

Nukleare Brennstoffe: ein heißes Thema

Axel-Thilo Prokop, Richard Kemmler, Oliver Fechtig, Ronny Nawrodt

Universität Stuttgart,
5. Physikalisches Institut - Abt. Physik und ihre Didaktik
Pfaffenwaldring 57, 70569 Stuttgart
a.prokop@physik.uni-stuttgart.de

Kurzfassung

Ist ein Brennelement vor oder nach der Nutzung radioaktiver? Möchte man sich mit dieser interessanten Frage beschäftigen, dringt man in einen spannenden, gesellschaftlich relevanten Aspekt der Kernphysik vor. In diesem Artikel werden die Zusammenhänge dieser Frage erörtert. Der zeitliche Verlauf der Aktivität von Brennelementen wird gezeigt und der Nutzen für die universitäre Lehre herausgestellt. Der Nutzen für den schulischen Kontext wird diskutiert, dabei wird auch das Fehlen von Zerfallsreihen in Bildungs- bzw. Lehrplänen dargelegt.

1. Einleitung

Die auf Kernspaltung basierende Energiegewinnung scheint in Deutschland aufgrund des „Atomausstiegs“ keine Rolle mehr zu spielen. Betrachtet man den Fall auf europäischer oder globaler Ebene, so stellt man fest, dass die durch Kernspaltung produzierte Gesamtleistung weiterhin auf einem ähnlich hohen Niveau verbleibt. Praktisch ungelöst bleibt dabei ebenfalls weltweit das Problem der Endlagerung radioaktiver Abfallprodukte. Während in Deutschland die Energiegewinnung aus Kernbrennstoffen zunehmend an Bedeutung verliert, mehren sich in der deutschsprachigen Presse Stimmen, die der Kernenergie aufgrund ihrer vermeintlichen Kohlenstoffdioxidneutralität zu einem Wiederaufleben verhelfen wollen. Exemplarisch soll hier die Aktivität eines typischen Uranoxid-Brennelements des Kernkraftwerkes Neckarwestheim vor und nach dem Abbrand untersucht werden.

Bei der Kernspaltung wird Energie freigesetzt, die Gesamtenergie des Brennstoffes muss folglich abnehmen. Neben der Abnahme der Gesamtenergie wird auch das radioaktivere U-235 abgebaut. Diese beiden Faktoren lassen vermuten, dass die Radioaktivität abnehmen könnte. Andererseits könnte in dem abgebrannten Element auch „Strahlung gespeichert“ werden, die dessen Radioaktivität erhöhen könnte. Alternativ könnte es auch zur Bildung anderer Stoffe führen, die ihrerseits eine höhere Aktivität aufweisen. Es stellt sich hierbei also die Frage: Sind benutzte oder unbenutzte Brennelemente radioaktiver?

Betrachtet man die Bildungspläne der Bundesrepublik Deutschland und insbesondere den Bil-

dungsplan für das Land Baden-Württemberg, so findet man häufig nur angedeutet, dass die Schülerinnen und Schüler sich mit dem Problem der Endlagerung auseinandersetzen sollen. Es wird jedoch an keiner Stelle explizit gefordert, dass die Aktivitäten der abgebrannten Brennelemente betrachtet werden sollen. Dabei spielen gerade diese eine nicht als zu gering einzuschätzende Rolle in der Risikobewertung der Nutzung der Kernenergie, sowohl bei der Betrachtung von kurz-, mittel-, wie auch langfristigen Zeiträumen.

2. Brennelemente

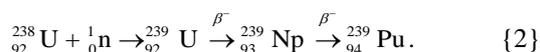
Brennelemente typischer Druckwasserreaktoren bestehen aus Uranoxid. Der Anteil von spaltbarem U-235 im Kernbrennstoff beträgt ca. 3%. Der Anteil von U-235 in Natururan ist geringer, daher muss U-235 für die Produktion von Brennelementen angereichert werden. Die Kernspaltungsreaktion lässt sich exemplarisch wie folgt beschreiben:



Die Kernspaltung ist dabei kein einheitlicher Prozess und kann zu unterschiedlichen Spaltprodukten führen. Bei der Kernspaltungsreaktion von U-235 werden im Durchschnitt etwa 204 MeV und 2-3 Neutronen pro Kern freigesetzt. Die freigesetzten Neutronen können dann weitere U-235 Kerne spalten. Dafür ist es notwendig, den Neutronenfluss zu regeln (z.B. durch Moderation), um wirtschaftlichen und sicherheitstechnischen Aspekten gerecht zu werden [1].

Bedingt durch die fortlaufende Spaltungsreaktion ist zu erwarten, dass der Anteil an U-235 im Brennelement sinken wird. Dieser Verbrauch von U-235 ist jedoch nicht die einzige erwartbare Kernreakti-

on. Durch die freien Neutronen im Reaktor kann es auch zu Neutronenabsorptionsreaktionen kommen [1]:



Bei der Aufnahme von Neutronen entsteht häufig ein instabiler Kern, der Neutronenüberschuss wird durch einen Betazerfall abgebaut. Dadurch werden wie in Gl. {2} dargestellt höhere Actinoide (z.B. Pu oder auch Cm) gebildet. Die höheren Actinoide sind häufig instabil und besitzen eine geringere Halbwertszeit als die Ausgangsisotope des Urans. Damit erhöht sich durch den Aufbau höherer Actinoide auch die Aktivität des Brennelements. Der Zerfall von Actinoiden folgt dabei unterschiedlichen Zerfallsreihen. Durch den Zerfall über diverse Zwischenprodukte wird die Berechnung der Aktivität anspruchsvoller. Die Zerfallsreihen und die zugehörigen Halbwertszeiten spielen bei der Berechnung der Aktivität eine zentrale Rolle.

Die Zusammensetzung der Spaltprodukte variiert, Gl. {1} stellt nur eine mögliche Reaktion dar. Die unterschiedlichen Spaltprodukte stellen für die Bestimmung der Gesamtaktivität genutzter Brennelemente einen wichtigen Startpunkt dar. Zur Erklärung ist es ratsam sich das relative Verhältnis von Protonen und Neutronen in stabilen Kernen anzuschauen. Während bei leichten Kernen Protonen und Neutronen etwa im gleichen Verhältnis vorliegen, besitzen schwere Kerne einen Neutronenüberschuss, der für die Überwindung der zunehmenden Coulombabstoßung notwendig ist. Dieser Überschuss steigt mit zunehmender Ordnungszahl an. Spaltet man nun ein sehr schweres Element in kleinere Elemente niedrigerer Ordnungszahl, besitzen die Produkte zu viele Neutronen. Neben der so vereinfacht erklärten Freisetzung von Neutronen besitzen die Spaltprodukte dann einen Neutronenüberschuss, den diese über Betazerfälle abbauen können [1].

Beispielhaft wird im Folgenden die Untersuchung der Zusammensetzung eines Brennelements aus dem Kernkraftwerk Neckarwestheim (GKN II) beschrieben, da hier detaillierte Angaben zur chemischen Zusammensetzung nach dem Entfernen des benutzten Brennstabs aus dem Reaktor veröffentlicht wurde. Die Gesamtaktivität des Brennelements pro kg Brennstoff lag vor Einbringen in den Reaktor bei 42,3 MBq, bei einer Anreicherung von 3,8% [3]. 72% der Gesamtaktivität zu diesem Zeitpunkt lassen sich auf das U-235 zurückführen. Die Untersuchung der dann entstehenden Isotope erfolgte ca. 7,5 a nach der Entfernung des Brennstabes aus dem Reaktor [3], da diese aufgrund der Nachzerfallswärme anfänglich sehr gut gekühlt werden müssen. Gemessen wurde die Massenkonzentration des jeweiligen Isotops in Bezug auf die Masse des Urans bzw. Brennstoffes vor der Nutzung im Reaktor (*initial heavy metal mass*). Vertre-

ten sind dabei Isotope der Actinoide (U, Np, Pu, Am, Cm) und die Isotope der Spaltprodukte (Tc, Cs, Ce, Sm, Eu, Ba, Pr) [3]. Durch diese notwendige Wartezeit sind Isotope mit kurzer Halbwertszeit nicht mehr messbar.

3. Berechnung der Aktivität von „abgebrannten“ Brennelementen

Die Betrachtung aufeinanderfolgender Zerfälle soll an dieser Stelle einleitend mit folgender hypothetischen Reaktion betrachtet werden:



Das Mutternuklid A zerfällt mit der Zerfallskonstante λ_1 in das Tochternuklid B, welches selbst auch zerfällt und so weiter. Am Ende dieser Reihe steht das stabile Nuklid D. Die zeitlichen Veränderungen der Teilchenzahl N der unterschiedlichen Nuklide lässt sich durch ein Differentialgleichungssystem wie folgt beschreiben:

$$\begin{aligned} \frac{dN_A}{dt} &= -\lambda_1 \cdot N_A(t), \\ \frac{dN_B}{dt} &= \lambda_1 \cdot N_A(t) - \lambda_2 \cdot N_B(t), \\ \frac{dN_C}{dt} &= \lambda_2 \cdot N_B(t) - \lambda_3 \cdot N_C(t), \\ \frac{dN_D}{dt} &= \lambda_3 \cdot N_C(t). \end{aligned} \quad \{4\}$$

Für längere Reihen lassen sich die notwendigen Gleichungen ähnlich formulieren und anschließend mit geeigneten Programmen lösen (z.B. MATLAB). Damit ergibt sich mit den Anfangsbedingungen die Möglichkeit, die Aktivität zu berechnen. Die Aktivität selbst ergibt sich zu:

$$A_N = \lambda_N \cdot N_N(t), \quad \{5\}$$

Angenommen, dass bei einer Zerfallsreihe die Halbwertszeit $T_{1/2(A)}$ des ersten Nuklides sehr groß gegenüber den Halbwertszeiten $T_{1/2(N)}$ der anderen darauffolgenden Nuklide ist, so gilt für die Zerfallskonstante λ_N folgendes:

$$\lambda_1 \ll \lambda_N. \quad \{6\}$$

Die Lösung des Differentialgleichungssystems lässt sich durch die sogenannte Bateman-Gleichung beschreiben [2]. Setzt man Gleichung 6 in die Bateman-Gleichung ein, so lässt sich nachvollziehen, dass Zwischenprodukte mit geringer Halbwertszeit in keinem relevanten Verhältnis angesammelt werden. Die Aktivitäten der einzelnen Zwischenprodukte lassen sich damit zusammenfassen, da man annehmen kann, dass die weiteren Zerfälle sofort stattfinden. Die Aktivität des Tochternuklides ist dann gleich der Aktivität des Mutternuklides mit der großen Halbwertszeit. Eine weitere Vereinfachung ergibt sich bei Isotopen mit einer sehr großen Halbwertszeit. Besitzen Isotope

eine sehr große Halbwertszeit, kann die Aktivität dieser Isotope vernachlässigt werden. Im Rahmen dieser Arbeit wurde diese Vereinfachung ab einer Halbwertszeit von 10^{15} Jahren getroffen und die zugehörigen Isotope als stabil betrachtet. Innerhalb des betrachteten Zeitraumes von ca. 50 Millionen Jahren zerfällt dann nur etwa ein Milliardstel.

4. Ergebnisse

Vor der Nutzung beträgt die Gesamtaktivität 42,7 MBq pro kg. Zu Beginn der in Abb. 1 dargestellten Kurve beträgt die Gesamtaktivität ca. 12 TBq pro kg und ist damit um den Faktor 10^6 größer im Vergleich zu der Aktivität des Brennelements vor der Nutzung (vgl. Abb.1). Selbst nach mehreren Millionen Jahren übertrifft die Aktivität des benutzten Brennelements die des ungenutzten noch um den Faktor 100. In den ersten 100 Jahren tragen

(Bildung von Spaltprodukten, Bildung höherer Actinoide) größer ist als vor der Nutzung. Die Werte stellen auch nur die Situation im GKN II dar und stehen an dieser Stelle nur als Beispiel für typische Druckwasserreaktoren, die mit Urandioxid betrieben werden. Es wird jedoch deutlich, welche Zeiträume bei der Wahl eines Endlagers berücksichtigt werden müssen. Die Sicherheitsanforderungen für solch lange Zeiträume werden daher in geologischen Strukturen gesucht, von denen angenommen wird, dass diese über solch einen Zeitraum stabil sind. Zusätzlich werden auch die Anforderungen an den Verschluss eines Endlagers klar (z.B. Verhinderung von Wassereintrich)

Einschränkend muss hier aber auch erwähnt werden, dass Spaltprodukte mit geringer Halbwertszeit (z.B. I-131) unbeachtet bleiben, wobei dieses im Rahmen von Unfällen sicherlich nicht zu vernach-

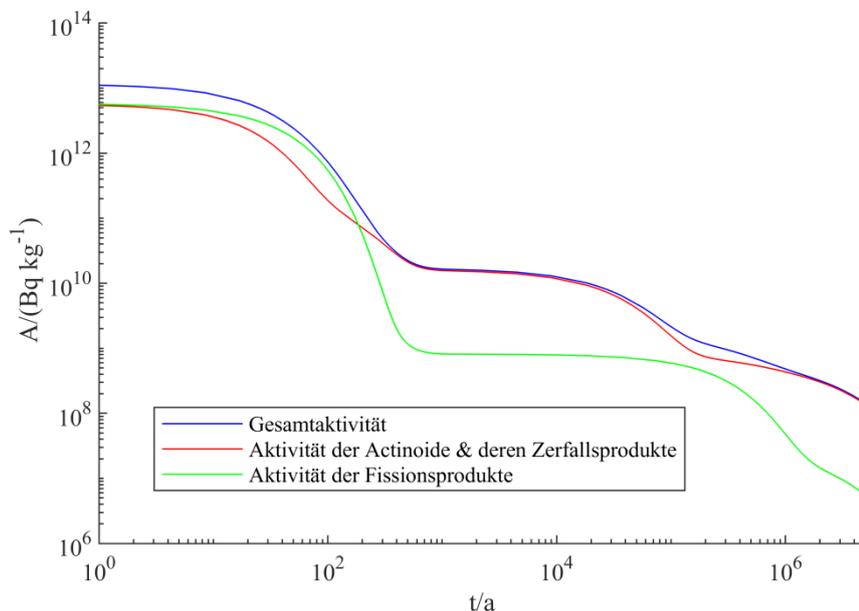


Abb. 1: Gesamtaktivität und deren Zusammensetzung aus Actinoiden bzw. deren Zerfallsprodukten und der Fissionsprodukte. Die Aktivität bezieht sich auf ein kg Uran des Brennelements (*initial heavy metal mass*), welches in Form von Urandioxid vorliegt.

Fissionsprodukte und Actinoide in gleichem Verhältnis zu der Gesamtaktivität bei. Später dominiert der Einfluss der Aktivität der Actinoide, da z.B. Cs-137 aufgrund seiner kurzen Halbwertszeit zerfallen ist. Ab ca. 500 Jahren ist die Gesamtaktivität nur noch von den Actinoiden dominiert. Die Aktivität wird zu Beginn des Diagramms zunächst von Isotopen definiert deren Halbwertszeit in einem ähnlichen großen Zeitfenster liegt, sobald diese zerfallen sind, dominieren Isotope mit größerer Halbwertszeit. Dies erklärt die Stufenbildung in Abb. 1.

5. Diskussion

Es ist erkennbar, dass die Aktivität benutzter Brennelemente aufgrund der angeführten Gründe

lässigen ist. Weiterhin stellt die Gesamtaktivität keinen absoluten Wert einer Gefährdung dar und muss durch weitere radiologische Betrachtungen ergänzt werden. Einige Isotope wie z.B. Cs-137 werden vom Körper mit anderen Ionen wie Kalium verwechselt und in das Gewebe eingebaut. Neben der Aktivität spielt auch die Art des radioaktiven Zerfalls eine wichtige Rolle für die Einschätzung der radiologischen Situation. Weitere Risiken (z.B. Proliferation oder Anforderungen an Wiederaufbereitungsanlagen) müssen gesondert betrachtet werden.

6. Ausblick

Im Rahmen dieser Arbeit wurde der zeitliche Verlauf der Aktivität dargestellt. Die Beschreibung des

zeitlichen Verlaufes lässt sich damit auch für Studierende der Physik nachvollziehen. Für Lehrerinnen und Lehrer bietet er hilfreiches Hintergrundwissen, welches z.B. anhand des dargestellten Diagrammes in den Unterricht einfließen kann. Dies trägt dazu bei, den Physikunterricht in Hinblick auf die Endlagerfrage fachlich fundiert zu gestalten.

Die Ergebnisse können eine wichtige Datengrundlage für die Anforderungen eines Endlagers darstellen und können somit auch den Physikunterricht bzw. die Ausbildung von Physiklehrkräften bereichern. Im Rahmen einer offenen Frage („Was ist radioaktiv? Der Brennstab vorher oder nachher?“) bieten sich Möglichkeiten, den Physikunterricht bzw. Vorlesungen über Kernphysik zu bereichern.

Die Berechnung anhand der Differentialgleichungen bietet zudem einen interessanten Zugangspunkt in die Nutzung computergestützter Berechnungen im Rahmen der Ausbildung von Physikstudierenden. Die Betrachtung der Aktivität von Brennelementen ist auch für die Hypothesenbildung und deren Überprüfung für Studierende interessant; es ist zudem auch möglich eventuelle Vorstellungen zu dem Thema kritisch zu reflektieren.

In vielen Bildungs- bzw. Lehrplänen der einzelnen Bundesländer sind die Zerfallsreihen nicht mehr verpflichtender Teil des Unterrichtsinhaltes im Themengebiet Radioaktivität. Diese wären aber durchaus nötig, wenn man sich mit dem hier von uns beschriebenen Thema intensiver beschäftigen würde bzw. müsste. Um zu einem reflektierten Umgang mit der Thematik zu gelangen, wie sie in den Bildungsplänen häufig gefordert wird, wäre es also durchaus angebracht, die Zerfallsreihen als festen Inhalt in den Unterricht einzuplanen. Gleichwohl sei angemerkt, dass die Schulen über die schuleigenen Fachcurricula immer die Möglichkeit haben, die Zerfallsreihen als festen Bestandteil des Unterrichts zu installieren.

7. Literatur

- [1] Ziegler, A. & Allelein, H.-J. (2013): Reaktortechnik: Physikalisch-technische Grundlagen (2., bearb. Aufl. 2013). Wiesbaden: Springer Vieweg. S. 39-56, 188-191.
- [2] Harr, L. (2007): Precise Calculation of Complex Radioactive Decay Chains. Master thesis, Air Force Institute of Technology, S.8. [Url: https://scholar.afit.edu/cgi/viewcontent.cgi?article=3925&context=etd](https://scholar.afit.edu/cgi/viewcontent.cgi?article=3925&context=etd). (Stand 5/2020)
- [3] Radulescu, G., Gauld, I. & Ilas, G. (2010): SCALE 5.1 Predictions of PWR Spent Nuclear Fuel Isotopic Compositions. ORNL-TM [reports]. U.S. Atomic Energy Commission, ORNL/TM-2010/44, S.74-78. [Url: https://doi.org/10.2172/983556](https://doi.org/10.2172/983556). (Stand 5/2020)

Danksagung

Die vorliegende Arbeit wurde im Rahmen der gemeinsamen Qualitätsoffensive Lehrerbildung von Bund und Ländern aus Mitteln des Bundesministeriums für Bildung und Forschung im Projekt „Lehrerbildung PLUS“ (Förderkennzeichen 01JA1907A) unterstützt.