüstung atomarer Waffen und die Entscheidung Russlands und der USA, je 50 t Waffenplutonium aus ihrem militärischen Vorrat herauszunehmen, führte zu Überlegungen, wie dieses Plutonium vor einer missbräuchlichen Nutzung geschützt werden kann ("Non-Proliferation"). Auf diese Überlegungen soll an dieser Stelle nicht detailliert eingegangen werden, vielmehr wird auf die Literatur verwiesen<sup>17</sup>

Russland sieht in Waffenplutonium einen Energieträger, der durch Einsatz als MOX-Brennstoff in Kernkraftwerken genutzt werden soll. In den USA steht vor allem die Verhinderung der missbräuchlichen Nutzung des Plutoniums im Vordergrund. Endlagerfähige Plutonium-Verwahrformen, wie z.B. Glas oder keramische Materialien sollen selbstschützend sein, wie es abgebrannte Brennelemente auf Grund ihrer hohen Dosisleistung sind (Spent-Fuel bzw. Self-Protection Standard). Nach neuesten Plänen sollen in den USA, wo die zivile Wiederaufarbeitung seit 1980 verboten ist, etwa 2/3 der 50 t Waffenplutonium ebenfalls als MOX-Brennstoff in LWR's eingesetzt werden. Dadurch soll neben dem Ziel der teilweisen Vernichtung des Plutoniums, auch der sogen. Self-Protection Standard (radiologischer Selbstschutz) des Waffenplutoniums erreicht werden. Außerdem werden u.a. Keramiken zur Immobilisierung von chemisch verunreinigtem Plutonium aus der Waffenproduktion untersucht<sup>18</sup>. Diese Keramiken sollen nach dem sog. Can-in-Can Konzept in große Kokillen eingebracht werden und zur "Self-Protection" mit hochradioaktivem Glasprodukt aus der Verglasung von hochradioaktiven Abfällen aus der militärischen Wiederaufarbeitung übergossen werden.

In Deutschland ist vorgesehen, das bei der Wiederaufarbeitung zurückgewonnene Plutonium zu MOX-Brennelementen zu verarbeiten (im Ausland) und wieder in Kernreaktoren zur Energiegewinnung einzusetzen. Das geht jedoch nur, wenn die Reaktoren weiter betrieben werden. Für den MOX-Einsatz in Leichtwasserreaktoren besteht in Deutschland langjährige Betriebserfahrung. Zwölf der deutschen Kernkraftwerke haben die Genehmigung zum Einsatz von

<sup>&</sup>lt;sup>15</sup> G. Kessler, J. I. Kim, K. Gompper: ebenda

<sup>&</sup>lt;sup>16</sup> G. Kessler, J. I. Kim, K. Gompper: "Wohin mit dem deutschen Plutonium" atomwirtschaft-atomtechnik, 44 (1999) S. 156 – 164; National Academy of Sciences, Comm. on Internat. Society and Arms Control: ebenda

<sup>&</sup>lt;sup>17</sup> National Academy of Sciences, Comm. on Internat. Society and Arms Control: ebenda;

R. L. Garwin, M. Grubb, E. Matanle (eds.): Managing the Plutonium Surplus: Applications and technical Options, NATO ASI Series, Kluwer Academic Publishers (1994)

E. R. Merz, C. E. Walter (Eds.): Disposal of Weapon Plutonium, Approaches and Prospects, NATO ASI Series 1996 und 1997, Kluwer Academic Publishers;

Management of Separated Plutonium - The Technical Options; Nuclear Energy Agency, OECD (1997);

Safe Handling and Storage of Plutonium, Safety reports Series No. 9, International Atomic Energy Agencey, Wien (1998);

W. Stoll: What are the Options for Disposition of Excess Weapons Plutonium?, Mat. Res. Soc. Bull. 23 (1998)

<sup>&</sup>lt;sup>18</sup> W. L. Gong, W. Lutze, R.C. Ewing: Zirconia Ceramics for Excess Weapons Plutonium Waste, J. Nucl. Mat. 277 (2000)

MOX-Brennstoff, zehn setzen MOX-Brennstoff ein und vier haben die Genehmigung für den Einsatz von MOX-Brennstoff beantragt<sup>19</sup>.

Vor dem Hintergrund der Ausstiegsdebatte in Deutschland wurden ebenfalls Überlegungen angestellt, wie das Plutonium aus deutschen Kernkraftwerken, das bei der Wiederaufarbeitung von abgebrannten Brennelementen in LaHague und Sellafield angefallen ist, als Alternative zum Einsatz in MOX-Brennelementen in eine endlagerfähige Form gebracht werden kann. Die Verglasung von Plutonium, so konnte gezeigt werden<sup>20</sup>, ist wirtschaftlich und technisch unrealistisch<sup>21</sup>. Eine andere Studie des Öko-Instituts Darmstadt<sup>22</sup> favorisiert sog. MOX-Lagerstäbe, die zusammen mit abgebrannten Brennelementen endgelagert werden sollen.

### 3.3.1 Plutoniumproblematik bei der Endlagerung

Bei der Direkten Endlagerung (Once-Through) gelangen mit jeder Tonne abgebranntem LWR-Kernbrenn-stoff etwa 10 kg Plutonium ins Endlager. Durch Einmalrezyklierung des Plutoniums wird die Plutoniummenge um ein Drittel verringert (s.o.). Endlager mit abgebrannten Kernbrennstoffen müssen wegen des hohen Spaltstoffanteils auch in der Nachbetriebsphase praktisch unbegrenzt überwacht werden<sup>23</sup>. Es muss sichergestellt sein, dass jede Tätigkeit, z. B. das Umladen, die untertägige Wiederaufarbeitung oder die Rückholung von spaltbarem Material, rechtzeitig entdeckt wird. Am Anfang halten die eingelagerten abgebrannten Brennelemente wegen ihrer Dosisleistung zwar den sogenannten "self protection standard" ein, aber bedingt durch den Zerfall der Spaltprodukte ist dieser nach einigen hundert Jahren nicht mehr gegeben. Auch über

sehr lange Zeiträume ergibt sich keine Änderung der Spaltmaterial-Problematik, da das häufigste spaltbare Plutonium-Isotop 239 zu ebenfalls spaltbarem U-235 ( $t_{1/2} = 7 \times 10^8$ Jahre) zerfällt. Eine Akkumulation des spaltbaren Materials zu kritischen Massen durch langfristige geologische Vorgänge in einem Endlager, so dass sich selbsterhaltende Kettenreaktionen ausbilden können, sind zwar sehr unwahrscheinlich, aber dennoch nicht auszuschliessen<sup>24</sup>. Dadurch könnten Änderungen



klidtransport durch Wasserzutritt etc., eintreten.

### 4. Plutoniumvernichtung

im Nahbereich, z.B. die Bil-

dung neuer Wegsamkeiten

(Klüfte) für den Radionu-

Die oben beschriebenen Methoden zur Plutoniumentsorgung, einschließlich der Einmalrezyklierung führen nicht zu einer nachhaltige Entsorgung im Sinne einer Vernichtung des Plutoniums, da bei allen Varianten große Mengen Plutonium ins Endlager gelangen.

Will man als Hauptziel die Plutoniumsvernichtung verfolgen, so muss man die Strategie ändern und von der Einmalrezyklierung zur Mehrfachrezyklierung des Plutoniums übergehen. Bei der Mehrfachrezyklierung muss darauf geachtet werden, dass der Plutonium-Isotopen-Konzentrationsvektor nicht zu schnell an Pu-239 und Pu-241 verarmt (wichtig für zweite und dritte Mehrfachrezyklierung). Zusätzlich muss man bei Leichtwasserreaktoren den MOX-Brennstoff

214000 v2 12000

<sup>&</sup>lt;sup>19</sup> Status and trends in spent fuel reprocessing; Proceedings of an Advisory Group meeting held in Vienna, 7-10 September 1998, IAEA, Wien (1999)

<sup>&</sup>lt;sup>20</sup> G. Kessler, J. I. Kim, K. Gompper: ebenda

<sup>&</sup>lt;sup>21</sup> Geht man von den etwa 22 t deutschen Plutoniums aus, die Ende 1998 in abgetrennte Form vorlagen, so würden bei einer Plutonium-Beladung des Glases von 1 % und bei Verwendung der europäischen Kokillen, die rund 400 kg Glasprodukt enthalten, 6.000 Kokillen anfallen. Die als Folge der bestehenden Wiederaufarbeitungsverträge (Altverträge) aus La Hague und Sellafield zurückzunehmenden HAW-Kokillen belaufen sich auf insgesamt rund 3 500 Stück. Nicht zu unterschätzen ist auch der Bedarf an hochradioaktivem Abfall (HAWC) zur radioaktiven "Vergiftung" des Plutoniums (Self-Protection). Bei einer Glasbeladung von 16 Gew. % HAWC (in Oxidform), wie es bei spielsweise bei der Verglasung des HAWC aus der Wiederaufarbeitungsanlage Karlsruhe (WAK) vorgesehen ist, würden für die 6.000 Kokillen knapp 3.200 m\_ HAWC mit einem Aktivitätsinventar von rund 3,7×10<sup>19</sup> Bq benötigt werden. Um diesen HAWC zu erhalten, müssten rund 9.500 t abgebrannte BE aufgearbeitet werden, wobei ca. 95 t Pu zurückgewonnen würden . Wohin mit diesem Plutonium ?!?

<sup>&</sup>lt;sup>22</sup> Realisierbarkeit der Verglasung von Plutonium zusammen mit hochradioaktiven Abfälle sowie der Fertigung von MOX-Lagerstäben zur Direkten Endlagerung als Alternative zum Einsatz von MOX-Brennelementen. Studie des Öko-Instituts e.V.,Darmstadt, im Auftrag der Freien und Hansestadt Hamburg (1999)

<sup>&</sup>lt;sup>23</sup> IAEA-Report of the Advisory Group Meeting on Safeguards for Final Disposal of Spent Fuel in Geological Repositories, AGM 995, Wien, Dez. 1997;

H. Kranz, H.H. Remagen, K. Rudolf: The German Approach on Safeguards for the Final Disposal of Spent Nuclear Fuel in a Salt Dome; Proceedings DISTEC '98, Hamburg (1998)

<sup>&</sup>lt;sup>24</sup> W. E. Kastenberg et al.: Considerations of Autocatalytic Criticality of Fissile Materials in Geologic Repositories, Nuclear technology, 115, 1996;

R. Papp: GEISHA - Gegenüberstellung von Endlagerkonzepten in Salz und Hartgestein, Forschungszentrum Karlsruhe, FZKA-PTE Nr. 3, 1997

durch U-235 etwas anreichern, um den Kühlmittelkoeffizienten (Voidkoeffizienten) genügend negativ zu halten (etwa ab der dritten Mehrfachrezvklierung)<sup>25</sup>.

Im Folgenden werden verschiedene Szenarien vorgestellt, in denen LWR, die mit Uranoxid-Brennstoff betrieben werden, mit anderen Reaktoren, wie z.B. MOX-Burner, CAPRA-Reaktoren<sup>26</sup> oder Beschleuniger-getriebene unterkritische Einrichtungen (ADS<sup>27</sup>) in einem Pool von Reaktoren kombiniert werden. Dabei wird gezeigt, dass es möglich ist, entstandenes Plutonium zu vernichten. Bei der Betrachtung der Plutoniumvorrats wurde die Dauer des Brennstoffzyklus (10 bzw. 12 Jahre), also die notwendige Zeit vom Entladen des abgebrannten Brennstoffs über die Wiederaufarbeitung bis zur MOX-Brennelementfertigung berücksichtigt.

#### 4.1 Szenario 1: Leichtwasser-Reaktoren als MOX-Burner

Das Forschungszentrum Karlsruhe<sup>28</sup>, die Electricité de France und das Commissariat d'Energie Atomique<sup>29</sup> haben solche Untersuchungen durchgeführt. Man geht dabei u.a. von voll mit MOX-Brennstoff gefüllten LWR's - sogenannten LWR-Pu-Burnern - aus. Deutsche LWR's haben heute bereits erteilte Genehmigungen bis 50% MOX-Befüllung des Reaktorkerns. Voll (100%) mit MOX-Brennstoff gefüllte LWR-Pu-Burner haben etwa die gleichen Reaktivitätskoeffizienten wie mit UOX befüllte LWR's. Ihr Kühlmittelkoeffizient (Voidkoeffizient) ist sogar stärker negativ. Es sind nur geringe Änderung im Abschalt- und Regelsystem eines voll mit MOX gefüllten Burners im Vergleich zu einem UOX-LWR erforderlich<sup>30</sup>.

Man startet bei einem heute üblichen Brennstoffabbrand von 50 GWd/tSM mit einer passend gewählten Untermenge von 8 LWR's mit UOX-Brennstoff. Es kann aber auch mit einem ganzzahligen Vielfachen oder mit einem Teil dieser Untermenge von 8 Reaktoren gerechnet werden. Dann ergeben sich jedoch nur teilweise gefüllte LWR-Pu-Burner und das Szenario wird unübersichtlicher. Der Pool von 8 LWR's ergibt sich aus der Tatsache, dass die UOX-LWR's zunächst das Plutonium für das Anfangsinventar des ersten LWR-Pu-Burners erzeugen und auch das Plutonium für den Aufbau des zugehörigen Brennstoff-kreislaufs bereitstellen müssen. Die

gleiche Forderung ergibt sich bei einem späteren Zubau von weiteren LWR-Pu-Burnern, Für den Fall, dass bereits relativ viel Plutonium aus dem Betrieb und aus Wiederaufarbeitungskampagnen zur Verfügung steht, verkürzt sich die anfängliche Plutoniumproduktions-phase für das Anfangsinventar des ersten LWR-Pu-Burners. Die Zeitachse verschiebt sich in Abb. 4 nach links<sup>31</sup>.

Der Brennstoff der UOX-LWR's wird im Gleichgewichtszyklus alle etwa 1 bis 1,2 Jahre zu einem Fünftel entladen. Nach einer genügenden Abkühlzeit wird er z.B. nach LaHague oder Sellafield transportiert und dort chemisch aufgearbeitet. Anschließend wird in Marcoule oder Sellafield MOX-Brennstoff mit der Pu-Isotopenmischung M1 (Tab. 1) gefertigt. Dies erfordert eine Zykluszeit von etwa 11 Jahren.

Die ersten MOX-Brennelemente mit der Pu-Isotopenmischung M1 werden gesammelt bis eine aus-

Produktion Plutonium 621 10 7UQ 6UQ 5UQ 1 MOX 2 MOX 3 MOX 400 ò źn 40 60 80 100 120 Brennsloffzyklus Zeit / a 11 Jahre Abb. 4: Plutonium-Produktion pro GWe und Jahr in einem Pool aus LWR-UOX und LWR-MOX Reaktoren

BUQ

(100 % MOX-Core)

reichende Anzahl zum Füllen eines ersten LWR-Pu-Burners MOX1 mit einem Inventar von 7200 kg Putot vorhanden ist. Der Pool besteht nun aus 7 UOX-LWR und einem LWR-Pu-Burner (Tab. 2). Dieser LWR-Pu-Burner MOX1 vernichtet pro GWe a etwa 420 kg Plutonium<sup>32</sup>. Nach Erreichen des Zielabbrandes von 50 GWd/tSM werden auch die MOX-Brennelemente aus dem Reaktorkern des MOX1 ausgeladen und nach genügend langer Abkühlzeit nach LaHague (Wiederaufarbeitungsanlage) transportiert. Dort werden diese MOX-Brennelemente mit den dort ebenfalls vorhandenen abgebrannten UOX-Brennelementen aus den restlichen 7 UOX-LWR's verschnitten (gemischt), um den schlechten Gehalt an Pu-239 und Pu-241 der abgebrannten



GWe

ord 0

25

20

<sup>&</sup>lt;sup>25</sup> C.H.M. Broeders: Investigations related to the Build-up of Transurania in Pressurized Water Reactors, FZKA 5784 (1996)

<sup>&</sup>lt;sup>26</sup> CAPRA: Consommation Accrue de Plutonium dans les RApides

<sup>&</sup>lt;sup>27</sup> ADS: Accelerator Driven Systems

<sup>&</sup>lt;sup>28</sup> C.H.M. Broeders: ebenda; C. H. M. Broeders et al.:, Advanced nuclear systems consuming excess plutonium, Kluwer Acad. Publ. 1997

<sup>&</sup>lt;sup>29</sup> M. Salvatores et al.: Nuclear waste transmutation, Internat. Reactor Physics Conference, Tel Aviv, June 1994; J. L. Guillet, J.P. Grouiller: Studies of Nuclear materials recycling in Conventional and Advanced reactors, atomwirtschaft-atomtechnik, 44 (1999) S. 472

<sup>&</sup>lt;sup>30</sup> J. I. Kim, K. Gompper, K.D. Closs, G. Kessler, D. Faude: German Approaches to Closing the Nuclear Fuel Cycle and Final Disposal of HLW, Journ. of Nucl. Mat. 238 (1996) 1-10; C.H.M. Broeders: ebenda; G. Kessler: Quadrilaterales Meet, d. Reaktorsicherheitskommiss, USA, Deutschland, Frankreich, Japan, Tokvo, Okt, 1998

<sup>&</sup>lt;sup>31</sup> Der erste Knickpunkt des unteren Linienzuges der Abb. 4 würde mit 5 t Pu/GWe bei der passend gewählten Untermenge von 8 GWe LWR's 40 t wiederaufgearbeitetem Plutonium entsprechen (bei 20 GWe sind dies 100 t wiederaufgearbeitetes Plutonium)

<sup>32</sup> C.H.M.Broeders: ebenda

MOX-Brennelemente durch den höheren Pu-239- und Pu-241-Gehalt der UOX-Brennelemente

aufzubessern. Dies ergibt eine neue Pu-Isotopenmischung M2 für den LWR-Pu-Burner (Tab. 1). Nach diesem Prinzip wurden LWR-Pu-Burner Ganz-Kern-Abbrand- und Auslegungsrechnungen von C. Broeders<sup>34</sup> durchgeführt, wobei auch die örtliche Leistungsverteilung optimiert wurde und die Reaktivitätskoeffizienten in Abhängigkeit des Abbrandes bestimmt wurden.

Nach einem weiteren Zeitintervall haben die 7 UOX-LWR's auch genügend Plutonium für

# Tab. 1 Plutonium-Isotopenvektoren in den MOX-Brennstoffen zur Beladung der LWR-Pu Burner<sup>33</sup> M1: Pu aus UOX-Brennstoff; M2 -M8: Mischung von Pu aus UOX- und MOX-Brennstoff

	Anteil in Gew.%					
Mischung	Pu-238	Pu-239	Pu-240	Pu-241	Pu-242	Pu <sub>fiss</sub>
M1	2,8	55,1	23,3	9,7	7,6	64,8
M2	3,5	49,4	26,2	10,0	9,4	59,4
M3	3,9	46,8	27,9	9,2	10,8	56,0
M4	4,3	43,1	28,9	9,9	12,3	53,0
M5	4,6	41,5	29,3	9,5	13,6	51,0
M6	4,8	40,4	29,6	9,1	14,7	49,5
M7	4,9	39,5	29,8	8,8	15,6	48,3
M8	5,1	37,5	29,8	9,3	16,9	46,8

einen 2. LWR-Pu-Burner MOX-2 erzeugt (Tab. 2), der dann gestartet werden kann und dessen Brennstoff im obigen Sinne mit dem abgebrannten UOX-Brennstoff der verbliebenen 6 UOX-LWR und dem abgebrannten Brennstoff des ersten LWR-Pu-Burners (MOX-1) verschnitten wird.

Die Rechnungen von C. Broeders zeigen, dass nach dem 2. Rezyklierschritt (bei einem Abbrand von 50 GWd/ $t_{SM}$ ) wegen des sich verschlechternden Pu-Isotopenvektors (Tab.1) der Kühlmittel-Reaktivitätskoeffizient (Voidkoeffizient) nicht mehr ausreichend negativ ist. Man

kann dies jedoch ausgleichen, indem man zunächst 2% U-235 dem MOX-Brennstoff zumischt. In späteren Zyklen muss man diese U-235-

Anreicherung bis auf 3,8% erhöhen<sup>35</sup>.

Abb. 4 zeigt als Ergebnis dieser Rechnungen die zeitintegrierten Pu<sub>tot</sub>-Mengen – allerdings auf 1 GWe bezogen<sup>36</sup> – für die 2 verschiedenen Brennstoffzyklus-Szenarien:

- den Once-Through-Zyklus (OT-Zyklus) mit UOX-Reaktoren und Direkter Endlagerung oder temporärer Zwischenlagerung der abgebrannten Brennelemente
- das oben beschriebene Szenario mit UOX-LWR's und LWR-Pu-Burnern und Mehrfachrezyklierung. Nur die Pu-Verluste von etwa 0,1% (zukünfti-

Tab. 2: Szenario für den Einsatz von LWR mit 100% MOX-Core in einem Pool von ursprünglich 8 LWR-UOX-Reaktoren

Jahre	Reaktortypen
1-22	8 UOX
23-38	7 UOX - 1 MOX
39-65	6 UOX - 2 MOX
66-95	5 UOX - 3 MOX
95-	4 UOX - 4 MOX

ger Wert) gehen noch mit dem hochaktiven Abfall (HAW-Glas) ins Endlager.

Für den Once-Through Zyklus ergibt sich eine gerade ansteigende Linie, die sich aus 218 kg/GWe·a Pu-Produktion im UOX-LWR ergibt. Die gerade ansteigende Linie beschreibt die zeitintegrierte Pu<sub>tot</sub>-Ansammlung.

Für das Szenario der Mehrfachrezyklierung und LWR-Pu-Burner ergibt sich ab dem Einsatz des ersten LWR-Pu-Burners ein abknickender Linienzug, der nach dem Einsatz des 2. LWR-Pu-Burners ein Maximum von etwa 8 t Pu/GWe erreicht (Abb. 4) und nach Einsatz des 3. und 4. LWR-Pu-Burners immer mehr abfällt.

Die Differenz zwischen beiden Linienzügen (Once-Through mit Direkter Endlagerung und der Mehrfachrezyklierung mit LWR-Pu-Burnern und Endlagerung des HAW Glases aus der Wiederaufarbeitung) stellt die Menge des vernichteten bzw. erst gar nicht entstandenen Plutoniums dar. Plutonium entsteht deswegen nicht, weil bei konstanter Energieproduktion von 8 GWe durch LWR im betrachteten Szenario nach und nach UOX-LWR's durch LWR-Pu-Burner ersetzt werden. Letztere erzeugen zwar genau soviel Energie wie UOX-Reaktoren, sie erzeugen jedoch nicht Plutonium sondern vernichten Plutonium. Insgesamt werden über 100 Jahre (zwischen dem 23. bis zum 123. Jahr in Abb. 4) von den LWR-Burnern MOX-1 bis MOX-4 knapp 20 t Plutonium pro GWe vernichtet bzw. entstehen erst gar nicht.

<sup>33</sup> ebenda

<sup>34</sup> ebenda

<sup>35</sup> ebenda

<sup>&</sup>lt;sup>36</sup> Für das Szenario mit einer Untermenge von 8 LWR ergibt sich die angesammelte Pu<sub>tot</sub>-Menge durch Multiplikation mit 8.

Es gibt mehrere Gründe weswegen das Szenario der Mehrfachrezyklierung in Abb. 4 nicht weiter verfolgt wurde:

- die U-235-Anreicherung überschreitet bei MOX-4 die 4,4% Grenze und liegt damit im Bereich bzw. über derjenigen für UOX-Reaktoren<sup>37</sup>.
- die LWR-Pu-Burner (MOX1 bis MOX4) würden immer mehr Americium produzieren<sup>38</sup>, was nicht erwünscht ist.
- es gibt Reaktortypen (s. Kap. 0 und 0), die noch höhere Pu-Vernichtungsraten pro GWe·a haben z.B. flüssigmetallgekühlte Reaktoren mit schnellen Neutronen oder Beschleuniger-getriebene unterkritische Anlagen.

#### 4.2 Szenario 2: Flüssigmetallgekühlte Reaktoren mit schnellen Neutronen

Diese Reaktoren wurden aus der Brütertechnologie heraus entwickelt und haben eine Brennstoffanreicherung von etwa 44% Plutonium. Brutreaktoren mit schnellen Neutronen wie z.B. Superphenix erzeugen bei einem Abbrand der Kernbrennelemente von etwa 120 GWe/tSM im Gegensatz zu den heutigen Leichtwasserreaktoren nur etwa 70 kg Pu pro GWe a (LWR: 214 kg pro GWe·a). Der Grund liegt darin, dass Plutonium im Kern von Schnellen Brutreaktoren ähnlich wie ein Katalysator wirkt. In schnellen Brutreaktoren wird im wesentlichen U-238 in Plutonium umgewandelt und gespalten<sup>39</sup>. Lässt man bei den Brutreaktoren die äußeren Brutmäntel weg und verändert den Reaktorkern so, dass die sogenannte innere Konversionsrate drastisch absinkt, so kann man Pu-Vernichtungsraten bis 570 kg Pu pro GWe·a erreichen<sup>40</sup>. Außerdem produzieren diese sogenannten CAPRA-Burner Reaktoren mit schnellen Neutronen gegenüber LWR-Pu-Burnern mit thermischen Neutronen um etwa den Faktor 4 weniger Americium<sup>41</sup>. Diese Reaktoren wurden vom Commissariat d'Energie Atomique (CEA) und dem Forschungszentrum Karlsruhe sehr detailliert untersucht<sup>42</sup>. Wir nehmen hier einen CAPRA-Burner Reaktor an, der pro GWe Leistung, ein Pu-Inventar von 6.300 kg Putot hat mit einem 3er Beladezyklus mit Be- und Entladung nach je etwa 1 Jahr. Pro GWe a kann dieser CAPRA-Reaktor etwa 570 kg Pu vernichten.

Wir gehen wie in dem vorigen Schema (s. Kap. 4.1) wieder von einer Untermenge von 8 LWR's aus, die je nach Plutonium-Verfügbarkeit nach und nach durch CAPRA-Burner ersetzt wird. Wir nehmen weiterhin an, dass die CAPRA-Burner ihre Pu-Isotopenzusammensetzung beim Mischen mit Plutonium aus UOX-LWR's nicht wesentlich ändern.

Nach dem oben für das LWR-UOX und LWR-MOX Szenario beschriebenen Prozedur der Verfolgung der Plutoniummengen im Brennstoffzyklus und der jeweils pro Jahr vernichteten Putot-Mengen ergibt sich Abb. 3 bzw. Tab. 1. Ähnlich wie in Abb. stellt die gestrichelte Linie die zeitintegrierte und auf 1 GWe bezogene Putot-Menge im Once-Through-Zyklus mit Zwischenlagerung bzw. Direkter Endlagerung dar. Der abknickende Linienzug beschreibt die zeitintegrierte und auf CAPRA-Burner bezogene Putot-Menge beim Szenario Mehrfachrezyklierung des Plutoniums mit Zubau von CAPRA-Burnern nach Pu-Verfügbarkeit.

Die Differenz zwischen beiden Linienzügen gibt die Plutonium-Mengen an, die im Szenario Mehrfachrezyklierung mit Zubau von CAPRA-Burnern entweder vernichtet oder gar nicht erzeugt wurden. Plutonium wird nicht erzeugt wenn CAPRA-Burner anstelle von UOX-LWR's Leistung erzeugen. Insgesamt würden im CAPRA-Burner-Szenario zwischen dem 20. und 125 Jahr etwa 25 t Pu pro GWe (bei 8 GWe: 200 t) durch die CAPRA-Burner weniger produziert als beim Once-Through-Zyklus. Im



#### Tab. 3: Szenario für den Einsatz von CAPRA-Burnern in einem Pool von ursprünglich 8 LWR-UOX-Reaktoren

Jahre	Reaktortypen
1-19	8 UOX
20-35	7 UOX - 1 CAPRA
36-66	6 UOX - 2 CAPRA
67-86	5 UOX - 3 CAPRA
86-	4 UOX - 4 CAPRA

<sup>&</sup>lt;sup>37</sup> C.H.M. Broeders: Investigations...

<sup>38</sup> ebenda

<sup>&</sup>lt;sup>39</sup> W. Häfele: Umgang mit Plutonium, Die internationale Gemeinschaft vor schwierigen Entscheidungen, Zeitschrift für internationale Politik, Bonn, Okt. 1999

<sup>&</sup>lt;sup>40</sup> RT/SIS/CAPRA 94-001, interner Bericht CEA-DRN-DER, 1994

<sup>&</sup>lt;sup>41</sup> M. Salvatores et al.: Nuclear waste transmutation, Internat. Reactor Physics Conference, Tel Aviv, June 1994

<sup>&</sup>lt;sup>42</sup> RT/SIS/CAPRA 94-001, interner Bericht CEA-DRN-DER, 1994

Vergleich zum LWR-Pu-Burner ist sowohl das Maximum des abknickenden Linienzuges, als auch der Zeitraum bis zum Erreichen der Nulllinie geringer.

Ein Vergleich mit einem fiktiv gewählten CAPRA-Burner der um das 1,5-fache größere Kerninventar aber die gleiche Pu-Vernichtungsrate hatte zeigt, dass das Kerninventar einen wesentlichen Einfluss hat. CAPRA-Burner mit geringem Pu-Kern-Inventar und hohen Pu-Vernichtungsraten sind die besseren Pu-Vernichtungsreaktoren.

#### 4.3 Szenario 3: ADS (Beschleuniger-getriebene Systeme)



Auch Beschleuniger-getriebene unterkritische Systeme, sogenannte ADS-Burner<sup>43</sup>, benötigen die Mehrfachrezyklierung mit Wiederaufarbeitung. Wir wählen ein von I. Broeders und C. Broeders<sup>44</sup> durchgerechnetes Be-schleuniger-getriebenes ADS-Burner-System mit 1 GWe Leistung und Pu/Th Brennstoff. Der Brennstoff kommt nach 12 Jahren wieder aus dem Brennstoffzyklus zurück. Dieser Pu/Th ADS-Burner startet mit 4040 kg Pu und 19 t Thorium im unterkritischen Kern. Er vernichtet in 3 Jahren 1940 kg Pu und baut gleichzeitig 2800 kg U-233 auf. Davon verbleiben 1500 kg im abgebrannten Brennstoff. Dadurch bleibt das keff der unterkritischen Anordnung über 3 Jahre in etwa konstant. Dies ist notwendig, da das k<sub>eff</sub> einerseits die Neutronen-Multiplikation bestimmt und andererseits ein über die Betriebszeit konstantes keff auch einen konstanten Protonenstrom des Beschleunigers erlaubt.

Wir wählen nun wieder ein Szena-rio mit anfangs 8 UOX-LWR's. Nach 20 Jahren wird der erste ADS zugebaut usw. wie oben bereits für die Szenarien mit LWR-Pu-Burnern und CAPRA-Burnern beschrieben. Das Ergebnis ist in Abb. 6 gezeigt. Das sehr viel geringere Pu-Kerninventar des ADS und die etwas höhere Pu-Vernichtungsrate von etwa 650 kg Pu pro GWe a ergibt das beste Ergebnis. Zwischen dem 20. und bereits dem 86. Jahr sind - auf 1 GWe bezogen - 16 t Plutonium vernichtet worden bzw. sind nicht entstanden.

Tab. 4: Szenario für den Einsatz von ADS-Burnern in einem Pool von ursprünglich 8 LWR-UOX-Reaktoren

Jahre	Reaktortypen		
1-19	8 UOX		
20-31	7 UOX - 1 ADS		
32-43	6 UOX - 2 ADS		
44-55	5 UOX - 3 ADS		
55-	4 UOX - 4 ADS		

C. Broeders und I. Broeders<sup>45</sup> haben

1997 gezeigt, dass bessere neutronenphysikalische Rechenverfahren nicht eine Pu-Vernichtungsrate von 650 kg Pu pro GWe·a, sondern nur 580 kg Pu pro GWe·a ergeben. Diese Ergebnisse würden die in Abb. 6 gezeigte Zeit für die Plutonium-Vernichtung zeitlich etwas verlängern.

### Folgerung:

Mit den obigen Szenarien der Abb. 4 bis Abb. 6 wurde gezeigt, dass für ein Szenario zeitlich konstanter Kernenergieerzeugung durch Einsatz der Wiederaufarbeitung und der Mehrfachrezyklierung durch Zubau von LWR-Pu-Burnern bzw. CAPRA-Burnern oder ADS-Reaktoren mit schnellem Neutronenspektrum die im Reaktorsystem zeitlich sich ansammelnde Plutoniummenge minimiert werden kann. Dies gilt auch unter Berücksichtigung, dass ein Teil des entstandenen Plutoniums im Inventar der LWR-Pu-Burner oder CAPRA-Reaktoren oder ADS-Reaktoren und in deren Brennstoff-Kreislauf gespeichert ist. Bei weiterem Zubau von CAPRA-Reaktoren oder ADS-Reaktoren würde noch mehr Plutonium vernichtet. Die Pu-Vernichtung gelingt umso besser, je geringeres Pu-Kerninventar die Pu-Vernichtungsreaktoren haben und je größer deren Pu-Vernichtungsrate pro GWe<sup>-</sup>a ist.

#### 4.4 Vernichtung von vorhandenem gespeichertem Plutonium

<sup>&</sup>lt;sup>43</sup> C. D. Bowman et al.: Nuclear Energy Generation and Waste Transmutation using an Accelarator-Driven-Intense Thermal Neutron Source, Nuclear Instruments and methods in Physics Research, 1320 (1992);

C. Rubbia et al.: Fast Neutron Incineration in the Energy Amplifier as Alternative for Geologic Storage, CERN/LHC/97-01. Und: M. Salvatores: Accelerator Driven Systems (ADS), physics principles and specificities, Journal de Physique IV (Proceedings) Vol. 9, Pr 7, July 1999

<sup>&</sup>lt;sup>44</sup> C.H.M. Broeders, I. Broeders: Neutronenphysikalische Analysen von Beschleuniger-getriebenen unterkritischen Anordnungen, Nachrichten-Forschungszentrum Karlsruhe, 29 (1997) 277

<sup>&</sup>lt;sup>45</sup> C. Broeders, I. Broeders: Transmutation mit Leichtwasserreaktoren und beschleunigern, PSF-Jahresbericht 1995, Forschungszentrum Karlsruhe, 1996

Wir wollen nun die Problemstellung ändern und statt von einem Szenario mit konstanter Leistung -erzeugt durch LWR's und Zubau von Plutonium-Vernichtungsreaktoren - uns die Frage stellen: In welcher Zeit kann man eine bestimmte vorhandene Pu-Menge vernichten? Dies wäre z.B. der Fall für die je 50 t Waffenplutonium, die von den USA und Russland aus dem militärischen Programm herausgenommen werden sollen oder wenn man die Kernenergienutzung ab einem be-stimmten Zeitpunkt

beenden möchte.

Wir betrachten ein passendes System mit 3 CAPRA-Burnern mit je 1 GWe Leistung, mit den zuvor beschriebenen Charakteristiken und ein anfängliches gespeichertes Plutoniumstartinventar von 150 to. Die 3 CAPRA -Burner speichern zunächst als Kern-Inventar und in ihrem Brennstoffkreislauf etwa 120 t Pu. Wir legen in einen Plutoniumspeicher die verbleibenden 30 t Plutonium an und halten sie für Nachladungen im Brennstoffkreislauf bereit. Aus Abb. 7 ergibt sich, dass während der ersten 40 Jahre 60 to Plutonium vernichtet werden, dass aber der Plutoniumspeicher nach 20 Jahren aufgebraucht ist und für Nachladungen in der MOX-Brennelementfertigung in den nächsten 20 Jahren weitere 30 t U-235 zugeladen werden müssen<sup>46</sup>. Danach muss ein CAPRA-Reaktor



<sup>&</sup>lt;sup>46</sup> Der Brennstoff würde dann etwa zur Hälfte mit U-235 und zur Hälfte mit Plutonium angereichert

und sein Brennstoffkreislauf stillgelegt werden, um das Plutonium aus seinem Kreislauf für die Nachladungen der verbliebenen zwei CAPRA-Reaktoren verfügbar zu machen. Nach weiteren 40 Jahren zeigt sich, dass wiederum zu wenig Plutonium zur Verfügung steht – wenn man nicht von außen zukaufen und später wieder verkaufen will<sup>47</sup>. In weiteren 60 Jahren vernichten die beiden verbliebenen CAPRA-Burner weitere 60 t Pu. Es müssen aber wieder nach 30 Jahren weitere 35 t U-235 für Nachladungen und zum kritisch halten der CAPRA-Burner hinzugefügt werden. Danach muss der 2. CAPRA-Burner und sein Brennstoffkreislauf stillgelegt werden um genügend Plutonium für Nachladungen verfügbar zu haben.

Nach 120 Jahren haben die 3 CAPRA-Burner die letztlich auf 1 CAPRA-Burner reduziert wurden, über 140 t Plutonium vernichtet. Will man – ohne Zukauf und späteren Verkauf von Plutonium – die Vernichtungskampagne weiterführen, so muss man letztlich zu immer kleineren (weniger Kerninventar bzw. Leistung in GWe) CAPRA-Burnern übergehen oder ADS-Burner einsetzen.

Damit wurde gezeigt, dass Plutonium einer bestimmten Menge, im vorliegenden Beispiel 150 t, im Prinzip über einen Zeitraum von mehr als 100 Jahren durch CAPRA-Burner vernichtet werden kann.

Mit ADS-Burnern geht die Pu-Vernichtung noch besser. Mit 2 solchen 1 GWe unterkritischen ADS-Burnern können innerhalb von 96 Jahren von 141 to Plutonium etwa 121 to vernichtet werden. Für den verbleibenden Rest des Plutoniums kann zunächst ein ADS-Burner-System abgeschaltet und dessen Inventar und Inhalt seines Brennstoffkreislaufs für die weitere Vernichtung im verbleibenden ADS-Burner-System verfügbar gemacht werden. Für die weitere Minimierung müsste man eine ähnliche Prozedur wie oben für die CAPRA-Burner, d.h. Verkleinern des Pu-Inventars, mit ADS-Burner verfolgen.

# 5 Bemerkungen zu den Szenarien - andere langlebige Radionuklide

Die oben beschriebenen Szenarien zur Vernichtung von Plutonium setzen einen geschlossenen Brennstoffkreislauf, d. h. Mehrfachrezyklierung des Plutoniums, voraus. Die Verlustrate von Plutonium während der Wiederaufarbeitung muss gegenüber heute noch weiter gesenkt werden, um möglichst wenig in den Abfällen endzulagern (s.Abb. 2, Kap. 3.2). Ansätze dazu sind vorhanden. Bei der MOX-Brennelementfertigung müssen wegen des sich ändernden Isotopenvektors bei mehrfach rezykliertem Plutonium technische anspruchsvollere Verfahren (stärkere Abschirmung, Fernbedienungstechnik) eingesetzt werden. Dies ist technisch machbar. Neue Reaktorsysteme, wie z. B. CAPRA-Burner müssen erprobt werden. Beschleuniger-getriebene un-

<sup>&</sup>lt;sup>47</sup> Bei Einsatz von U-235 ist der Wirkungsgrad der Pu-Vernichtung etwas höher. Durch Zukauf von Plutonium ist dieser temporäre Mangel aber ebenfalls zu bewältigen.

terkritische Einrichtungen sind zur Zeit noch nicht vorhanden. Die Arbeiten hierzu laufen international mit großer Anstrengung.

Die obigen Szenarien beschreiben eine praktisch vollständige Vernichtung des Plutoniums. Verbleibende Restmengen können zusammengefasst und in kleineren CAPRA- oder ADS-Systemen vernichtet werden.



Vor dem Hintergrund der Langzeitsicherheit von Endlagern müssen neben Plutonium, auch andere Radionuklide wegen ihrer Radiotoxizität und ihrer Langlebigkeit betrachtet werden. Dies sind die sog. Minoren Actiniden Np, Am, Cm und langlebige Spaltprodukte, wie z.B. Technetium. Diese Radionuklide gelangen bei der heutigen Wiederaufarbeitungstechnik in den hochaktiven Abfall und werden zusammen mit anderen Spaltprodukten mit kürzerer Halbwertszeit, wie z.B. Cäsium und Strontium, verglast. Zur Zeit wird auf dem Gebiet "Partitioning & Transmutation"<sup>48</sup> international intensiv gearbeitet, insbesondere an der chemisch sehr aufwendigen Abtrennung der langlebigen Radionuklide aus dem hochaktiven Abfall<sup>49</sup>.

Ein Szenario, das dem Verbrauch von Plutonium aber auch der Transmutation langlebiger Radionuklide Rechnung trägt wurde von der französischen CEA vorgeschlagen und ist beispielhaft in Abb. 9 - auf 22 GWe skaliert - dargestellt<sup>50</sup>. Dabei wird ein Pool aus LWR-UOX, LWR-MOX und CAPRA-Reaktoren sowie speziellen Burnern (ADS) für Am, Cm und langlebige Spaltprodukte angenommen.

#### 6 Zusammenfassung

Heute werden weltweit zwei Entsorgungswege für abgebrannte Brennelemente aus Kernkraftwerken beschritten. Zum einen die Einmalrezyklierung, d. h. die Wiederaufarbeitung und der Wiedereinsatz des dabei abgetrennten Plutoniums Form von Mischoxid-Brennelementen. Zum andern die Direkte Endlagerung der abgebrannten Brennelemente. Beide Entsorgungswege führen nicht zu einer Vernichtung des Plutoniums, sondern zu großen Plutoniummengen im Endlager. Die Vernichtung des Plutoniums aber auch von anderen langlebigen Radionukliden ist nur durch die Mehrfachrezyklierung und durch den Einsatz von speziellen, Plutonium verbrauchenden Reaktoren, wie Leichtwasserreaktoren mit vollständiger MOX-Beladung, CAPRA-Reaktoren oder Beschleuniger getriebenen Einrichtungen (ADS) möglich..

Durch Kombination von Leichtwasserreaktoren mit Uranoxid-Brennstoff mit Plutonium-Burnern lässt sich bei gleichbleibender Energieerzeugung zunächst ein Gleichgewicht zwischen Plutoniumproduktion und -verbrauch einstellen. Erhöht man den Anteil an Plutonium-Burnern, so wird mehr Plutonium verbraucht als entsteht. Ebenso lassen sich Plutonium-Burner zu Vernichtung von vorhandenen Plutonium-Beständen einsetzen. Vorrausetzung für die Realisierung dieser Szenarien ist die Etablierung fortgeschrittener Wiederaufarbeitungs-, Brennelementfertigung und Reaktortechnologie. Aus heutiger technischer Sicht erscheint dies realisierbar.

<sup>&</sup>lt;sup>48</sup> Partitioning: Abtrennung Minorer Actiniden aus dem HAW; insbesondere die Trennung von den chemisch sehr ähnlichen Lanthanide stellt hohe Ansprüche an die Trennmethode.

Transmutation: Überführung langlebiger Radionuklide in inaktive Spaltprodukte oder solche mit deutlich niedrigerer Halbwertszeit

<sup>&</sup>lt;sup>49</sup> C. Madic, M. Lecomte, M. J. Hudson, J. O. Liljenzin, J. P. Glatz, R. Nannicini, A. Facchini, Z. Kolarik, R. Odoj: "NEWPART: A European Research, Programme for minor Actinide Partitioning", Proceedings of the 23rd Actinide Separation Conference, Kennewick, USA, June 7-10, 1999 (1999)

<sup>&</sup>lt;sup>50</sup> M. Salvatores: Role of ADS in the Back-end of the Fuel Cycle Strategies, Vortrag beim IATF-Kolloquium im Forschungszentrum Karlsruhe, 2. Februar 1999

# Literatur

D. Albright, F. Berkhout, W. Walker: "World Inventory of Plutonium and Highly Enriched Uranium". Stockholm International Peace Research Institute, Oxford University Press, Oxford (1993)

C. D. Bowman et al.: Nuclear Energy Generation and Waste Transmutation using an Accelartor-Driven-Intense Thermal Neutron Source, Nuclear Instruments and methods in Physics Research, 1320 (1992)

C. Broeders, I. Broeders: Transmutation mit Leichtwasserreaktoren und beschleunigern, PSF-Jahresbericht 1995, Forschungszentrum Karlsruhe, 1996

C.H.M. Broeders: Investigations related to the Build-up of Transurania in Pressurized Water Reactors, FZKA 5784 (1996)

C.H.M. Broeders et al.:, Advanced nuclear systems consuming excess plutonium, Kluwer Acad. Publ. 1997

C.H.M. Broeders, I. Broeders: Neutronenphysikalische Analysen von beschleuniger-getriebenen unterkritischen Anordnungen, Nachrichten-Forschungszentrum Karlsruhe, 29 (1997) 277

R. L. Garwin, M. Grubb, E. Matanle (eds.): Managing the Plutonium Surplus: Applications and technical Options, NATO ASI Series, Kluwer Academic Publishers (1994)

W. L. Gong, W. Lutze, R.C. Ewing: Zirconia Ceramics for Excess Weapons Plutonium Waste, J. Nucl. Mat. 277 (2000)

J. L. Guillet, J.P. Grouiller: Studies of Nuclear materials recycling in Conventional and Advanced reactors, atomwirtschaft-atomtechnik, 44 (1999) 472

W. Häfele: Umgang mit Plutonium, Die internationale Gemeinschaft vor schwierigen Entscheidungen, Zeitschrift für internationale Politik, Bonn, Okt. 1999

IAEA-Report of the Advisory Group Meeting on Safeguards for Final Disposal of Spent Fuel in Geological Repositories, AGM 995, Wien, Dez. 1997

IAEA-Worldatom - Nuclear Power Plant Information (2000) (http://www.iaea.org/worldatom)

W. E. Kastenberg et al.: Considerations of Autocatalytic Criticality of Fissile Materials in Geologic Repositories, Nuclear technology, 115, 1996

G. Kessler: Quadrilaterales Meeting der Reaktorsicherheitskommissionen USA, Deutschland, Frankreich, Japan, Tokyo, Okt. 1998

G. Kessler, J. I. Kim, K. Gompper: "Wohin mit dem deutschen Plutonium" atomwirtschaftatomtechnik, 44 (1999) S. 156 - 164

J. I. Kim, K. Gompper, K.D. Closs, G. Kessler, D. Faude: German Approaches to Closing the Nuclear Fuel Cycle and Final Disposal of HLW Journal of Nuclear Materials 238 (1996) 1-10

H. Kranz, H.H. Remagen, K. Rudolf: The German Approach on Safeguards for the Final Disposal of Spent Nuclear Fuel in a Salt Dome; Proceedings DISTEC '98, Hamburg (1998)

C. Madic, M. Lecomte, M. J. Hudson, J. O. Liljenzin, J. P. Glatz, R. Nannicini, A. Facchini, Z. Kolarik, R. Odoj: "NEWPART: A European Research, Programme for minor Actinide Partitioning", Proceedings of the 23rd Actinide Separation Conference, Kennewick, USA, June 7-10, 1999 (1999)

Management of Separated Plutonium - The Technical Options; Nuclear Energy Agency, OECD (1997)

E. R. Merz, C. E. Walter (Eds.): Disposal of Weapon Plutonium, Approaches and Prospects, NATO ASI Series, Kluwer Academic Publishers (1996)

E. R. Merz, C. E. Walter (Eds.): Advanced Nuclear Systems Consuming Excess Plutonium, NATO ASI Series, Kluwer Academic Publishers (1997)

Nuclear Fuel Cycle and Reactor Strategies: Adjusting to New Realities, IAEA-Proceeding Series, International Atomic Energy Agency, Wien (1997)

National Academy of Sciences: Management and Disposition of Excess Weapons Plutonium, Committee on International Society and Arms Control, National Academy Press, Washington DC, USA, 1994.

National Academy of Sciences: Management and Dispositon of Excess Weapons Plutonium: Reactor Related Options, Committee on International Society and Arms Control National Academy Press, Washington DC, USA, 1995.

Realisierbarkeit der Verglasung von Plutonium zusammen mit hochradioaktiven Abfälle sowie der Fertigung von MOX-Lagerstäben zur Direkten Endlagerung als Alternative zum Einsatz von MOX-Brennelementen. Studie des Öko-Instituts e.V.,Darmstadt, im Auftrag der Freien und Hansestadt Hamburg (1999)

R. Papp: GEISHA -Gegenüberstellung von Endlagerkonzepten in Salz und Hartgestein, Forschungszentrum Karlsruhe, FZKA-PTE Nr. 3 , 1997

RT/SIS/CAPRA 94-001, interner Bericht CEA-DRN-DER, 1994

C. Rubbia et al.: Fast Neutron Incineration in the Energy Amplifier as Alternative for Geologic Storage, CERN/LHC/97-01

Safe Handling and Storage of Plutonium, Safety reports Series No. 9, International Atomic Energy Agencey, Wien (1998)

M. Salvatores et al.: Nuclear waste transmutation, International Reactor Physics Conference, Tel Aviv, June 1994

M. Salvatores: Accelerator Driven Systems (ADS), physics principles and specificities, Journal de Physique IV (Proceedings) Vol. 9, Pr 7, July 1999

M. Salvatores: Role of ADS in the Back-end of the Fuel Cycle Strategies, Vortrag beim IATF-Kolloquium im Forschungszentrum Karlsruhe, 2. Februar 1999

Status and trends in spent fuel reprocessing; Proceedings of an Advisory Group meeting held in Vienna, 7-10 September 1998, IAEA, Wien (1999)

W. Stoll: What are the Options for Disposition of Excess Weapons Plutonium?, Mat. Res. Soc. Bull. 23 (1998)

W. Walker: "World Inventories of Plutonium" in Managing the Plutonium Surplus: Applications and Technical Options, edited by R.L.Garwin et al., Nato ASI Series, Kluwer Academic Publishers, London (1994)