

Partitioning und Transmutation

C. Fazio, J. U. Knebel, W. Tromm, Programm Nukleare Sicherheitsforschung;
A. Geist, K. Gompfer, INE

Einleitung

Aus Kernkraftwerken werden weltweit pro Jahr ca. 10.000 Tonnen abgebrannte Kernbrennstoffe entladen, die sicher entsorgt werden müssen. Vor dem Hintergrund der langen Halbwertszeiten einiger Radionuklide muss über sehr lange Zeiträume sichergestellt sein, dass keine Freisetzung von radioaktiven Stoffen aus einem Endlager erfolgt. International werden deshalb Alternativen zur Endlagerung langlebiger Radionuklide untersucht. Dabei sollen diese Radionuklide durch geeignete Prozesse aus dem abgebrannten Kernbrennstoff abgetrennt (P, Partitioning) und dann in speziellen Anlagen durch Neutronenreaktionen in stabile oder kurzlebige Isotope umgewandelt (T, Transmutation) werden. Die Radiotoxizität der verbleibenden endgelagerten Abfälle wäre nach einigen hundert Jahren auf das Niveau des natürlichen Urans abgeklungen, was das Langzeitgefährdungspotenzial minimieren würde. Die FuE-Arbeiten zu Partitioning und Transmutation konzentrieren sich im Forschungszentrum auf Plutonium (Pu) und die sogenannten minoren Actiniden Neptunium (Np), Americium (Am) und Curium (Cm), da diese über sehr lange Zeiträume die Radiotoxizität in den abgebrannten Kernbrennstoffen bestimmen.

Partitioning

Partitioning kann hydrometallurgisch, also aus wässrigen Lösungen, oder pyrometallurgisch aus Salzschnmelzen erfolgen. Die pyrometallurgischen Verfahren haben noch nicht das Entwicklungsstadium der hydrometallurgischen

Verfahren erreicht, die zum Teil schon seit mehreren Jahrzehnten angewandt werden, z. B. im PUREX-Prozess zur Wiederaufarbeitung von Kernbrennstoffen.

Am Institut für Nukleare Entsorgung (INE) wird im Rahmen europäischer Forschungsprogramme die Abtrennung von Am und Cm durch Flüssig-Flüssig-Extraktion untersucht [1]. Die Arbeiten beziehen sich auf deren Koextraktion mit den Lanthaniden aus dem Raffinat des PUREX-Prozesses, sowie auf die anschließende Trennung von Am und Cm von den Lanthaniden im SANEX-Prozess (Selective Actinide EXtraction). Diese Trennung ist unumgänglich, weil die Lanthaniden im Überschuss vorliegen und zum Teil hohe Neutroneneinfangquerschnitte haben, was eine effektive Transmutation erschweren würde. Die Trennung stellt wegen der großen chemischen Ähnlichkeiten von Am und Cm und den Lanthaniden eine Herausforderung dar. Am INE wurde dazu ein hochwirksames Extraktionsmittel, das 2,6-Di(5,6-dipropyl-1,2,4-triazin-3-yl)pyridin (BTP) entwickelt (Abb. 1a) [2], das international große Beachtung fand. Es extrahiert Am und Cm hochselektiv aus 0,5–2 M Salpetersäure.

Der Grund für die hohe Selektivität von BTP ist noch nicht vollständig geklärt. Es wird angenommen, dass die Bindungen der Stickstoff-Donoratome (blau gezeichnet in Abb. 1a) des BTP zu Am bzw. Cm einen höheren kovalenten Anteil besitzen als die entsprechenden Bindungen zu den Lanthaniden. Dies könnte sich in Unterschieden der Bindungslängen zeigen. Zur Aufklärung dieser Fra-

ge wurden Am, Cm und das Lanthanid Europium mit BTP extrahiert und die Strukturen der gebildeten Komplexe in organischer Lösung mit EXAFS (Extended X-ray Absorption Fine Structure) identifiziert. Für alle $M(\text{BTP})_3$ -Komplexe (Abb. 1b) wurden aber identische Strukturen und Bindungslängen gefunden [3, 4, 5]; die Selektivität von BTP ist also nicht in strukturellen Unterschieden begründet. Eine ergänzende Untersuchung mittels TRLFS (Time-Resolved Laser-induced Fluorescence Spectroscopy) zeigte aber, dass der $\text{Cm}(\text{BTP})_3$ -Komplex bereits bei wesentlich niedrigerem BTP-zu-Metallionen-Konzentrationsverhältnis

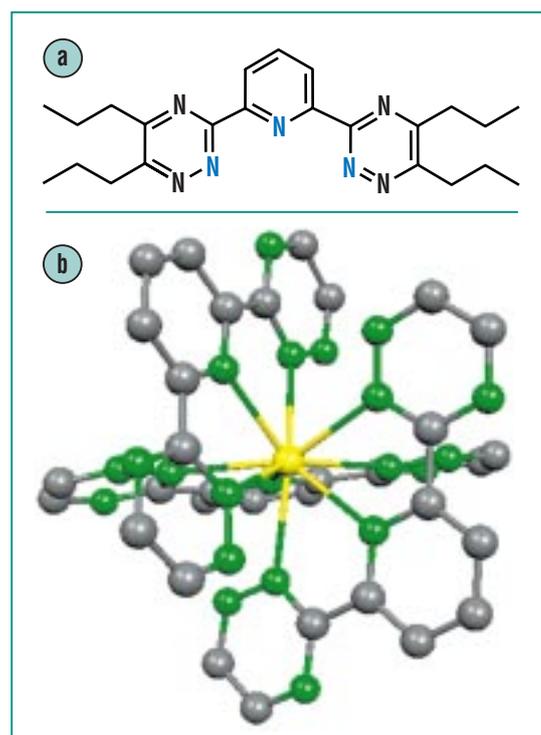


Abb. 1: a) 2,6-Di(5,6-dipropyl-1,2,4-triazin-3-yl)pyridin (BTP)
b) Berechnete räumliche Struktur der $M(\text{BTP})_3$ -Komplexe. Gelb = Metallion M (Americium, Curium oder Europium); grün = Stickstoff; grau = Kohlenstoff. Wasserstoff-Atome und Alkyl-Reste sind nicht gezeigt.

gebildet wird als der entsprechende Europium-Komplex [3, 5]. Dies deutet darauf hin, dass die größere Affinität von BTP zu den dreiwertigen Actiniden als Grund für die hohe Selektivität angesehen werden kann.

Zur Untersuchung und Erprobung kontinuierlicher Extraktionsprozesse wurden am INE sogenannte Miniatur-Hohlfasermodule (HFM), bestehend aus rund 100 mikroporösen Hohlfasern, entwickelt [6]. Sie besitzen durch die dichte Packung der Fasern eine große Austauschfläche. Aus mehreren gekoppelten Miniatur-HFM wurde eine HFM-Microplant entwickelt und aufgebaut, die kontinuierliche Trennprozesse mit lediglich ca. 30 mL Feedphasen ermöglicht [7]. Mit dieser Apparatur konnten aus simuliertem PUREX-Raffinat über 99,9 % Am und Cm abgetrennt werden. In einem SANEX-Test mit BTP als Extraktionsmittel wurde Am zu über 99,9 % abgetrennt, während lediglich ca. 1 % der Lanthaniden mit extrahiert wurde [6].

Eine für den Einsatz in Heißen Zellen weiterentwickelte Version der HFM-Microplant wurde angefertigt (Abb. 2), und in enger Zusammenarbeit mit dem Europäischen Institut für Transurane (ITU) getestet. Mit ihr sollen Extraktionsversuche mit echtem hochradioaktivem PUREX-Raffinat in den Heißen Zellen des ITU durchgeführt werden.

Transmutation

Für die Transmutation werden weltweit spezielle beschleunigergetriebene, unterkritische Anlagen untersucht. Im April 2005 startete dazu das EU-Projekt EUROTRANS (EUROPäisches Forschungsprogramm für die TRANsmutation hoch radioaktiver Abfälle in beschleunigergetriebenen Systemen (ADS)) unter der Koordination des Forschungszentrums Karlsruhe [8]. Insgesamt sind daran 42 Partner aus Forschung, Industrie und Lehre aus 14 europäischen Ländern beteiligt. Prinzipielle Zielsetzung ist die Machbarkeit der Transmu-

tation der langlebigen Radionuklide in kurzlebige Radioisotope oder stabile Elemente zu demonstrieren. In diesem Projekt wird eine unterkritische beschleunigergetriebene Anordnung (Accelerator Driven System, ADS) untersucht, die durch die Kopplung eines Protonenbeschleunigers mit einem unterkritischen Kern herausragende, inhärente Sicherheitseigenschaften aufweist. Thermohydraulische und materialspezifische Untersuchungen in großskaligen Versuchsanlagen dienen dazu, die notwendigen Technologien und Werkstoffe zu entwickeln. Parallel dazu wird das große Sicherheitspotenzial dieser Systeme geprüft und bewertet. Sämtliche Arbeiten sind in Szenariostudien einbezogen, die die Untersuchung und Bewertung eines geschlossenen Brennstoffkreislaufs zum Ziel haben.

Als strategisches Forschungsziel auf diesem Gebiet sollen Schritte für Schritt Vorarbeiten für ein europäisches Transmutations-Demonstrationsprojekt (ETD) von rund 50 bis 100 MWth erfolgen, mit der die technische Machbarkeit der Transmutation in einem beschleunigergetriebenen System (XT-ADS) nachgewiesen werden soll. Zusätzlich soll ein allgemeines Auslegungskonzept (einige hundert MWth) einer modularen europäischen Anlage für die industrielle Transmutation (EFIT) als langfristige Lösung entstehen. Beide Konstruktionen weisen dieselben grundlegenden Systemmerkmale auf, damit XT-ADS und EFIT gegenseitig skalierbar sind. Abb. 3 zeigt den grundsätzlichen Aufbau einer ADS-gestützten Transmutationsanlage.

EUROTRANS umfasst eine kritische Masse an Ressourcen und

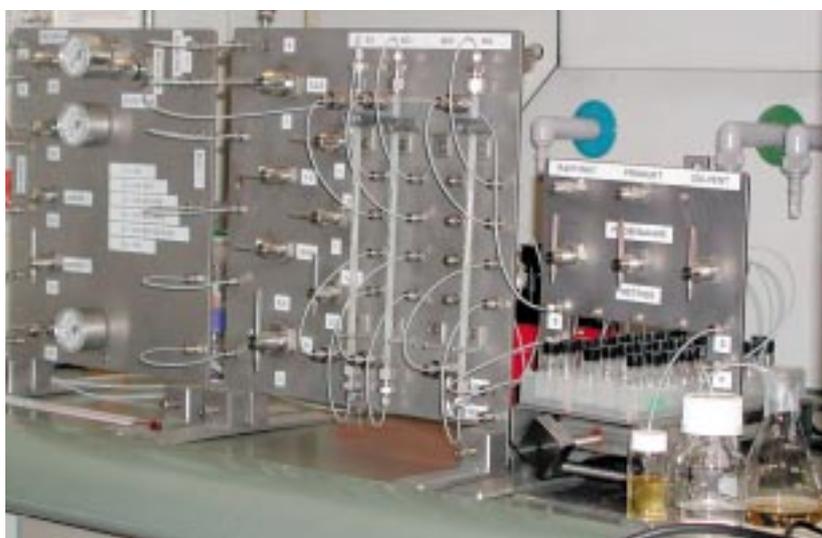


Abb. 2: Die für den Einsatz in einer Heißen Zelle entwickelte HFM-Microplant.

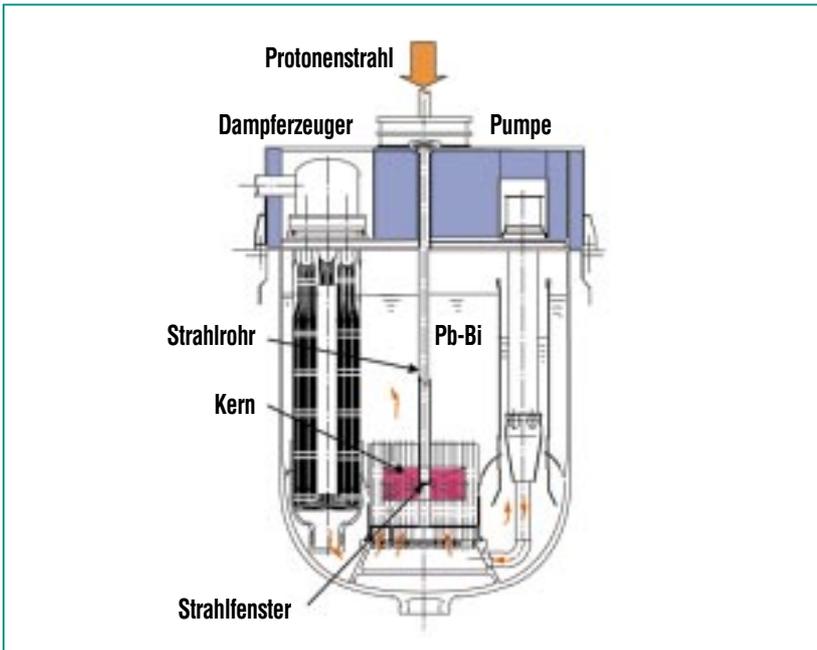


Abb. 3: Schematische Darstellung eines ADS.

Aktivitäten aus Industrie, nationalen Forschungszentren (einschließlich der Gemeinsamen Forschungsstelle) und Hochschulen in Europa. Ein wichtiges Ziel dieses Vorhabens ist auch die Ausbildung und Weiterbildung von Nachwuchswissenschaftlern in der Kerntechnik. Die Projektarbeit ist in einen Leitungsbereich und fünf technische Bereiche, sogenannte Domains gegliedert, an denen das Forschungszentrum maßgeblich mitwirkt:

- **DM0 Leitung:** Organisatorische, finanzielle und wissenschaftliche Leitung des Projekts durch das Forschungszentrum Karlsruhe.
- **DM1 DESIGN:** Ausarbeitung der Detailkonstruktion eines von einem Protonenlinearbeschleuniger getriebenen, fensterlosen unterkritischen Systems, XT-ADS, von 50–100 MWth und Konzeptentwurf von

ADS-Industrieanlagen einiger hundert MWth für die Transmutation (EFIT).

- **DM2 ECATS:** Zur Unterstützung der Konstruktion von XT-ADS und EFIT werden validierte Versuchsergebnisse aus einschlägigen Experimenten mit ausreichender Leistung (20–100 kW) über die Kopplung eines



Abb. 4: THEADES-Teststrecke des KALLA-Labors zur Untersuchung thermo-hydraulischer Fragestellungen in Blei-Wismuth.

Beschleunigers, eines Spallationstargets und eines unterkritischen Blankets zur Verfügung gestellt.

- **DM3 AFTRA:** Entwicklung von uranfreien Oxidbrennstoffen, wie z. B. $(Pu, MA, Zr)O_2$ oder CERCER $(Pu, MA)O_2 + MgO$ oder CERMET $(Pu, MA)O_2 + Mo$, zur Erprobung in Form von einzelnen Spezialbrennstäben im XT-ADS sowie als mögliche Brennstoffe für eine volle Kernladung in EFIT [9].
- **DM4 DEMETRA:** Entwicklung und Beurteilung von Strukturmaterialien und flüssigem Schwermetall (HLM) in Form von Blei- und Blei-Wismut-Technologien für Transmutationssysteme, in denen das HLM sowohl als Spallationsmaterial wie auch als Kernkühlmittel dient. Hier steht dem Forschungszentrum mit dem KALLA-Labor ein in Europa einzigartiges Labor zur Verfügung (Abb. 4) [10, 11]
- **DM5 NUDATRA:** Verbesserung von Kerndatensammlungen, Prüfung von Kernmodellen mit

Hilfe von Sensitivitätsanalysen und einer Validierung der Simulationswerkzeuge.

Das strategische Ergebnis dieses Vorhabens dürfte eine zuverlässi-

ge, dem Stand von Wissenschaft und Technik entsprechende Grundlage darstellen, auf der die technische Machbarkeit der Transmutation durch ADS beurteilt und eine erste Kostenschätzung für ein

ADS-gestütztes Transmutations-system abgegeben werden kann [12].

Literatur

- [1] A. Geist, K. Gompper, M. Weigl, T. Fanghänel, *Nachrichten – Forschungszentrum Karlsruhe 2004*, 36 (2), 97–102
- [2] Z. Kolarik, U. Müllich, F. Gassner, *Solvent Extr. Ion Exch.* 1999, 17 (5), 1155–1170
- [3] M.A. Denecke, A. Rossberg, P.J. Panak, M. Weigl, B. Schimmelpfennig, A. Geist, *Inorg. Chem.* 2005, 44 (23), 8418–8425.
- [4] M.A. Denecke, A. Geist, M. Weigl, P.J. Panak, B. Schimmelpfennig, *ANKA Annual Report 2005*, S. 86–87. Forschungszentrum Karlsruhe GmbH
- [5] A. Geist, M.A. Denecke, P.J. Panak, M. Weigl, B. Schimmelpfennig, K. Gompper, *Nachrichten – Forschungszentrum Karlsruhe 2005*, 37 (4), 191–196
- [6] A. Geist, M. Weigl, K. Gompper, *Radiochim. Acta* 2005, 93, 197–202
- [7] A. Geist, M. Weigl, K. Gompper, *Proc. Internat. Solvent Extraction Conf. (ISEC 2005), Beijing, China, September 19–23, 2005*, p. 659–664.
- [8] J. Knebel, *European Research Programme for the Transmutation of high Level Nuclear Waste in an Accelerator Driven System, Euratom Research Projects and Training Activities, Volume II, EUR 21229*, 2006
- [9] X.-N. Chen, T. Suzuki, A. Rineiski, M. Mori, C. Matherath Boccaccini, W. Maschek, K. Morita, Analysis of Transients and Severe Accidents in Accelerator Driven Transmuters (ADTs) of the 800 MWth Class with Fertile-Free Fuels (470kB), Proceedings of GLOBAL 2005, Tsukuba, Japan, Oct 9–13, 2005, Paper No. 152
- [10] R. Stieglitz, C. Fazio, J. Knebel, G. Müller, J. Konys, *Heavy-Liquid Metal Technologies Development in KALLA, 2006 International Congress on Advances in Nuclear Power Plants (ICAPP '06), Reno, Nev., June 4–8, 2006*
- [11] A. Weisenburger, G. Müller, A. Heinzl, V. Engelko, A. Rousanov, „Corrosion of modified FeCrAlY Coated Cladding Tubes in Liquid PbBi“, *Proceedings of the European Corrosion Congress EUROCORR 2005, Lisbon (2005)*, 553
- [12] J. Knebel et al, *EUROTRANS, European Research Programme for the Transmutation of High Level Nuclear Waste in an Accelerator Driven System, FISA 2006, EU Research and Training in Reactor Systems, March 2006*