

**KERNFORSCHUNGSZENTRUM
KARLSRUHE**

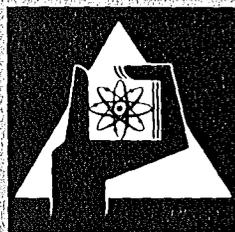
Juni 1977

KFK 2431

Abteilung für Angewandte Systemanalyse

**Entwicklung einer Bestrahlungstechnologie für
Am-241 zu dessen Rückführung in Reaktoren -
ein Beitrag zur Reduktion des
Schadenspotentials von α -Strahlern in
radioaktiven Abfällen**

R. Gasteiger



**GESELLSCHAFT
FÜR
KERNFORSCHUNG M.B.H.**

KARLSRUHE

Als Manuskript vervielfältigt

Für diesen Bericht behalten wir uns alle Rechte vor

GESELLSCHAFT FÜR KERNFORSCHUNG M. B. H.
KARLSRUHE

K E R N F O R S C H U N G S Z E N T R U M K A R L S R U H E

Abteilung für Angewandte Systemanalyse

KFK 2431

Entwicklung einer Bestrahlungstechnologie für Am-241
zu dessen Rückführung in Reaktoren -
ein Beitrag zur Reduktion des Schadenspotentials von
 α -Strahlern in radioaktiven Abfällen

von

R. Gasteiger

Vom Fachbereich für Chemie, Biologie und Geowissenschaften
der Technischen Universität München genehmigte Dissertation

Gesellschaft für Kernforschung mbH, Karlsruhe

Die in diesem Bericht beschriebenen Bestrahlungsexperimente wurden in den Jahren 1972 bis 1974 im Rahmen des Projekts Actiniden (PACT) der Gesellschaft für Kernforschung durchgeführt. Nachdem inzwischen auch die Nachbestrahlungsuntersuchungen abgeschlossen werden konnten, gibt dieser Bericht eine abschließende Zusammenfassung der im Teilprojekt 3112 "Herstellung von Transuranen" des Projekt-Programms angefallenen Ergebnisse.

Zusammenfassung

Entwicklung einer Bestrahlungstechnologie für Am-241 zu dessen Rückführung in Reaktoren - ein Beitrag zur Reduktion des Schadenspotentials von α -Strahlern in radioaktiven Abfällen

In dem vorliegenden Bericht wird eine Bestrahlungstechnologie für Am-241 vorgestellt. Es werden die Teilschritte Auslegung, Herstellung, Transport und Nachuntersuchungen der Bestrahlungsstäbe sowie der Ablauf der eigentlichen Bestrahlungen beschrieben. Im theoretischen Teil der Arbeit wird auf die Reduktionsmöglichkeiten des Schadenspotentials radioaktiver Stoffe durch Rückführung dieser in Reaktoren eingegangen.

Abstract

Development of an Irradiation Technology for the Recycling of Am-241 in Nuclear Reactors - a Contribution to the Possibilities for the Reduction of the Hazard Potential of α -Bearing Wastes

This report gives a detailed description of the irradiation technology for the recycling of Am-241 in nuclear reactors. The different steps i.e., design, manufacture, transport, and post-irradiation-examinations for the irradiation pins, as well as the irradiations themselves are discussed. The theoretical part of this report shows the possibilities for reduction of the hazard potential of radionuclides with respect to their recycling in nuclear reactors.

Inhaltsverzeichnis

	Seite	
1.	Einführung und Problemstellung	1
2.	Theoretische Vorüberlegungen	7
2.1.	Verfügbarkeit von Am-241	7
2.1.1.	Zeitlicher Verlauf der Energieerzeugung	9
2.1.2.	Am-241-Anfall bei der Herstellung von Pu-haltigen Brennelementen	10
2.1.3.	Am-241-Anfall bei der Wiederaufarbeitung abgebrannter Brennelemente	14
2.2	Überlegungen und Rechnungen zum Schadenspotential radioaktiver Stoffe	18
2.2.1	Definition des Relativen Schadenspotentials radioaktiver Stoffe	18
2.2.2	Das Relative Schadenspotential von abgebranntem Kernbrennstoff	24
2.3	Das Relative Schadenspotential von Am-haltigen Abfällen aus der Pu-Verarbeitung und die Möglichkeiten seiner Reduktion	33
2.3.1	Das RSP der Pu/Am-Abfalllösung ohne zusätzliche Behandlung (Fallstudie 1: Referenzfall)	33
2.3.2	Das RSP der Pu/Am-Abfalllösung bei weiterer Pu-Abtrennung (Fallstudie 2)	34
2.3.3	Das RSP der Pu/Am-Abfalllösung nach Langzeitbestrahlung mit Neutronen (Fallstudie 3)	35
2.3.4	Das RSP der Pu/Am-Abfalllösung nach realisierbaren Bestrahlungen mit Neutronen (Fallstudien 4/5)	39
3.	Durchführung von Bestrahlungen mit Am-241 in Forschungsreaktoren	53
3.1	Überblick über bisher durchgeführte Bestrahlungen von Actiniden	53
3.1.1	Savannah River Laboratory	53
3.1.2	Oak Ridge National Laboratory	54
3.1.3.	Europäisches Institut für Transurane, Karlsruhe	56
3.1.4	Institut für Radiochemie, Technische Universität München	56

3.2	Auslegung der Bestrahlungsstäbe	57
3.2.1	Mechanische Auslegung der Bestrahlungsstäbe	57
3.2.2	Nukleares Verhalten der Bestrahlungsstäbe	61
3.2.2.1	Nuklid Aufbau bei Bestrahlung von Am-241	64
3.2.2.2	Wärmefreisetzung durch Spaltung und α -Zerfall	71
3.2.2.3	Temperaturprofil im Bestrahlungsstab bei maximaler Wärmefreisetzung	73
3.3	Herstellung der Bestrahlungsstäbe und Bestrahlungsvorrichtungen	76
3.3.1	Herstellung der Pellets	76
3.3.2	Füllen der Bestrahlungsstäbe	87
3.3.3	Schweißen der Bestrahlungsstäbe	91
3.3.4	Assemblieren der Bestrahlungssinsätze	92
3.4	Ablauf der Bestrahlungen	95
3.5	Transporte von unbestrahlten und bestrahlten Stäben	101
4.	Nachbestrahlungsuntersuchungen	104
4.1	Visuelle Kontrolle der Bestrahlungsstäbe	105
4.2	Dimensionskontrolle	106
4.3	Bestimmung von Wärmeentwicklung und Oberflächentemperatur	109
4.4	Gamma-Scanning	111
4.5	γ - und n-Dosisleistungsmessungen	114
4.6	Untersuchungen an den bestrahlten Pellets	115
4.7	Bestimmung der durch Bestrahlung erzeugten Gasmengen	126
4.8	Langzeituntersuchungen an Pellets	129
4.9	Diskussion der Nachbestrahlungsuntersuchungen	130
5.	Ausblick auf Durchführungsmöglichkeiten von Bestrahlungen in Leistungsreaktoren	131
6.	Diskussion	135
7.	Literaturverzeichnis	140

Verzeichnis verwendeter Abkürzungen

a	Zeiteinheit, Jahr
Abb.	Abbildung
Ac	Actinium
Am	Americium
A_{sp}	spezifische Aktivität
Bk	Berkelium
BSP	Bruttosozialprodukt
Cf	Californium
Cm	Curium
Cs	Cäsium
d	Zeiteinheit, Tag
EÄE	Essigsäureäthylester
Es	Einsteinium
HAW	hochaktiver Abfall
HTR	Hochtemperaturreaktor
ICRP	International Commission on Radiological Protection
keV	Energieeinheit
LWR	Leichtwasserreaktor
m^3	Raumeinheit
MWd/t	Einheit des Abbrandes von Kernbrennstoff
MW_e	elektrische Leistungseinheit
MZK_L	maximal zulässige Konzentration in Luft
MZK_W	maximal zulässige Konzentration in Wasser
Np	Neptunium
Pa	Protactinium
Pu	Plutonium
RSP	Relatives Schadenspotential

RSP _M	Relatives Schadenspotential einer Nuklid-Mischung
RTI	Relativer Toxizitätsindex
SBR	Schneller Brutreaktor
Sr	Strontium
t	Masseneinheit
t _{SM}	Masse Schwermetall
Th	Thorium
Tab.	Tabelle

1. Einführung und Problemstellung

Sowohl bei der Kernenergieerzeugung als auch beim Betrieb der zugehörigen Anlagen des Brennstoffzyklus entstehen zwangsläufig radioaktive Abfälle, die aufgrund ihrer möglichen physikalisch-biologischen Wechselwirkung eine beträchtliche potentielle Gefährdung darstellen und daher bei ihrer weiteren Handhabung erhebliche Sorgfalt, verbunden mit entsprechendem technischen Aufwand, erfordern. Alle Sicherheitsmaßnahmen in Zusammenhang mit dem Betrieb kerntechnischer Anlagen haben daher zum Ziel, generell die Abgabe größerer Mengen bzw. die unkontrollierte Abgabe kleiner Mengen radioaktiver Produkte an die Umwelt zu verhindern und somit akute oder gar bleibende Schäden in den uns umgebenden Lebensbereichen oder an Personen zu vermeiden. Der Bearbeitung und Lösung all d e r Probleme des Brennstoffkreislaufes, bei denen radioaktive Produkte freigesetzt werden könnten, kommt heute eine hohe Dringlichkeit zu, da sonst der nukleare Brennstoffkreislauf nicht schließbar und somit die Energieversorgung der nächsten 15 - 30 Jahre, die zu einem hohen Anteil nuklearer Energie bedarf, nicht sichergestellt werden kann. Aufgrund dieser Überlegung tritt insbesondere die Bearbeitung der technischen Probleme in Zusammenhang mit der Handhabung und Beseitigung bzw. Lagerung radioaktiver Abfälle in den Vordergrund.

In noch beschränktem Umfang entstehen heute radioaktive Abfälle in Kernkraftwerken, in Wiederaufarbeitungsanlagen für abgebrannte Brennelemente, in den übrigen Anlagen der Brennstoffkreislauf-Industrie sowie in kerntechnischen Forschungseinrichtungen und bei Herstellern und Benützern radioaktiver Strahlenquellen. Die weitaus größten Aktivitätsmengen werden zukünftig in den Wiederaufarbeitungsanlagen anfallen. So erzeugt eine voll ausgelastete 1500 jato Wiederaufarbeitungs-

anlage für Brennelemente von Leichtwasserreaktoren täglich mehr als 3 m^3 hochaktive flüssige Abfalllösung mit einer Gesamtaktivität von über 10^7 Ci /1/.

Weltweit ist gegenwärtig das Problem der Behandlung der radioaktiven Abfälle Gegenstand umfangreicher Forschungs- und Entwicklungsarbeiten. Ein langfristig akzeptables Konzept ist - abgesehen von einigen punktuellen Ansätzen - bisher noch an keiner Stelle im technischen Maßstab realisiert worden. Dies gilt auch für die - im Vergleich zu den zukünftigen Abfällen der friedlichen Kernenergienutzung mengenmäßig allerdings geringfügigen - Abfälle aus der militärischen Anwendung der Kernspaltung im Ausland. Im Rahmen der laufenden Forschungsvorhaben zeigte sich weltweit immer deutlicher, daß die anfallenden radioaktiven Abfallmengen, nach Gruppen in β - und γ -Strahler bzw. nur α -Strahler unterteilt, unterschiedlichen Sicherheitsphilosophien unterliegen sollten. Aufgrund ihrer im allgemeinen höheren Toxizität und ihrer wesentlich größeren Halbwertszeiten stellen die α -Strahler eine größere und länger wirksame potentielle Gefährdung der Umwelt dar als die anderen radioaktiven Schadstoffe.

Die Techniken zur sicheren Beseitigung bzw. Lagerung von α -Strahlern müssen gewährleisten, daß die eingelagerten Substanzen über Jahrmillionen von der Biosphäre abgeschlossen bleiben. Dennoch bleibt, selbst wenn die entwickelten Techniken diesen extremen Ansprüchen sollten genügen können, immer noch die Unsicherheit, ob die Informationen über die Ablagerungsplätze über geologische Zeitspannen den nachfolgenden Generationen erhalten werden können, um somit unbeabsichtigte Freisetzung zu verhindern.

Da nach den Grundsätzen des Strahlenschutzes außer der verbindlichen Einhaltung maximal zulässiger Grenzwerte, für die Umgebungsbelastung die im allgemeinen noch verschärfende

Bedingung gilt, daß unvermeidbare Belastungen "so gering wie möglich (as low as possible)" sein sollen /2,3/, gehen Vorschläge aus jüngerer Zeit deshalb in die Richtung, das Langzeitproblem der α -Strahler dadurch stärker einzugrenzen, daß aus den Abfallströmen der Wiederaufarbeitungsanlagen die α -Strahler von den Spaltprodukten abgetrennt und in die Reaktoren zurückgeführt (rezykliert) werden /4/. Bei mehrfachem Rezyklieren wird hierdurch ein erheblicher Teil der α -Strahler entweder durch Kernspaltungen in Spaltprodukte oder durch Neutroneneinfänge in kurzlebige α -Strahler übergeführt. Am Beispiel von Am-241 wird dies detailliert in Kapitel 2.3 untersucht. Ähnliche Vorschläge gab es schon früher zur Transmutation von langlebigen in kurzlebige Spaltprodukte (Sr-90 und Cs-137) mittels Neutronenbestrahlung /5,6/, die allerdings mangels genügend hoher, technisch verifizierbarer, Neutronenflußdichten bis heute nicht realisierbar wurden.

Andererseits bestehen gegenwärtig noch nicht widerlegbare Zweifel, ob die einer solchen Rezyklierung von α -Strahlern notwendigerweise vorausgehende chemische Abtrennung der α -Strahler aus den Abfallströmen der Wiederaufarbeitungsanlagen mit der notwendigen hohen Ausbeute technisch verifizierbar sein wird. Aber auch an anderer Stelle im Brennstoffzyklus der nuklearen Energieerzeugung fallen α -Strahler an; so z.B. Am-241 bei der Herstellung Pu-haltiger Brennelemente. Dieses fällt, vermischt mit Resten von Plutonium, als radioaktiver Abfall an, dessen Beseitigung, d.h. Endlagerung, bereits heute, obwohl bisher nur geringe Mengen anfallen, erhebliche Schwierigkeiten bereitet. Eine quantitative Betrachtung des Anfalls von Am-241 bei der Herstellung Pu-haltiger Brennelemente erfolgt in Kap. 2.1.2.

Eine Entscheidung, ob die Rezyklierung von α -Strahlern aus gesamtheitlicher Sicht eine sinnvolle Maßnahme darstellt, kann letztlich nur getroffen werden, wenn die folgenden

Punkte einer bisher noch nicht erfolgten detaillierten Untersuchung unterzogen werden

- a) Verbesserung der Ausbeute für die Abtrennung von Actiniden aus Actiniden-/Spaltproduktmischungen
- b) Art und Menge sekundär erzeugter radioaktiver Abfälle in bezug auf ihre Konditionierbarkeit
- c) Fernbedienbare Herstellung von Brennstäben mit Actiniden-Zumischung
- d) Einsatzfähigkeit solcher Stäbe in kommerziell betriebenen Reaktoren
- e) Einfluß solcher Rückführung auf das Gesamtrisiko der nuklearen Energieerzeugung

Die vorliegende Arbeit soll zu Unterpunkt c) und d) am Beispiel von Am-241 einen Teilbeitrag zu dem oben skizzierten Gesamtproblem leisten. Das Ziel der vorliegenden Arbeit war dabei, die Auslegung und Fertigung von Versuchsstäben mit Am-241, die anschließende Bestrahlung in Reaktoren und die spätere zerstörungsfreie als auch zerstörende Nachuntersuchung dieser Versuchsstäbe zu demonstrieren.

Die Auslegung der Stäbe hatte dabei Randbedingungen zu beachten, die den späteren Einsatz solcher Stäbe in Leistungsreaktoren ermöglichen sollten, d.h. die Stäbe mußten in ihren Außendimensionen und verwendeten Hüllwerkstoffen auf heute üblicherweise angewandte Brennstabnormen abgestimmt sein.

Die Herstellung der Stäbe sollte sich weitgehend an den aus der Brennelement-Herstellung bekannten Fertigungstechniken orientieren, d.h. auf pulvermetallurgische Fertigungsverfahren zurückgreifen.

Die Bestrahlungen sollten sich zunächst auf Prototyp-Bestrahlungen in Material-Test-Reaktoren, teilweise unter simulierten Leistungs-Reaktor-Bedingungen, beschränken. Bestrahlungen in Leistungsreaktoren sind gegenwärtig aus Gründen des hierfür

notwendigen technischen Aufwandes sowie wegen der geltenden Betriebsgenehmigungen dieser Reaktoren, die solche Bestrahlungen nicht einschließen, nicht möglich.

Mit den Nachuntersuchungen sollte der Nachweis der Eignung des gewählten Konzepts erbracht und daraus evtl. Verbesserungsvorschläge abgeleitet werden.

In der vorliegenden Arbeit wird zunächst quantifiziert, welche Mengen an Am-241 in den verschiedenen Bereichen des nuklearen Brennstoffzyklus in Abhängigkeit von dem zeitlichen Verlauf eines angenommenen Szenariums für die Einführung der nuklearen Energieerzeugung in der Bundesrepublik Deutschland (Kap. 2.1) anfallen.

Es werden daran anschließend Überlegungen und Berechnungen zum Verlauf des Relativen Schadenspotentials (RSP) radioaktiver Stoffe unter besonderer Berücksichtigung der Möglichkeiten der Reduktion des RSP von Am-haltigen Abfällen, die bei der Verarbeitung von gelagertem Plutonium zu Pu-haltigen Brennelementen entstehen, gebracht (Kap. 2.2 und 2.3).

In Kap. 3 erfolgt die detaillierte Darstellung der Vorbereitung und Durchführung der Bestrahlungen, die Diskussion und Berechnung der wesentlichen Parameter für die Auslegung und Fertigung der Bestrahlungsstäbe.

Es folgt in Kap. 4 die Darstellung der wesentlichen Ergebnisse der zerstörenden sowie der zerstörungsfreien Nachbestrahlungsuntersuchungen, sowie in Kap. 5 ein Ausblick auf Möglichkeiten der Durchführung solcher Bestrahlungsexperimente in Leistungsreaktoren.

Die vorliegenden Untersuchungen beschränken sich auf einen Teilaspekt des gesamten Abfallproblems im nuklearen Brennstoffzyklus. Die Ergebnisse zeigen aber beispielhaft, welche

Möglichkeiten zur Rückführung von α -Strahlern in Reaktoren technisch realisiert werden können und welchen Einfluß die Rückführung auf das Schadenspotential dieser α -Strahler hat. Die zweifellos parallel hierzu notwendigen Untersuchungen der Verwendbarkeit der verschiedenen chemischen Separationstechniken und der damit erzielbaren Trennfaktoren, der Einfluß derartiger Bemühungen auf das Gesamtrisiko sind nicht Gegenstand dieser Arbeit.

2. Theoretische Vorüberlegungen

2.1. Verfügbarkeit von Am-241

Da bis heute keine Wiederaufarbeitungsanlage existiert, in der neben den Produkten Uran und Plutonium auch andere Actiniden-elemente separierbar wären, beschränken sich heute experimentelle Untersuchungen mit Actiniden, die über den Labormaßstab hinausgehen, meist auf die Elemente Uran und Plutonium. Dies liegt daran, daß bei Planung und Bau der heute existierenden Wiederaufarbeitungsanlagen nur der Aspekt der Rückgewinnung von spaltbarem Material zur weiteren Versorgung der Kernkraftwerke mit Brennstoff im Vordergrund stand. Erst seit deutlicher wurde, daß sich die Wiederaufarbeitung nicht durch Rückführung der Spaltstoffe ökonomisch tragen würde, gewann die Argumentation an Boden, daß Wiederaufarbeitungsanlagen primär der nuklearen Entsorgung der Kernkraftwerke, d.h. der verfahrenstechnisch sicheren und insgesamt risikoarmen Konditionierung und Endlagerung der abgebrannten Brennelemente dienen müßten /7-9/. Dieser Prozeß der Umstrukturierung in der Betrachtungsweise der Wiederaufarbeitungsanlagen ist noch nicht völlig abgeschlossen /10/; andererseits steht auch die Meinungsbildung in Hinblick auf eine gesonderte Behandlung der Abfallactiniden noch zu sehr am Anfang, als daß man in absehbarer Zeit erwarten könnte, daß Prototypwiederaufarbeitungsanlagen mit dem Ziel modifiziert würden, andere Elemente als Uran und Plutonium zu gewinnen /11,12/. Für experimentelle Untersuchungen mit anderen Actiniden in einem den Labormaßstab überschreitendem Umfang kann daher gegenwärtig nur auf Am-241 zurückgegriffen werden, das heute bereits auch außerhalb der Wiederaufarbeitungsanlagen im Brennstoffkreislauf bei der Herstellung Pu-haltiger Brennelemente anfällt (Abb. 2.1), wie im folgenden ausführlich dargestellt wird.

Am-241 ist ein Nuklid, das durch β -Zerfall aus Pu-241 entsteht (Abb 2.2, S. 9 und Tab. 3.4, S.67) und somit wegen der relativ kurzen Halbwertszeit des Mutternuklids von 14.89 Jahren /13/ im U-Pu-Brennstoffkreislauf dort auftritt, wo mit Pu-haltigen Kernbrennstoffen umgegangen wird /14/; dies ist der Fall bei der Wiederaufarbeitung abgebrannter Brennelemente, bei der (vgl. Tab. 2.5, S.26) Am-241, vermischt mit Am-243 und anderen Actinidennukliden, in den hochaktiven Abfall gelangt, sowie bei der Herstellung Pu-haltiger Brennelemente, bei der aus Strahlenschutzgründen das sich während der Lagerzeit des Plutoniums nachgebildete Am-241 (hier in reiner Form) kurz vor Verarbeitung des Plutoniums abgetrennt werden muß. Die Verfügbarkeit von Am-241 hängt somit unmittelbar mit den Massenströmen im nuklearen Brennstoffkreislauf zusammen und ist deshalb - ebenso wie der Kernbrennstoffdurchsatz selbst - eine Funktion von erzieltm Abbrand, Lagerzeiten der Brennstoffe und zeitlichem Verlauf der nuklearen Energieerzeugung.

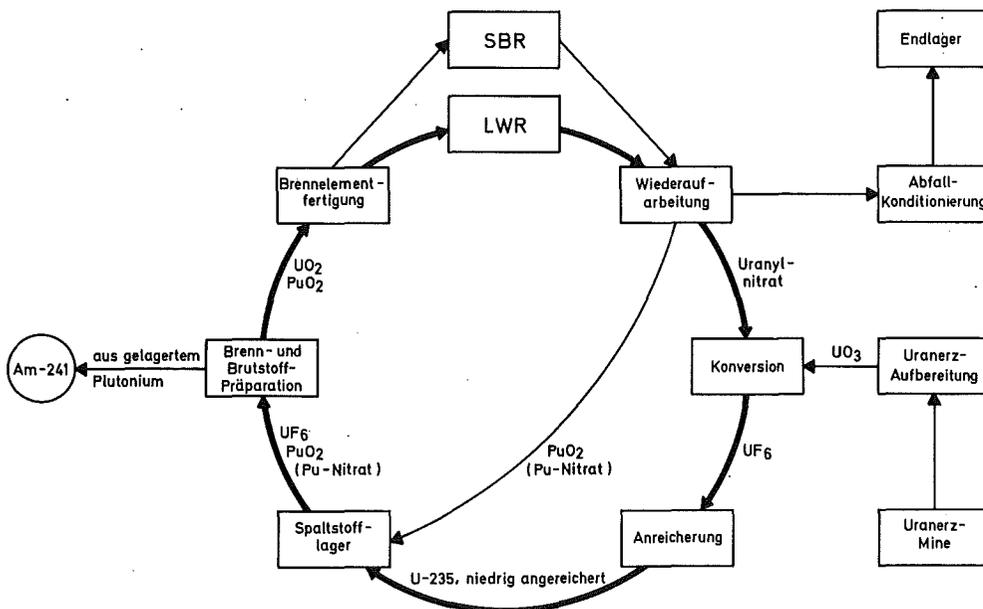


Abb. 2.1: Nuklearer Brennstoffkreislauf (schematisch)

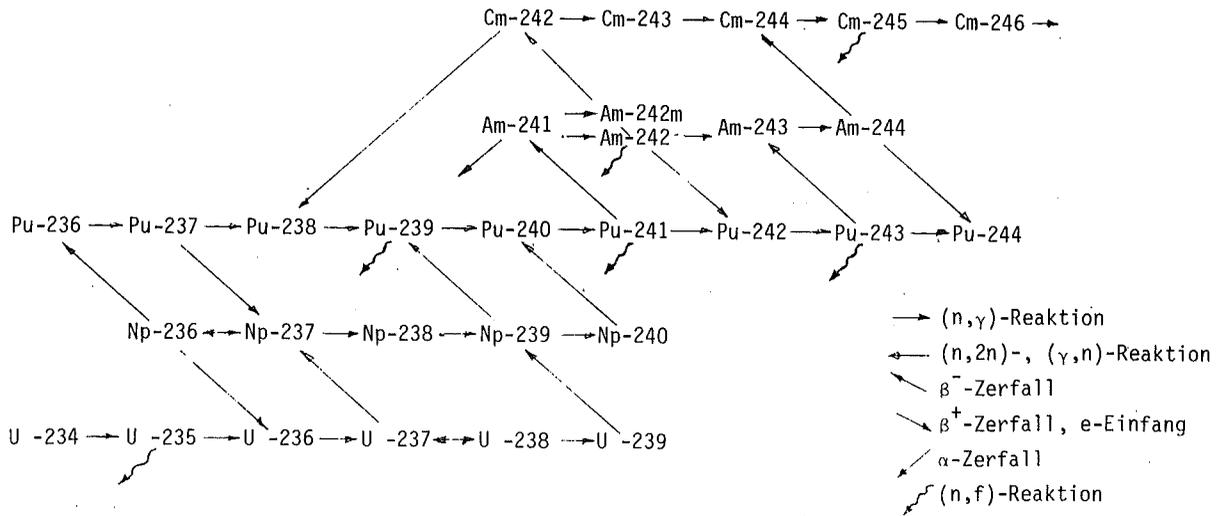


Abb. 2.2: Aufbaukette der höheren Actiniden und Bildung von Am-241 aus Pu-241; Reaktionsquerschnitte und Halbwertszeiten gemäß Tab. 3.4, S.67

2.1.1. Zeitlicher Verlauf der nuklearen Energieerzeugung

Aufgrund verschiedener Literaturangaben /15-19/ lassen sich für die Bundesrepublik Deutschland Abschätzungen über die voraussichtliche installierte Kernkraftwerksleistung durchführen. Bis zum Jahre 1985 ergeben sich auf dieser Basis recht verlässliche Werte, da hier von Kernkraftwerken ausgegangen werden kann, die bereits im Bau, bestellt oder in Detailplanung sind; die darüber hinausgehenden Extrapolationen bis zum Jahr 2000 orientieren sich meist an Schätzungen des voraussichtlichen Wachstums des Bruttosozialproduktes (BSP), obwohl in letzter Zeit Zweifel an der Richtigkeit der ständigen Proportionalität zwischen BSP und Energiebedarf immer deutlicher wurden. Um der Vielzahl bereits existierender Prognosen nicht noch eine weitere eigene hinzuzufügen, wird für diese Arbeit ein Szenarium nach /20/ übernommen. Abb. 2.3 zeigt die

danach erwartete installierte Kernkraftwerksleistung. Für den LWR-Anteil an der gesamten installierten nuklearen Leistung wurde hier angenommen, daß dieser etwa gegen die Jahrhundertwende in einen Sättigungsbereich gelangt. Darüberhinaus ggfs. notwendig werdender Mehrbedarf wird durch fortgeschrittene Reaktortypen (HTR, SBR) gedeckt, die in der vorliegenden Arbeit jedoch - da der Unsicherheitsbereich der Prognose bereits größer wird, als der hier nur der Vollständigkeit wegen eingezeichnete Anteil von HTR und SBR - für die folgende quantitative Betrachtung unberücksichtigt bleibt.

Auf der Basis des in Abb. 2.3 dargestellten Szenariums läßt sich der in Abb. 2.4 und 2.5 dargestellte jährliche bzw. kumulierte Anfall von Plutonium errechnen. In diese Berechnung gehen als wesentliche Größen neben den ausschließlich reaktionsspezifischen Kerndaten (vgl. Tab. 3.4, S.67), kernkraftwerk-spezifische Betriebsparameter ein, die für die heute übliche Blockgröße von 1300 MW_e in Tab. 2.1, S.11 zusammengestellt sind. Das in den entstandenen Pu-Mengen enthaltene Pu-241 ist die Quelle für den Anfall von reinem Am-241.

2.1.2. Am-241-Anfall bei der Herstellung von Pu-haltigen Brennelementen

Die heute existierenden Wiederaufarbeitungsanlagen für Kernbrennstoffe produzieren wegen ihrer noch geringen Kapazität Plutonium noch in sehr geringen Mengen; dennoch kann bereits heute dieses Produkt bisher nicht unmittelbar wieder als Kernbrennstoff den Reaktoren zugeführt (Rezyklierung) werden, da sich die Technik der Pu-Rezyklierung noch im Erprobungsstadium befindet; das anfallende Plutonium wird vielmehr heute überwiegend gelagert. Lagerzeiten für Plutonium werden sich

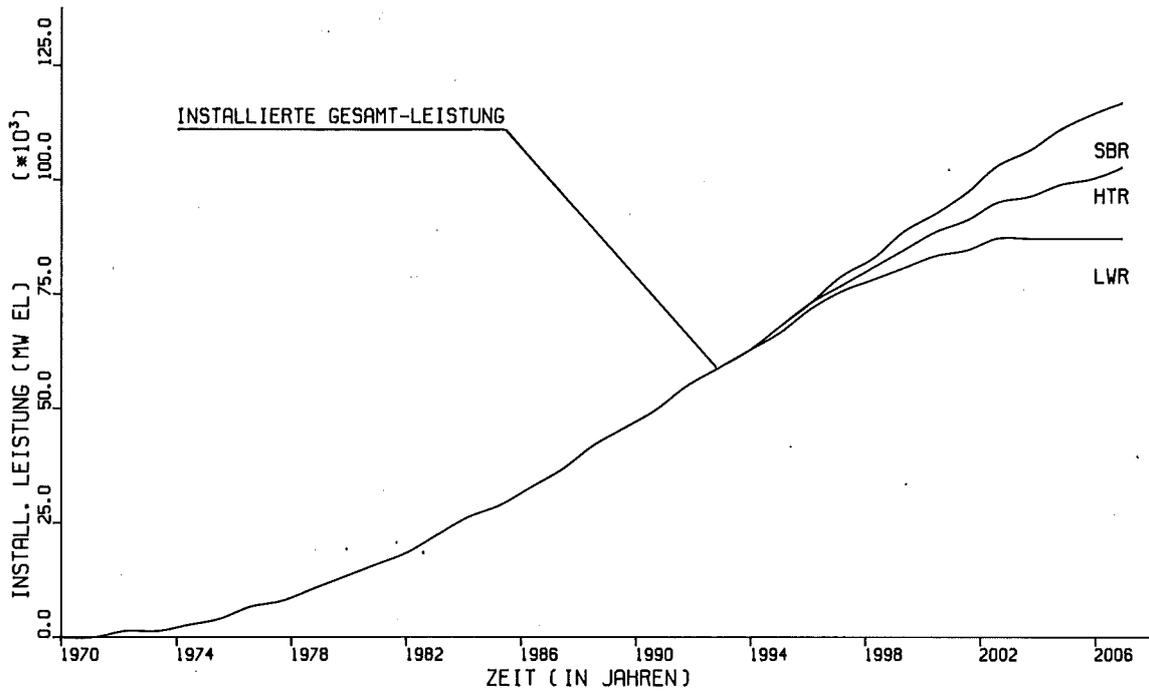


Abb. 2.3: Ausgewähltes Szenarium der erwarteten Kernenergie-Installation

Tab.2.1: KKW-Betriebsparameter zur Berechnung der Pu-Mengen nach Abb. 2.4 /21/

Parameter	Wert
Abbrand	36.000 MWd/t
Standzeit	1.000 d
Anfangsanreicherung	3.5 % U-235
Brennstoffdurchsatz	30.75 t/a
Lastfaktor	0.7
Kühlzeit	365 d
KKW-Blockgröße	1.300 MW _e
Wirkungsgrad	30 %

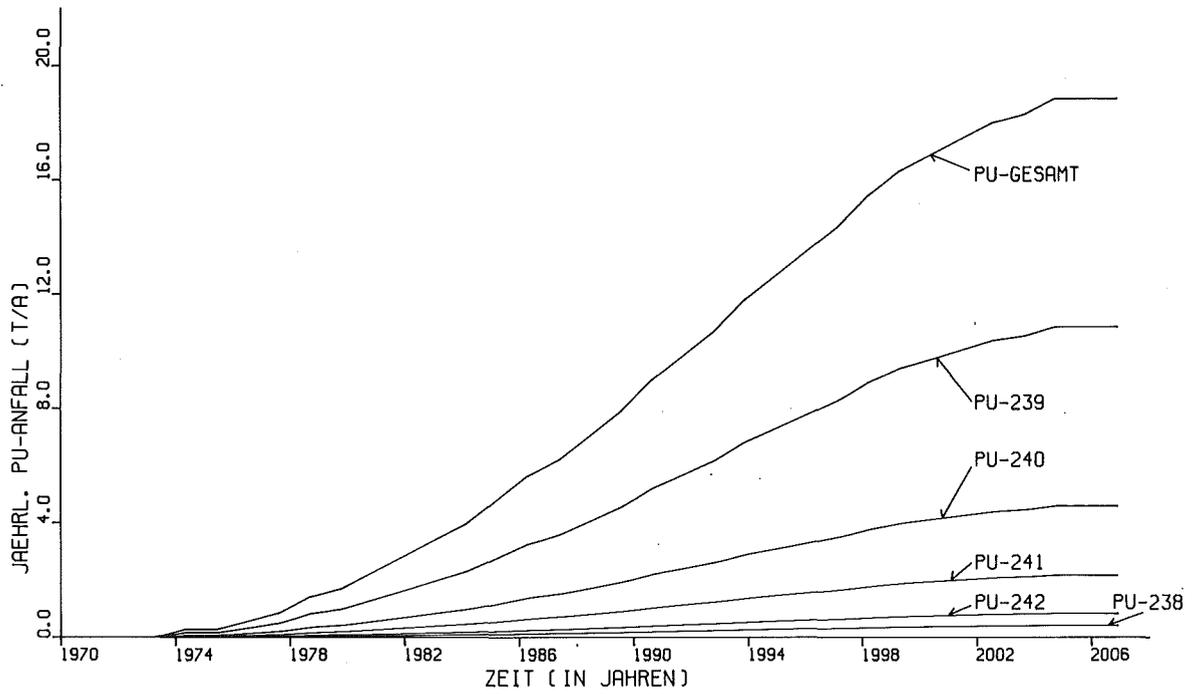


Abb. 2.4: Bei der Kernenergie-Erzeugung jährlich entstehende Pu-Mengen

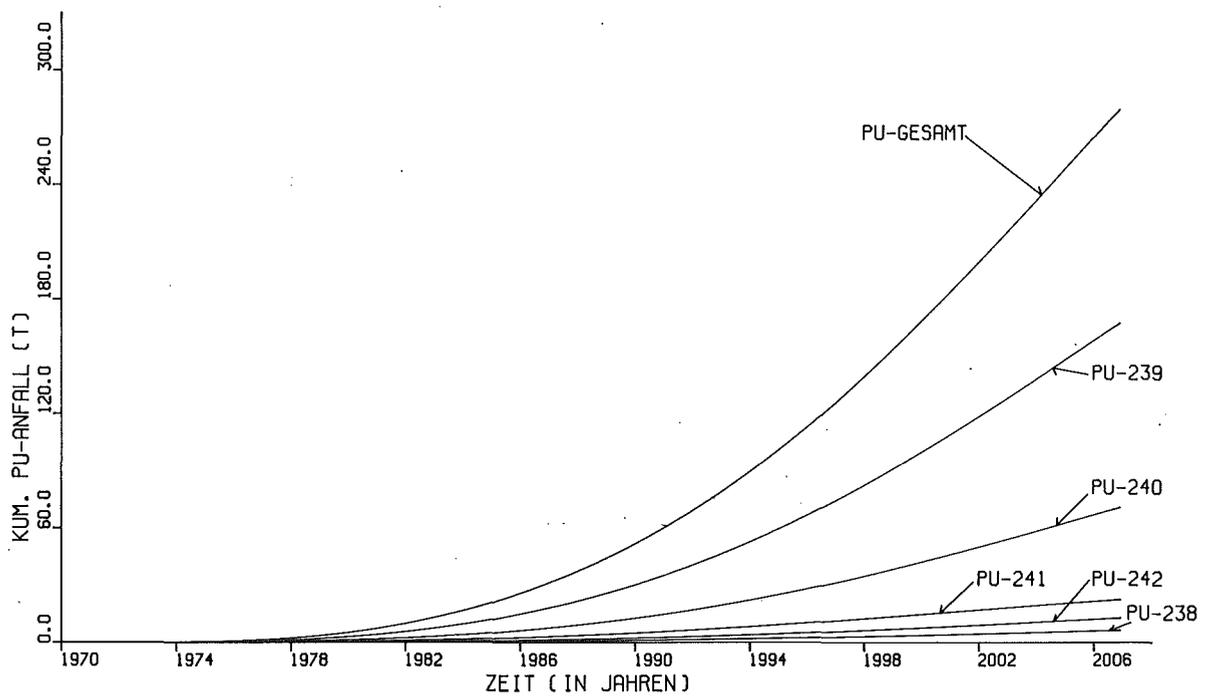


Abb. 2.5: Bei der Kernenergie-Erzeugung kumuliert entstehende Pu-Mengen

aber auch auf längere Sicht nicht vollständig vermeiden lassen. Als Folge der Lagerzeiten ist bis zur Weiterverarbeitung ein erheblicher Anteil des im Plutonium enthaltenen Pu-241 in Am-241 (vgl. Abb. 2.2, S. 9) zerfallen. Da die Brennelementherstellung mit Pu-haltigem Brennstoff heute noch weitgehend manuell erfolgt, stört aus Strahlenschutzgründen das Am-241 wegen seiner 60 keV- γ -Strahlung; daher wird unmittelbar vor Verarbeitung des Pu das inzwischen gebildete Am-241, meist mit Ionenaustauschverfahren, abgetrennt /22/.

Für den in dieser Arbeit vorgesehenen Betrachtungszeitraum, der bis zur Jahrhundertwende reicht, wird sich an diesem Verfahren und deshalb auch an der im folgenden durchgeführten Mengenbetrachtung nichts ändern; selbst wenn - heute nicht vorgesehen - ggfs. zu späterem Zeitpunkt der Fertigungsprozeß für Pu-haltige Brennelemente auf Fernbedienbarkeit umgestellt würde, muß im hier vorgesehenen Betrachtungszeitraum das Plutonium mengenmäßig noch weitgehend manuell verarbeitet werden; denn nach bisherigen Erfahrungen bei der Inbetriebnahme von abgeschirmten Anlagen, erfordert die Erstellung und Erprobung einer solchen Anlage bis zur Fertigungsreife eine Zeitspanne von mindestens 10 Jahren.

Wegen der Halbwertszeit des Pu-241 von 14.89 Jahren /13/, zerfallen jährlich $\sim 5\%$ des Pu-241 zu Am-241. Es ist daher unmittelbar einleuchtend, daß in die Berechnung des Anfalls von Am-241 aus der Verarbeitung von gelagertem Plutonium zu Pu-haltigen Brennelementen als wesentliche Größe die voraussichtliche Lagerzeit des Plutoniums eingeht. Wegen der Kosten der Am-Abtrennung und insbesondere auch wegen der Kosten der heute auf die Abtrennung folgenden notwendigen Endlagerung des abgetrennten Americiums, ist es ferner einleuchtend, daß die Brennelement-Hersteller bestrebt sein werden, die Zwischenlagerzeiten für Plutonium ständig zu verkürzen. Es wurde daher für die folgende Berechnung des Am-Anfalls einmal, als obere Grenze, davon ausgegangen, daß alles anfallende Plutonium ohne weitere Verwendung gelagert und so der jeweils zeitab-

hängige Anfall an Am-241 berechnet wird; zum anderen, als untere Grenze, wurde davon ausgegangen, daß ein bestimmter Anteil des Plutoniums nicht gelagert, sondern direkt, der restliche Anteil nach einer mittleren Lagerzeit von 1 Jahr zu Brennelementen verarbeitet wird. Nur aus den letzteren Pu-Mengen fällt das Am-241 an. Die Grenzkurve (Abb. 2.6) zwischen den beiden Anteilen folgt in ihrem zeitlichen Verlauf den aus der Markteinführung von Produkten bekannten Gesetzmäßigkeiten /23/, wobei angenommen wird, daß, um den Betrieb der Brennelementfertigung vom Betrieb der Wiederaufarbeitung zu entkoppeln, immer eine Plutoniummenge von 20 % mit einer mittleren Lagerzeit von 1 Jahr als Puffer gelagert werden muß.

Unter diesen Annahmen ergibt sich der in Abb. 2.7 kumuliert dargestellte Bereich des Anfalls von Am-241. Hiernach fallen bis zur Jahrhundertwende kumuliert zwischen 2 und 5 t Am-241 an, jenachdem wie schnell die Rückführung von Plutonium in Reaktoren eingeführt werden kann.

2.1.3. Am-241-Anfall bei der Wiederaufarbeitung abgebrannter Brennelemente

Wie oben schon ausgeführt, existiert heute keine Wiederaufarbeitungsanlage in der bereits Americium abgetrennt würde. Nach den heute üblichen Fließschemata für Wiederaufarbeitungsanlagen gelangt das Americium, im wesentlichen Am-241 und Am-243, mit den Spaltprodukten in die Abfallströme der Wiederaufarbeitungsanlagen. Abb. 2.8 zeigt die in einem Leichtwasser-Reaktor als Funktion des Abbrandes entstehenden Americium-Mengen normiert auf 1 t Schwermetall im eingesetzten Brennstoff. Legt man das in Abb. 2.3 dargestellte Szenarium für die nukleare Energieerzeugung zugrunde, so ergibt sich der in Abb. 2.9 dargestellte jährliche Anfall von Am-241 und Am-243, um die

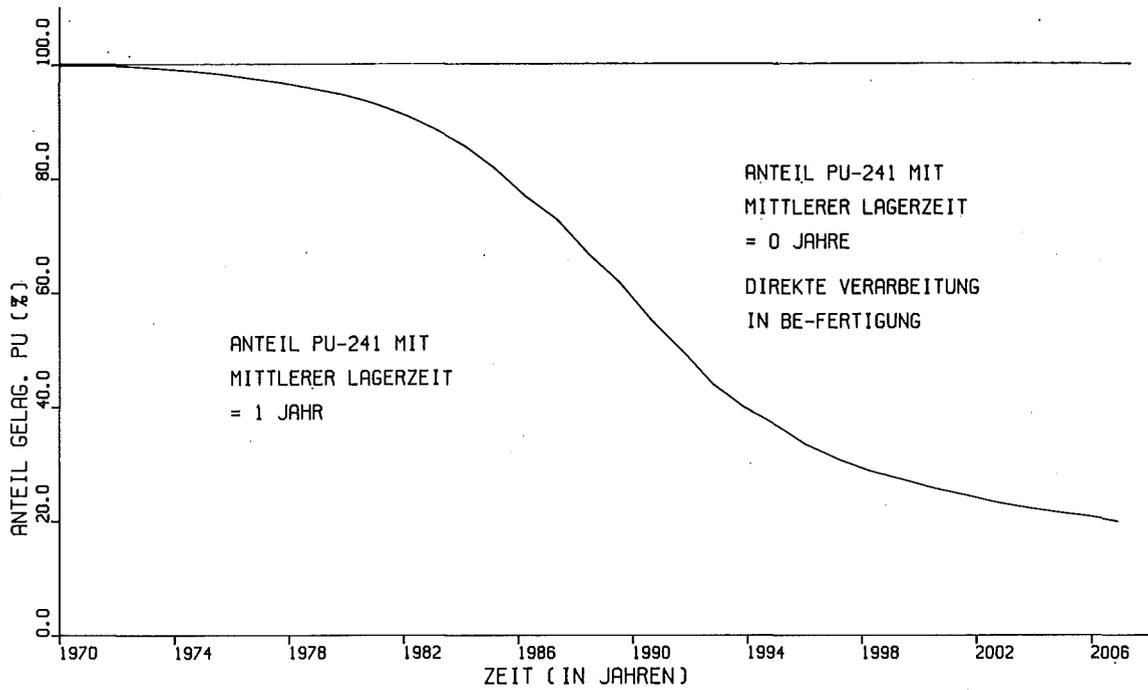


Abb. 2.6: Grenzkurve bezüglich der Plutoniumanteile ohne bzw. mit Lagerzeit vor Weiterverarbeitung zu Brennelementen

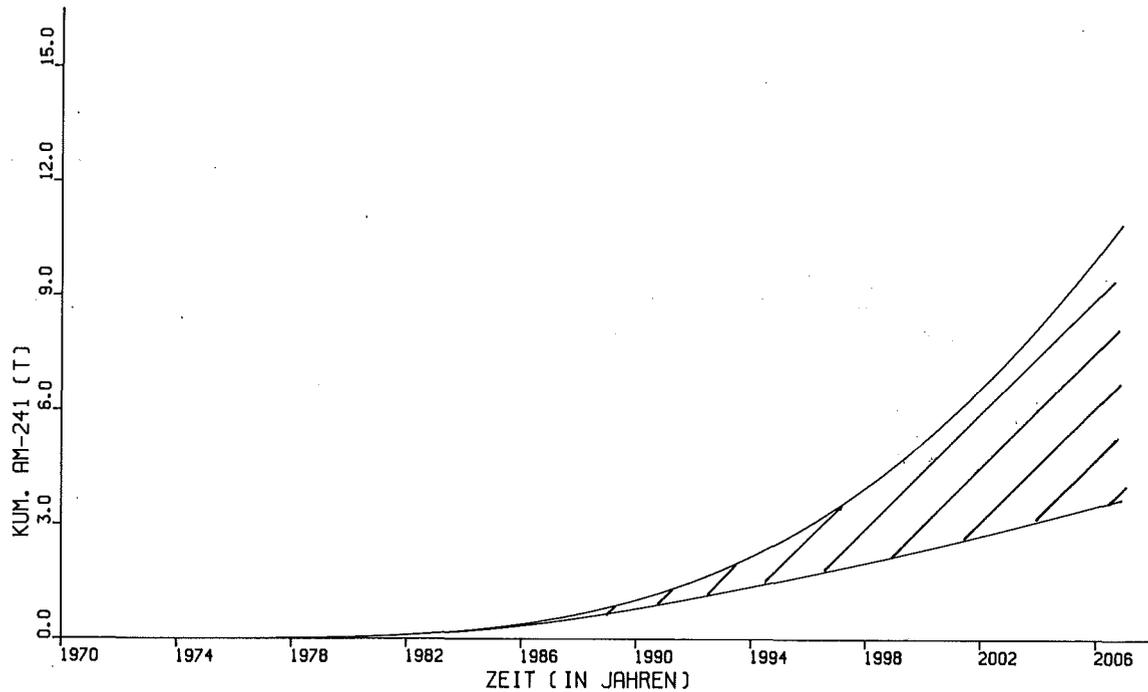


Abb. 2.7: Anfall von Am-241, kumuliert, unter verschiedenen extremen Annahmen bezüglich der Lagerzeiten des Plutoniums

Jahrhundertwende immerhin fast 500 kg/a; kumulativ ergeben sich (Abb. 2.10) bis zum Jahr 2000 ca. 4 t Am-241/243, d.h. das im Gegensatz hierzu aus der Lagerung von Plutonium zu erwartende Am-241 (Abb. 2.7, S.15) liegt mengenmäßig in derselben Größenordnung. Die Berechnung beschränkte sich dabei auf den heute in Wiederaufarbeitungsanlagen üblicherweise bei Planungsaufgaben benutzten Abbrandwert von 36.000 MWd/t für LWR-Brennstoff.

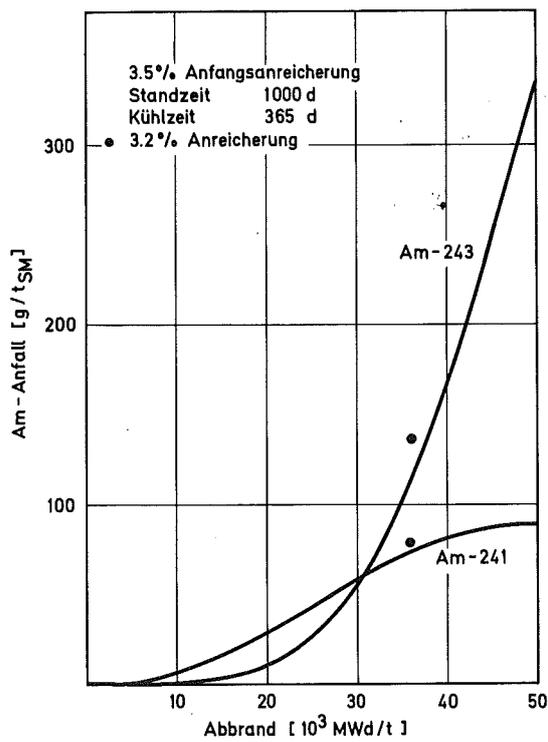


Abb. 2.8: Americium-Gehalt im abgebrannten LWR-Brennstoff als Funktion des Abbrandes

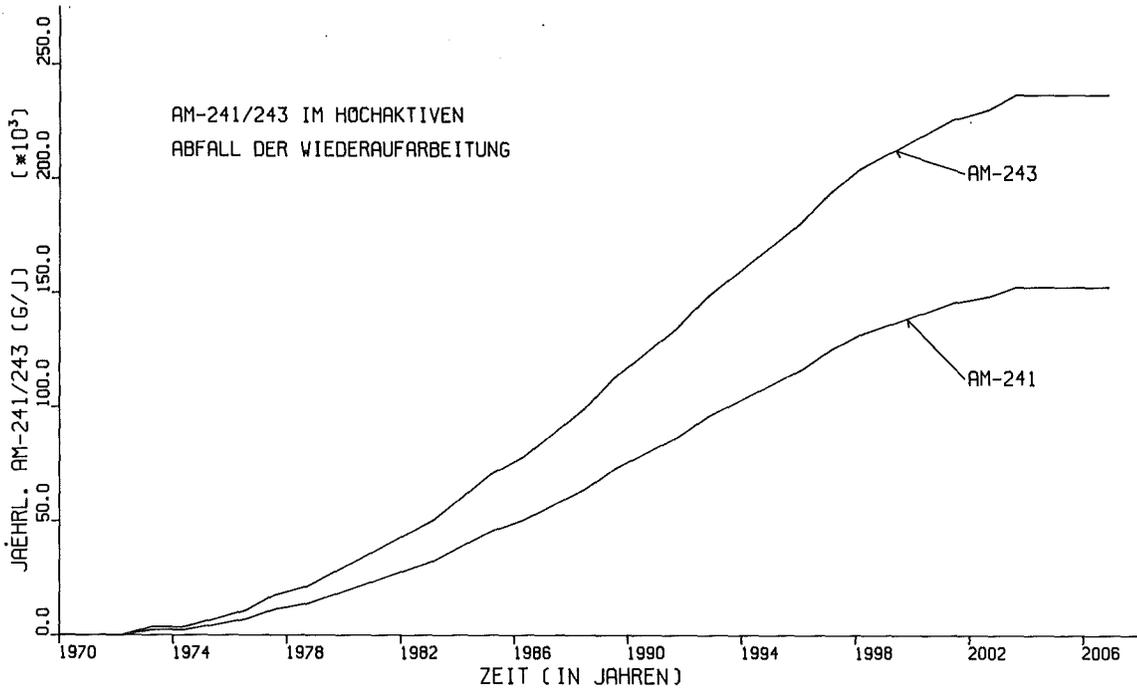


Abb. 2.9: Jährlicher Anfall von Am-241 und Am-243 bei der Wiederaufarbeitung von LWR-Brennstoff; Abbrand 36.000 MWd/t, Szenarium nach Abb. 2.3

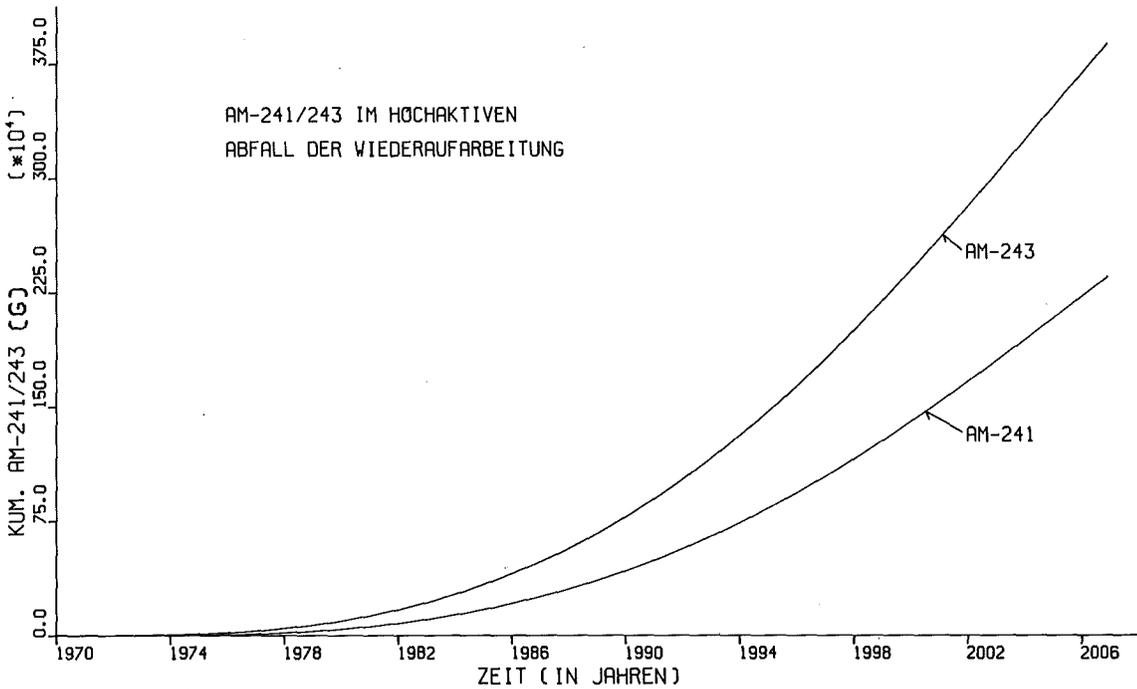


Abb. 2.10: Kumulierter Anfall von Am-241 und Am-243 bei der Wiederaufarbeitung von LWR-Brennstoff; Abbrand 36.000 MWd/t, Szenarium nach Abb. 2.3

2.2. Überlegungen und Rechnungen zum Schadenspotential radioaktiver Stoffe

Um radioaktive Schadstoffe in bezug auf ihre Gefährdungsmöglichkeit miteinander vergleichen zu können, bedarf es einer gemeinsamen Bezugsbasis, die neben dem qualitativ einfachsten Vergleichsniveau, den Aktivitäten, auch die biologischen Schädigungsmöglichkeiten jedes einzelnen Nuklids berücksichtigt. Eine solche Basis wurde mit der Erstellung der ICRP-Normen /24/ geschaffen, die höchstzulässige Konzentrationen für die menschlichen Lebensbereiche (Wasser, Luft) angeben und dabei Akkumulationsvorgänge in einzelnen Organen berücksichtigen. Es soll hier nicht weiter diskutiert werden, inwieweit diese so erhaltene Skala zweifelsfrei angewendet werden kann. Unter Verwendung dieser Skala wurde jedoch in den letzten Jahren der Begriff des " S c h a d e n s p o t e n t i a l s " oder " G e f ä h r d u n g s i n d e x " geprägt /4/, oder besser - da absolute Werte technologieabhängig und mit heute verfügbaren Methoden nicht bestimmbar sind - der Begriff des " R e l a t i v e n S c h a d e n s p o t e n t i a l s " (RSP) /25/. Diesem Kapitel wird deshalb eine kurze Einführung zum Begriff des Relativen Schadenspotentials mit Diskussion der Möglichkeiten und Anwendungsgrenzen dieses Begriffes vorangestellt.

2.2.1. Definition des Relativen Schadenspotentials radioaktiver Stoffe

Radioaktive Stoffe unterliegen strengen, international festgelegten Richtlinien zur Einhaltung von höchstzulässigen Konzentrationswerten /24/ für verschiedene Lebensbereiche wie Luft, Wasser, Oberflächenkontaminationen von Gegenständen sowie für Inkorporationen durch Personen.

Folgt man den in /24/ dargelegten Ausführungen, dann besteht bis zum Erreichen der jeweiligen höchstzulässigen Konzentrationenwerte keine Gefahr für Leben und Wohlergehen der Menschen (d.h. kein Auftreten somatischer Schäden) und auch zusätzliche Mutationen (genetische Schäden) treten nur mit unwesentlich höherer Wahrscheinlichkeit ein als durch natürliche Einwirkungen, so kann das Relative Schadenspotential (RSP) einer gewissen Menge eines radioaktiven Stoffes als die Verhältniszahl

$$\text{RSP} = \frac{\text{Volumen des notwendigen Verdünnungsmittels bis zum Erreichen der zulässigen ICRP-Konzentration [m}^3\text{/g]}}{\text{Masse des radioaktiven Stoffes [g]}}$$

ausgedrückt werden und gibt damit an, welches Volumen des Verdünnungsmittels durch diese radioaktive Substanz theoretisch ungenießbar gemacht, d.h. bis zu der oben definierten Schädlichkeitsgrenze kontaminiert, werden kann.

Die Angabe der spezifischen Aktivität (A_{sp})

$$A_{\text{sp}} = \frac{\text{Aktivität des Radionuklids [Ci]}}{\text{Masse des Radionuklids [g]}}$$

ist insofern nicht ausreichend, als die unterschiedlichen biologischen Faktoren, wie chemische Toxizität und Radiotoxizität, biologische Halbwertszeiten, spezifische Organschädigungen u.ä. nicht berücksichtigt werden. Durch die Angabe des RSP läßt sich für jede Mischung verschiedener Radionuklide ein spezifischer Gefährdungswert unter Einbeziehung der biologischen Wirkungen angeben, soweit diese bei der Definition der höchstzulässigen Konzentrationen berücksichtigt wurden.

Für die nachfolgenden Kalkulationen wurden die in Tab. 2.3 dargestellten zulässigen Konzentrationswerte für die verschiedenen Actiniden-Nuklide (einschließlich Actinium) benutzt /26/.

Tab. 2.3: Maximal zulässige Konzentration (MZK_{H₂O}) von Actiniden, einschließlich Actinium, in Wasser ^{2/26/}

Nuklid	zul. Konzentration [Ci/m ³ _{H₂O}]	Nuklid	zul. Konzentration [Ci/m ³ _{H₂O}]	Nuklid	zul. Konzentration [Ci/m ³ _{H₂O}]
Ac-225	3.00 x 10 ⁻⁸	U -237	3.00 x 10 ⁻⁶	Am-243	4.00 x 10 ⁻⁶
Ac-227	2.00 x 10 ⁻⁶	U -238	4.00 x 10 ⁻⁵	Am-244	5.00 x 10 ⁻³
Ac-228	9.00 x 10 ⁻⁵	U -239	1.00	Am-245	3.00 x 10 ⁻⁵
Th-227	3.00 x 10 ⁻⁸	U -240	3.00 x 10 ⁻⁵	Cm-242	2.00 x 10 ⁻⁵
Th-228	7.00 x 10 ⁻⁶	Np-236	3.00 x 10 ⁻⁶	Cm-243	5.00 x 10 ⁻⁶
Th-229	3.00 x 10 ⁻⁸	Np-237	3.00 x 10 ⁻⁶	Cm-244	7.00 x 10 ⁻⁶
Th-230	2.00 x 10 ⁻⁶	Np-238	3.00 x 10 ⁻⁶	Cm-245	3.00 x 10 ⁻⁸
Th-231	3.00 x 10 ⁻⁶	Np-239	1.00 x 10 ⁻⁴	Cm-246	3.00 x 10 ⁻⁸
Th-232	2.00 x 10 ⁻⁶	Np-240m	1.00	Cm-247	3.00 x 10 ⁻⁸
Th-233	1.00	Np-240	1.00	Cm-248	3.00 x 10 ⁻⁸
Th-234	2.00 x 10 ⁻⁵	Pu-236	3.00 x 10 ⁻⁸	Cm-249	1.00
Pa-231	9.00 x 10 ⁻⁷	Pu-238	5.00 x 10 ⁻⁶	Cm-250	3.00 x 10 ⁻⁸
Pa-232	3.00 x 10 ⁻⁶	Pu-239	5.00 x 10 ⁻⁶	Bk-249	3.00 x 10 ⁻⁵
Pa-233	1.00 x 10 ⁻⁴	Pu-240	5.00 x 10 ⁻⁶	Bk-250	3.00 x 10 ⁻⁵
Pa-234m	1.00	Pu-241	2.00 x 10 ⁻⁴	Cf-249	3.00 x 10 ⁻⁵
Pa-234	3.00 x 10 ⁻⁶	Pu-242	5.00 x 10 ⁻⁶	Cf-250	3.00 x 10 ⁻⁸
U -232	3.00 x 10 ⁻⁵	Pu-243	3.00 x 10 ⁻⁴	Cf-251	3.00 x 10 ⁻⁸
U -233	3.00 x 10 ⁻⁵	Pu-244	3.00 x 10 ⁻³	Cf-252	3.00 x 10 ⁻⁸
U -234	3.00 x 10 ⁻⁵	Pu-245	3.00 x 10 ⁻⁶	Cf-253	3.00 x 10 ⁻⁸
U -235	3.00 x 10 ⁻⁵	Am-241	4.00 x 10 ⁻⁶	Cf-254	3.00 x 10 ⁻⁸
U -236	3.00 x 10 ⁻⁵	Am-242m	4.00 x 10 ⁻⁶	Es-253	3.00 x 10 ⁻⁸
		Am-242	3.00 x 10 ⁻⁶		

Einen Eindruck von der Größenordnung des Relativen Schadenspotentials verschiedener radioaktiver Nuklide, normiert auf 1 g, vermittelt Tab. 2.4; diese zeigt zum Vergleich auch die spezifische Aktivität sowie die auf U-238 normierten Änderungen von RSP bzw. spezifischer Aktivität.

Für eine beliebige Mischung von Radionukliden läßt sich aus Tab. 2.3 das Relative Schadenspotential durch Summation der Einzelwerte nach folgender Gleichung berechnen

$$RSP_M = \sum_i \frac{A_i}{MZK_{W,i}} [m^3_{H_2O}] ,$$

wobei A_i die Aktivität des i-ten Radionuklids [Ci]
 MZK_i die maximal zulässige Konzentration [Ci/m³_{H₂O}]
 des i-ten Radionuklids in Wasser
 bedeutet.

Tab. 2.4: Aktivität und Relatives Schadenspotential verschiedener Radionuklide, bezogen auf jeweils 1 g Substanz

Isotop	Aktivität (Ci)	Änderung $\frac{A_{sp,n}}{A_{sp,U-238}}$	Rel. Schadensp. (m ³)	Änderung $\frac{RSP_n}{RSP_{U-238}}$
U -238	3.33×10^{-7}	1.0	8.33×10^{-3}	1.0
U -235	2.14×10^{-6}	6.4	7.13×10^{-2}	8.5
Pu-239	6.13×10^{-2}	1.8×10^5	1.22×10^4	1.5×10^6
Am-241	3.43	1.0×10^7	8.58×10^5	1.0×10^8
Pu-238	1.70×10^1	5.1×10^7	3.40×10^6	4.1×10^8
Cm-242	3.31×10^3	9.9×10^9	1.65×10^8	2.0×10^{10}

Diese Definition des RSP hat den Vorteil großer Einfachheit der Handhabung. Da jedoch keinerlei Informationen über den Ausbreitungsweg der Radioaktivität bis zur Aufnahme in den menschlichen Körper (Ingestion) in diese Darstellung einfließen, liefert diese Methode nur eine konservative obere Grenze der zu erwartenden Gefährdung. Die Bestimmung der tatsächlichen Gefährdung kann nur über wesentlich komplexere Ansätze erfolgen, die die tatsächlichen technologischen Gegebenheiten - z.B. im Sinne störfallbedingter Freisetzungsraten - mit berücksichtigen. Das Relative Schadenspotential gemäß obiger Definition kann demnach nicht - wie man dies mit einer anlagenbezogenen Größe tun könnte - dazu benutzt werden, das Risiko oder die Akzeptierbarkeit einer bestimmten Abfallagerungstechnologie zu ermitteln, sondern kann als inventarbezogene Größe ausschließlich dazu benutzt werden, Abfallmengen als Schadstoffinventare ohne Berücksichtigung ihrer Umhüllung in ihrer Gesamtheit miteinander zu vergleichen.

An dieser Feststellung ändert sich auch dann nichts, wenn versucht wird /27/, durch Quotientenbildung des Relativen Schadenspotentials einer bestimmten Abfallmenge und dem Relativen Schadenspotential der z.B. in 1 t natürlichem Uranerz vorkommenden U-238/U-235-Menge im Gleichgewicht mit den Zerfallsprodukten nach folgender Gleichung einen dimensionslosen Relativen Toxizitätsindex (RTI) zu definieren

$$RTI = \frac{RSP_{\text{Abfall}}}{RSP_{\text{U-Erz}}} = \frac{\sum_i \frac{A_i}{MZK_{W,i}} (1 \text{ t verf. Abfall}) \quad [m^3_{H_2O}]}{\sum_j \frac{A_j}{MZK_{W,j}} (1 \text{ t U-Erz}) \quad [m^3_{H_2O}]}$$

Der Zweck eines solchen Vergleiches mit U-Erz besteht letztlich darin, den Relativen Toxizitätsindex (RTI) als eine Größe heranzuziehen, mit deren Hilfe beurteilt werden soll, ob eine bestimmte Abfallmenge ebenso akzeptierbar sein könnte, wie das in der Erdkruste vorkommende U-Erz, über dessen Akzeptierbarkeit jedoch zumindest in den Fällen, in denen aus technischen Gründen intensiver Kontakt zwischen Menschen und U-Erz besteht, diskutiert werden kann. Die Verwendung des RTI ist insofern fragwürdig, als hier nur eine von vielen technischen Randbedingungen, nämlich die Schadstoffkonzentration in 1 t verfestigtem Abfall, mit einbezogen wurde.

Wie sich leicht an einem Beispiel, nämlich dem des Endlagers für radioaktive Abfälle, zeigen läßt, wird hier in unzulässiger Weise das Relative Schadenspotential (RSP) durch Verwendung von nur einem einzigen anlagenbezogenem Parameter dazu benutzt, den Übergang zur Risikodarstellung bzw. Akzeptierbarkeitsdarstellung durchzuführen.

Nehmen wir an, für eine bestimmte Abfalleinlagerungsform ergibt sich $RTI = 1$, so heißt dies nach obiger Gleichung /27/, diese Einlagerungsform der radioaktiven Abfälle wäre nicht risikoreicher als natürliches U-Erz in diesem Endlager einzulagern. Geht man nun zu einem Einlagerungsprodukt über, das nur die

Hälfte der vorherigen Konzentration an radioaktiven Schadstoffen pro Volumen aufweist, so erniedrigt sich der RTI auf 0,5; dafür muß aber in eben dieses Endlager das doppelte Volumen verfestigten Abfalls eingelagert werden, am gesamten Schadstoffinventar des Endlagers ändert sich damit nichts. Nebenbei sei bemerkt, daß sich auch am Gesamtvolumen des Endlagers nichts ändert, da dieses im wesentlichen durch seine thermische Belastbarkeit bestimmt wird, die aber in diesem Beispiel konstant bleibt. Da das tatsächliche Risiko an der Erdoberfläche in erster Näherung proportional zur eingelagerten Schadstoffmenge ist, bleibt dieses Risiko - mit heutigen Methoden leider nicht quantifizierbar - konstant, während der RTI eine Erniedrigung dieses Risikos um den Faktor 2 vortäuscht.

Es wurde hier an einem Beispiel versucht, die Grenzen der Aussagekraft des RSP und seiner Ableitungen aufzuzeigen. Trotz dieser Grenzen kann das Relative Schadenspotential zum Vergleich von radioaktiven Schadstoffmengen untereinander erfolgreich benutzt werden (Inventarvergleich), solange also keine Technologie der Einschließung dieser Stoffe mitzuberücksichtigen ist. Das RSP eignet sich deshalb insbesondere für den Vergleich von radioaktiven Schadstoffmengen, die durch technische oder physikalische Vorgänge - z.B. Bestrahlung mit Neutronen, natürlicher radioaktiver Zerfall - in ihrer Ausgangszusammensetzung verändert werden; in diesem Fall ist das RSP auch ein relatives Maß für die Veränderung des Risikobeitrages dieser Schadstoffmengen.

Ferner scheint nach heutigem Kenntnisstand die Anwendung des RSP auch für die Abschätzung von Risikoänderungen für kerntechnische Anlagen zulässig, wenn man als Bezugswerte für die Schadstoffmengen nicht die Inventare sondern die störfallbedingten Freisetzungen heranzieht /60/ und gewährleistet ist, daß die emittierten Schadstoffmengen ähnliches chemisches Verhalten zeigen.

Es soll an dieser Stelle noch einmal deutlich darauf hingewiesen werden, daß die Verwendung des RSP als Beurteilungsgröße für radioaktive Schadstoffgemische wegen ihrer Einheit $\text{m}^3_{\text{H}_2\text{O}}$ nicht etwa den Eindruck erwecken darf, es wäre eine technisch und ökologisch sinnvolle Lösung, die anfallenden Aktivitätsmengen etwa durch Verdünnen mit den entsprechenden Wassermengen, z.B. Meerwasser, "unschädlich" zu machen.

In /28/ wird versucht, die o.g. Einschränkungen in der Verwendung des RSP zu verringern, indem sowohl Ingestion, als auch Inhalation, jeweils kombiniert mit der Aufnahmewahrscheinlichkeit für den Menschen, mit in die Darstellung einbezogen werden. Die Bestimmung dieser Aufnahmewahrscheinlichkeiten ist jedoch sehr schwierig, da derzeit nicht genügend statistisches Material über Unfallhäufigkeiten und radioaktive Freisetzungen in bezug auf die Behandlung radioaktiver Abfälle noch über die regionalen Ernährungsgewohnheiten der betroffenen Bevölkerung vorliegen und diese auch nicht mit einfachen Methoden abgeschätzt werden können.

2.2.2. Das Relative Schadenspotential von abgebranntem Kernbrennstoff

Im folgenden wird am Beispiel des Relativen Schadenspotentials von abgebranntem Reaktorbrandstoff zum einen dessen zeitlicher Verlauf für eine Zeitspanne von 10^6 Jahren aufgezeigt, zum anderen wird mit der Analyse der nuklid-spezifischen Einzelbeiträge zum gesamten Relativen Schadenspotential dargestellt, daß gerade das für die vorliegende Arbeit ausgewählte Referenznuklid Am-241 nahezu während des gesamten Betrachtungszeitraums den wesentlichen Beitrag zum gesamten Relativen Schadenspotential liefert.

Die Berechnungen gehen aus von der Nuklidzusammensetzung von 1 t abgebranntem Kernbrennstoff (vgl. Tab. 2.5, S.26).

In /29,30/ wurden ausführliche Berechnungen über die Nuklid-erzeugung beim Betrieb zweier Referenzreaktoren - einem Leichtwasser-gekühlten Reaktor (LWR) und einem Schnellen Brutreaktor (SBR) - durchgeführt. Die Berechnungen beziehen sich auf die Angabe von Masse, Aktivität und thermischer Leistung von speziellen Spaltprodukten sowie der Actiniden (Th - Cm) jeweils normiert auf 1 t ursprünglich eingesetzten Brennstoff.

Unter Verwendung dieser Daten wurde das Relative Schadenspotential der Actinidennuklide der hochaktiven Abfallmengen (HAW) pro 1 t Brennstoff errechnet. Es wird dabei davon ausgegangen, daß durch den Wiederaufarbeitungsprozeß nur noch 0,5 % des ursprünglichen Urans bzw. Plutoniums, die anderen Actiniden quantitativ in den hochaktiven Abfall gelangen. Nach heutigem Stand der Wiederaufarbeitungstechnologie gelten Abtrennwerte für Uran und Plutonium zwischen 3 % und 0,5 % als realistisch.

Die Berechnung des zeitabhängigen RSP erfolgte, indem für jedes der in Tab. 2.5 aufgeführten Nuklide zum jeweiligen Zeitpunkt des Betrachtungszeitraums das RSP aller aus dem jeweiligen Nuklid bis dahin entstandenen Tochternuklide sowie das RSP des restlichen Mutternuklids errechnet wurde. Dies ergibt den zeitabhängigen Wert des RSP des Einzelnuklids (vgl. Abb. 2.13 und 2.14, S.31/32). Das gesamte RSP ergibt sich durch Addition dieser Einzelbeiträge. Beim Zerfall des Einzelnuklids gemäß Tab. 2.5 wurde jeweils die gesamte Zerfallskette bis zum stabilen Endnuklid berücksichtigt.

In Abb. 2.10 ist das RSP für HAW aus der Wiederaufarbeitung von Leichtwasserreaktor- bzw. Schnell-Brüter-Brennstoff unter der Annahme, daß 90 d nach Brennstoffentladung aus dem Reaktor die Wiederaufarbeitung durchgeführt wurde und dabei 99,5 % des gesamten U und Pu abgetrennt wurden, dargestellt. Die Abbildung zeigt deutlich, daß bezüglich des RSP des HAW, insbesondere für lange Betrachtungszeiträume nur ein geringer

Tab. 2.5: Zusammensetzung von LWR-Brennstoff bzw. SBR-Brennstoff
(in g/t_{SM}), Abbrand 33.000 MWd/t_{SM} /29/

LWR-Brennstoff			SBR-Brennstoff		
Nuklid	Start [g/t _{SM}]	Betriebsende [g/t _{SM}]	Nuklid	Start [g/t _{SM}]	Betriebsende [g/t _{SM}]
Th-228	0.0	8.96 · 10 ⁻⁷	Th-228	0.0	4.91 · 10 ⁻⁷
Th-229	0.0	5.88 · 10 ⁻⁸	Th-229	0.0	1.17 · 10 ⁻⁸
Th-230	0.0	5.40 · 10 ⁻⁶	Th-230	0.0	1.71 · 10 ⁻⁵
Th-231	0.0	8.93 · 10 ⁻⁹	Th-231	0.0	4.99 · 10 ⁻⁹
Th-232	0.0	2.19 · 10 ⁻⁴	Th-232	0.0	1.08 · 10 ⁻⁶
Th-233	0.0	4.66 · 10 ⁻¹⁰	Th-233	0.0	1.76 · 10 ⁻¹²
Pa-231	0.0	2.02 · 10 ⁻⁶	Pa-231	0.0	5.89 · 10 ⁻⁷
Pa-232	0.0	3.26 · 10 ⁻⁹	Pa-232	0.0	4.11 · 10 ⁻¹⁰
Pa-233	0.0	7.58 · 10 ⁻⁷	Pa-233	0.0	2.81 · 10 ⁻⁹
Pa-234m	0.0	3.67 · 10 ⁻¹⁴	Pa-234m	0.0	2.76 · 10 ⁻¹⁶
Pa-234	0.0	2.92 · 10 ⁻¹⁰	Pa-234	0.0	9.12 · 10 ⁻¹⁴
U-232	0.0	1.74 · 10 ⁻⁴	U-232	0.0	1.24 · 10 ⁻⁴
U-233	0.0	1.73 · 10 ⁻³	U-233	0.0	8.04 · 10 ⁻⁴
U-234	0.0	1.90	U-234	0.0	8.04
U-235	3,30 · 10 ⁴	7.95 · 10 ³	U-235	1,46 · 10 ³	1,42 · 10 ³
U-236	0.0	4.08 · 10 ³	U-236	0.0	3.75 · 10 ¹
U-237	0.0	1.70 · 10 ¹	U-237	0.0	2,28
U-238	9,67 · 10 ⁵	9,43 · 10 ⁵	U-238	9,20 · 10 ⁵	8,77 · 10 ⁵
U-239	0.0	5.50 · 10 ⁻¹	U-239	0.0	1,48
Np-236	0.0	7.53 · 10 ⁻⁶	Np-236	0.0	5.01 · 10 ⁻⁶
Np-237	0.0	7,44 · 10 ²	Np-237	0.0	1,24 · 10 ²
Np-238	0.0	2,80	Np-238	0.0	9,06 · 10 ⁻²
Np-239	0.0	7,91 · 10 ¹	Np-239	0.0	2,13 · 10 ²
Pu-236	0.0	1,04 · 10 ⁻³	Pu-236	0.0	7,84 · 10 ⁻⁴
Pu-238	0.0	1,60 · 10 ²	Pu-238	9,40 · 10 ²	6,62 · 10 ²
Pu-239	0.0	5,30 · 10 ³	Pu-239	4,69 · 10 ⁴	5,73 · 10 ⁴
Pu-240	0.0	2,17 · 10 ³	Pu-240	1,88 · 10 ⁴	1,93 · 10 ⁴
Pu-241	0.0	1,03 · 10 ³	Pu-241	9,43 · 10 ³	5,28 · 10 ³
Pu-242	0.0	3,49 · 10 ²	Pu-242	3,17 · 10 ³	3,26 · 10 ³
Pu-243	0.0	1,36 · 10 ⁻¹	Pu-243	0.0	1,68 · 10 ⁻¹
Am-241	0.0	3,96 · 10 ¹	Am-241	0.0	4,61 · 10 ²
Am-242m	0.0	4,14 · 10 ⁻¹	Am-242m	0.0	8,92
Am-242	0.0	6,85 · 10 ⁻²	Am-242	0.0	1,76 · 10 ⁻¹
Am-243	0.0	9,03 · 10 ¹	Am-243	0.0	2,57 · 10 ²
Am-244	0.0	4,28 · 10 ⁻³	Am-244	0.0	1,78 · 10 ⁻³
Cm-242	0.0	8,49	Cm-242	0.0	2,23 · 10 ¹
Cm-243	0.0	8,80 · 10 ⁻²	Cm-243	0.0	8,42 · 10 ⁻¹
Cm-244	0.0	3,12 · 10 ¹	Cm-244	0.0	1,53 · 10 ¹

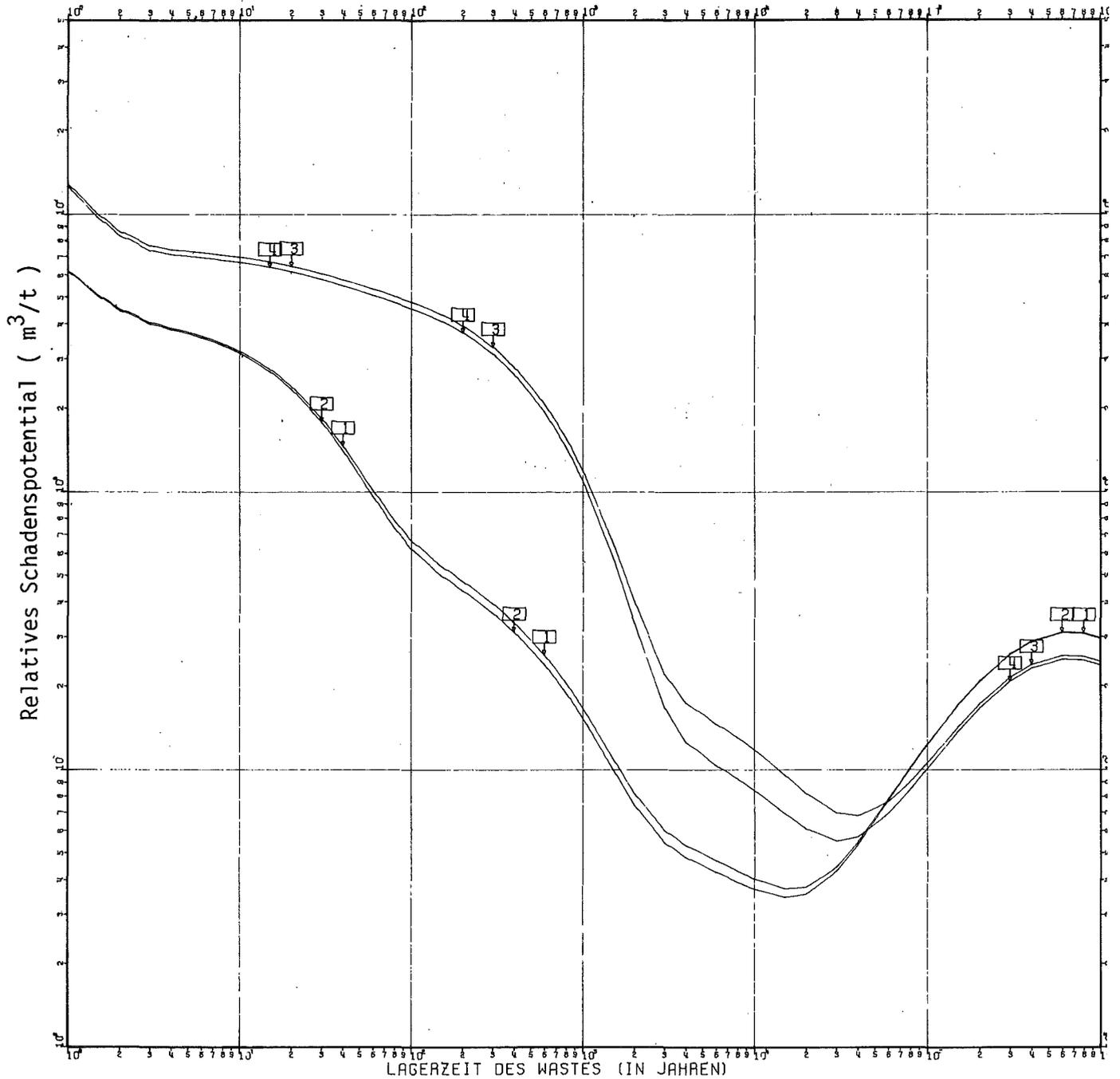
Unterschied zwischen LWR bzw. SBR besteht und daß ferner auch eine Abtrennung von U und Pu, die über 99,5 % hinausgeht, keinen wesentlichen Einfluß auf das RSP zeigt. Im folgenden wird daher nur noch mit diesem Abtrennfaktor für U und Pu weitergerechnet.

Gegenüber einer radiologisch nicht gewichteten zeitabhängigen Aktivitätsdarstellung ist insbesondere überraschend, daß das RSP nach einem ständigen Abfallen (ähnlich dem Aktivitätsverlauf) nach ca. 10.000 Jahren wieder um nahezu eine Zehnerpotenz ansteigt. Zum näheren Verständnis dieses Anstiegs sind in den Abb. 2.11 bis 2.14 die Beiträge spezieller

Einzelnuclide sowie der Elemente Th bis Cm zum gesamten in Abb. 2.10 dargestellten RSP von LWR- bzw. SBR-Brennstoff dargestellt. Es ist ersichtlich, daß im Falle des LWR (Abb. 2.11) insbesondere im mittelfristigen Bereich zwischen 100 und 10.000 Jahren, im Falle des SBR (Abb. 2.12) während des gesamten Betrachtungszeitraums die Nuklidgruppe Americium den wesentlichen Beitrag zum RSP liefert; im Falle des LWR wird diese später durch Neptunium abgelöst.

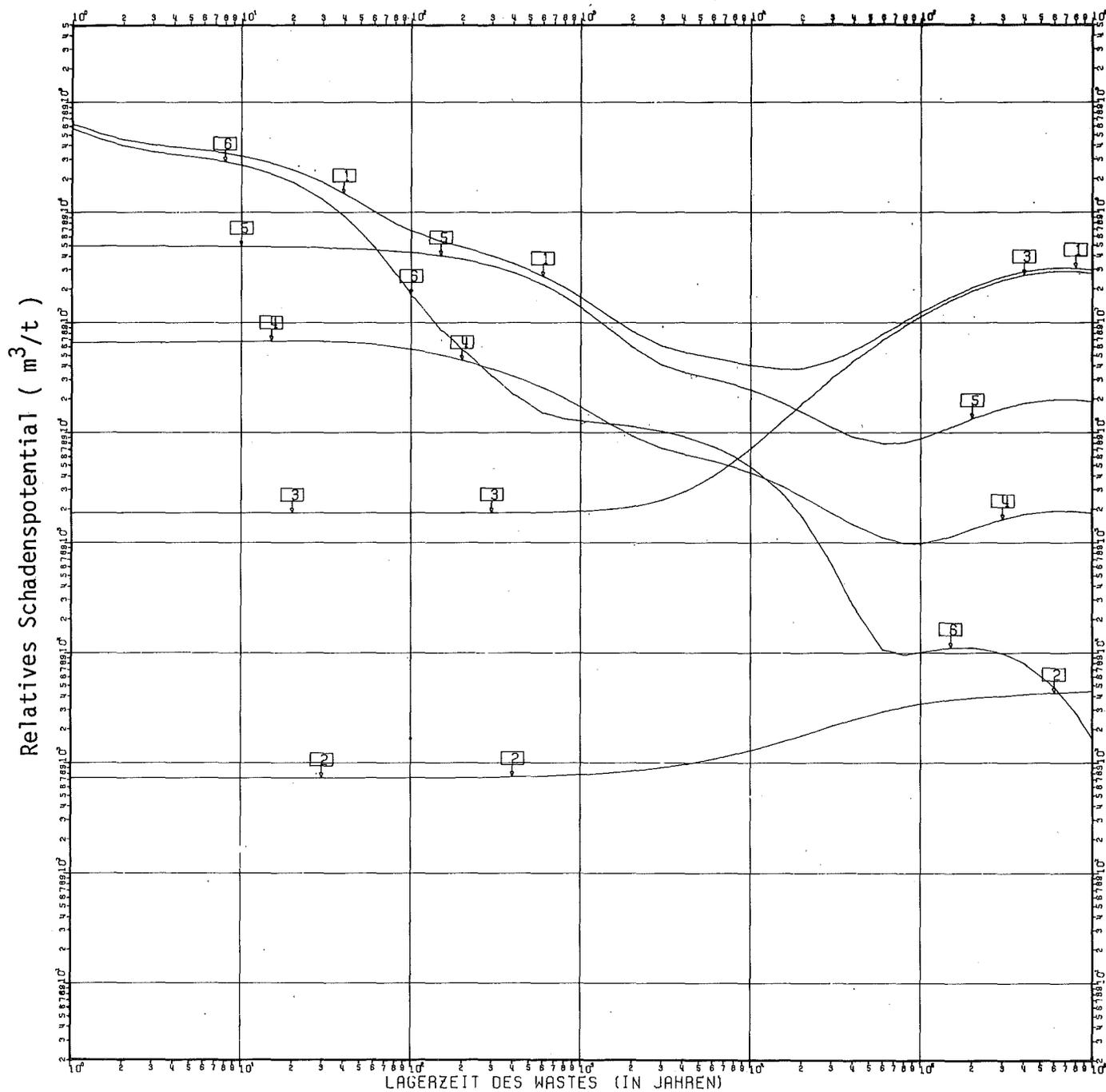
Betrachtet man die Beiträge der einzelnen Nuklide zum gesamten RSP, so zeigt sich, daß im Falle des LWR (Abb. 2.13) im Betrachtungszeitraum zwischen 60 und 200 Jahren das Am-241, zwischen 200 und 20.000 Jahren das Am-243, danach das Np-237 dominiert; im Falle des SBR (Abb. 2.14) dominiert im Betrachtungszeitraum bis 200 Jahre das Am-241, zwischen 200 und 30.000 Jahren das Am-243, danach aber erneut das Am-241.

Dieser Sachverhalt erklärt, daß das heute bereits in größeren Mengen im Brennstoffzyklus bei der Verarbeitung von gelagertem Plutonium anfallende Am-241 als Referenznuclide für die vorliegende Arbeit, gemäß der in Kap. 1 erläuterten Problemstellung, herangezogen werden konnte.



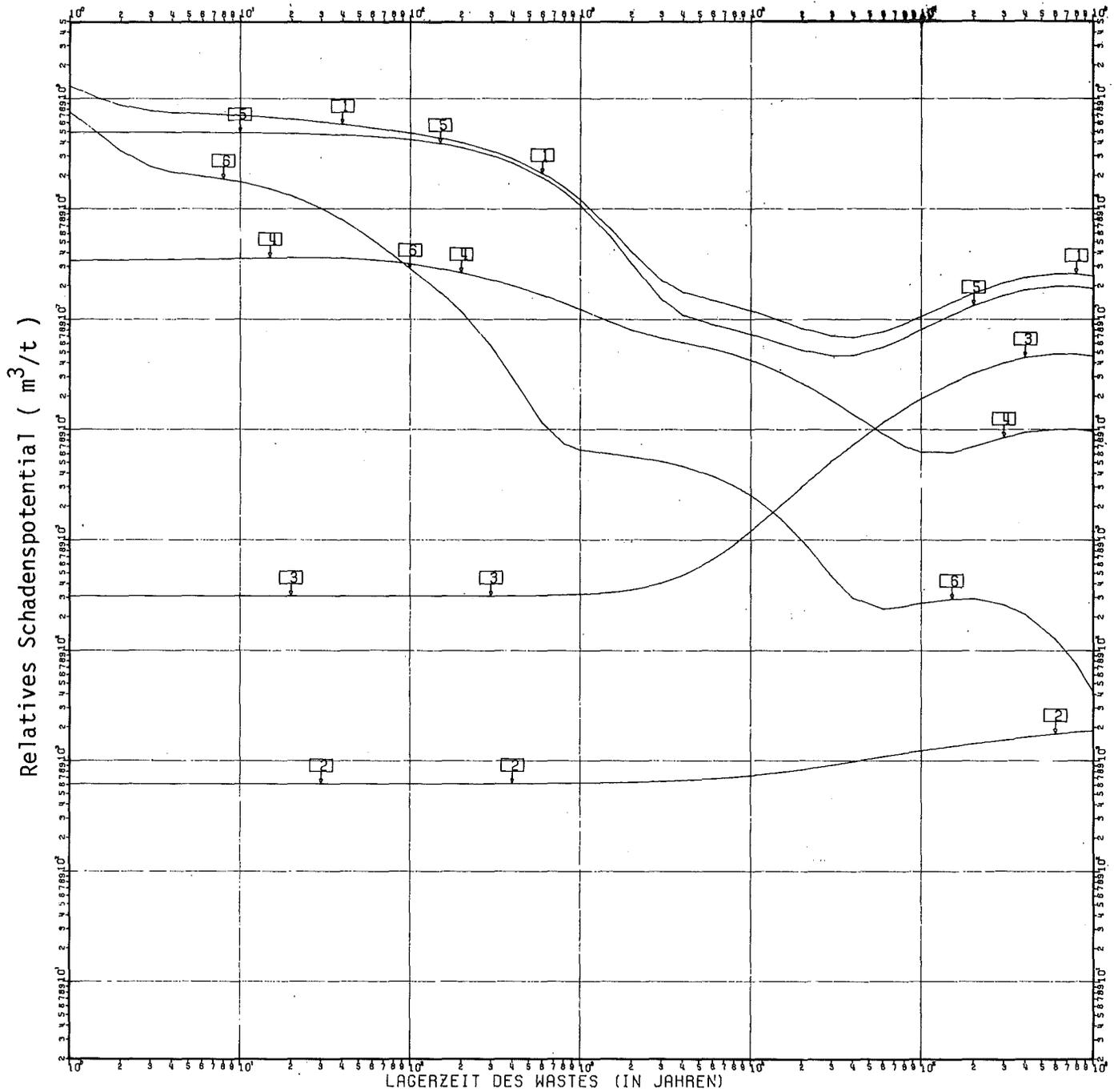
Legende: Kurve 1 ... Relatives Schadenspotential LWR, 0.5% U/Pu-Abtrennung
2 ... Relatives Schadenspotential LWR, 0.1% U/Pu-Abtrennung
3 ... Relatives Schadenspotential SBR, 0.5% U:Pu-Abtrennung
4 ... Relatives Schadenspotential SBR, 0.1% U/Pu-Abtrennung

Abb. 2.10: Relatives Schadenspotential der Actiniden im hochaktiven Abfall bei Wiederaufarbeitung von 1 t LWR- bzw. SBR-Brennstoff (Abbrand 34000 MWd/t, Kühlzeit bis Aufarbeitung 90 d, 0,5 % bzw. 0,1 % U- und Pu-Verlust bei der Wiederaufarbeitung)



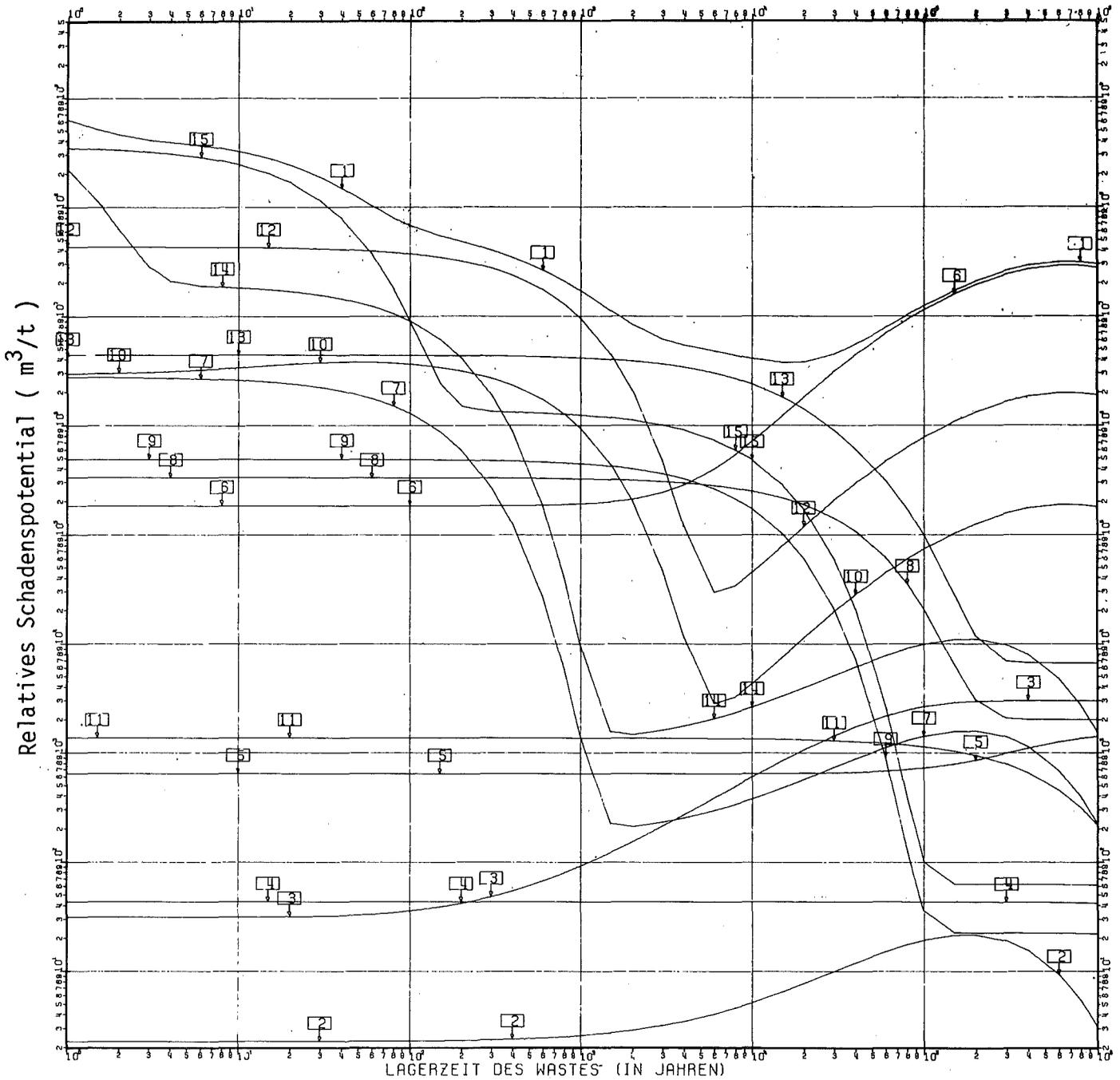
- Legende: Kurve 1 ... Relat. Schadensp., gesamt, LWR, 0.5% U/Pu-Abtr.
 2 ... Teilbeitrag Uran
 3 ... Teilbeitrag Neptunium
 4 ... Teilbeitrag Plutonium
 5 ... Teilbeitrag Americium
 6 ... Teilbeitrag Curium

Abb. 2.11: Relatives Schadenspotential der Actiniden im hochaktiven Abfall bei Wiederaufarbeitung von 1 t LWR-Brennstoff, Beitrag der wesentlichen Nuklidgruppen (Abbrand 34000 MWd/t, Kühlzeit bis Aufarbeitung 90 d, 0,5 % U- und Pu-Verlust bei der Wiederaufarbeitung)



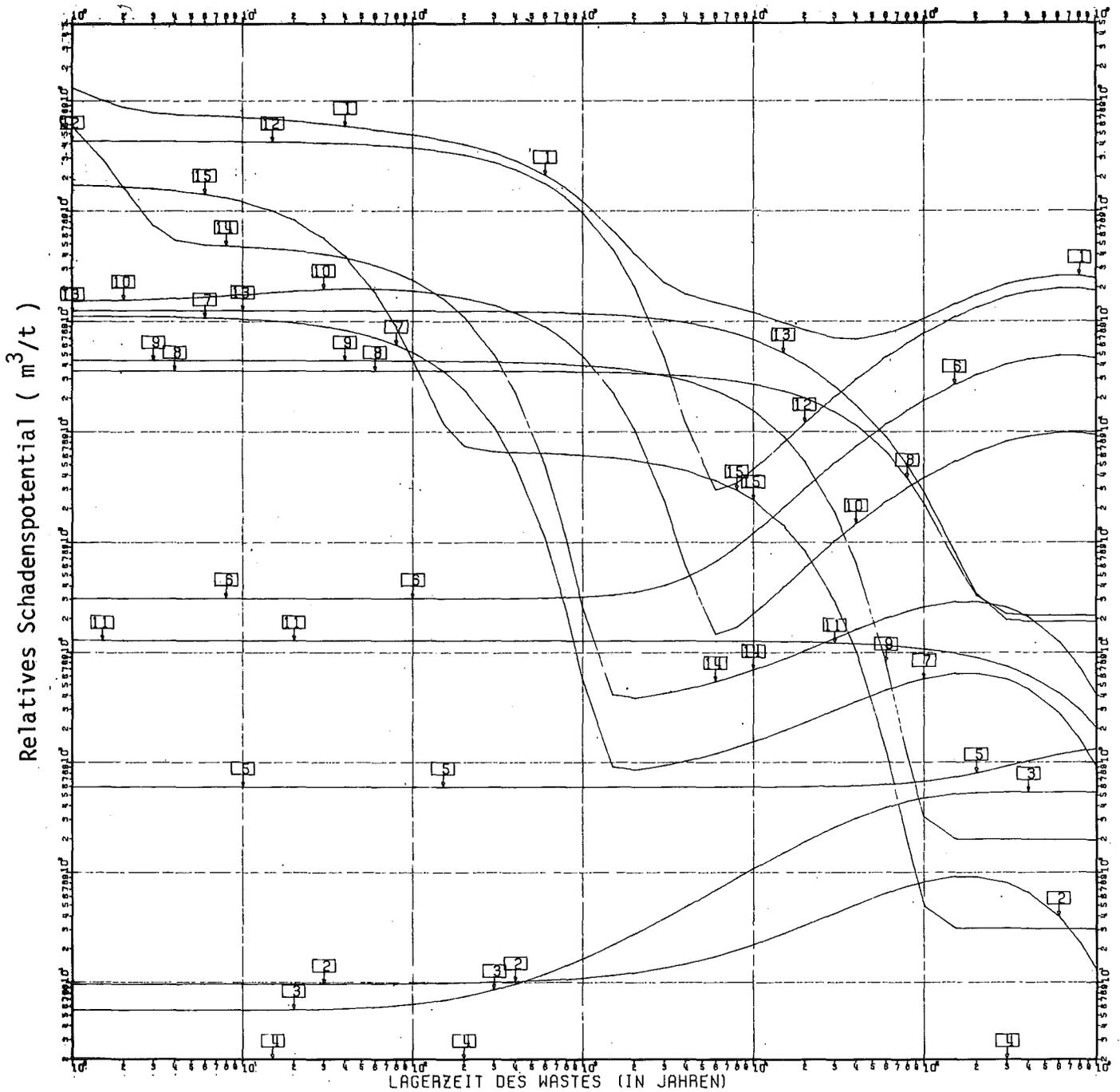
- Legende: Kurve 1 ... Relat. Schadensp., gesamt, SBR, 0.5% U/Pu-Abtr.
 2 ... Teilbeitrag Uran
 3 ... Teilbeitrag Neptunium
 4 ... Teilbeitrag Plutonium
 5 ... Teilbeitrag Americium
 6 ... Teilbeitrag Curium

Abb. 2.12: Relatives Schadenspotential der Actiniden im hochaktiven Abfall bei Wiederaufarbeitung von 1 t SBR-Brennstoff, Beitrag der wesentlichen Nuklidgruppen (Abbrand 34000 MWd/t, Kühlzeit bis Aufarbeitung 90 d, 0,5 % U- und Pu-Verlust bei der Wiederaufarbeitung)



- Legende: Kurve 1 ... Relat. Schadenspot., gesamt, LWR, 0.5% U/Pu-Abtrennung
 2 ... Teilbeitrag U -234 9 ... Teilbeitrag Pu-240
 3 ... Teilbeitrag U -235 10 ... Teilbeitrag Pu-241
 4 ... Teilbeitrag U -236 11 ... Teilbeitrag Pu-242
 5 ... Teilbeitrag U -238 12 ... Teilbeitrag Am-241
 6 ... Teilbeitrag Np-237 13 ... Teilbeitrag Am-243
 7 ... Teilbeitrag Pu-238 14 ... Teilbeitrag Cm-242
 8 ... Teilbeitrag Pu-239 15 ... Teilbeitrag Cm-244

Abb. 2.13: Relatives Schadenspotential der Actiniden im hochaktiven Abfall bei Wiederaufarbeitung von 1 t LWR-Brennstoff, Beitrag einzelner Nuklide (Abbrand 34000 MWd/t, Kühlzeit bis Aufarbeitung 90 d, 0,5 % U- und Pu-Verlust bei der Wiederaufarbeitung)



- Legende: Kurve 1 ... Relat. Schadensp., gesamt, SBR, 0.5% U/Pu-Abtrennung
 2 ... Teilbeitrag U -234 9 ... Teilbeitrag Pu-240
 3 ... Teilbeitrag U -235 10 ... Teilbeitrag Pu-241
 4 ... Teilbeitrag U -236 11 ... Teilbeitrag Pu-242
 5 ... Teilbeitrag U -238 12 ... Teilbeitrag Am-241
 6 ... Teilbeitrag Np-237 13 ... Teilbeitrag Am-243
 7 ... Teilbeitrag Pu-238 14 ... Teilbeitrag Cm-242
 8 ... Teilbeitrag Pu-239 15 ... Teilbeitrag Cm-244

Abb. 2.14: Relatives Schadenspotential der Actiniden im hochaktiven Abfall bei Wiederaufarbeitung von 1 t SBR-Brennstoff, Beitrag einzelner Nuklide (Abbrand 34000 MWd/t, Kühlzeit bis Aufarbeitung 90 d, 0,5 % U- und Pu-Verlust bei der Wiederaufarbeitung)

2.3 Das Relative Schadenspotential von Am-haltigen Abfällen aus der Pu-Verarbeitung und die Möglichkeiten zu seiner Reduktion

In diesem Kapitel wird nun am konkreten Beispiel des Am-241 aus Am-haltigen Abfalllösungen aus der Verarbeitung von gelagertem Plutonium rechnerisch demonstriert, wie sich das Relative Schadenspotential der heute anfallenden Am/Pu-Abfalllösungen (Referenzfall) durch verschiedene technische Eingriffe unterschiedlich stark reduzieren läßt. Neben dem Referenzfall wird zunächst der Einfluß einer besseren Am/Pu-Abtrennung untersucht; diesem Fall wird dann das RSP als Ergebnis einer hypotetischen Langzeitbestrahlung und schließlich von technisch realistischerweise durchführbaren, zeitlich begrenzten, zyklischen Bestrahlungen im Reaktor gegenübergestellt.

Bei der Herstellung Pu-haltiger Brennelemente entstehen die Am-haltigen Abfälle bei der Reinigung der zur Verarbeitung anstehenden Pu-Mengen vom aus Strahlenschutzgründen störenden Am-241 mittels Extraktions- oder Ionenaustauschschritten /22/. Da das Plutonium vom Americium gereinigt werden soll, ist es naheliegend, daß bei diesem Prozeß nicht darauf geachtet wird, das Am-241 in reiner Form zu separieren. Nach Durchführung des Trennschrittes liegt deshalb eine Abfalllösung von Am und Pu vor, in der sich die Konzentrationen von Am : Pu etwa wie 1 : 5 verhalten /31/.

2.3.1 Das RSP der Pu/Am-Abfalllösung ohne zusätzliche Behandlung (Fallstudie 1: Referenzfall)

Da die weitere Verringerung der Pu-Konzentration der Pu/Am-Abfalllösung, gemessen am Wert des gewinnbaren Plutoniums, sehr kostenintensiv ist, wird diese heute im allgemeinen keiner

weiteren Behandlung unterzogen, sondern als Abfall verworfen. Abb. 2.15 zeigt als Fallstudie 1 diesen Vorgang schematisch. Die Anwendung des oben definierten Begriffs des Relativen Schadenspotentials ergibt die in Abb. 2.18 dargestellte Kurve 1.

2.3.2 Das RSP der Pu/Am-Abfallösung bei weiterer Pu-Abtrennung (Fallstudie 2)

Eine Reduktion des langfristigen Schadenspotentials der α -Strahler kann nur durch Verminderung der Anfangsmenge der α -Strahler oder durch Überführung in kürzerlebige Nuklide erfolgen. Der zunächst einfachste Weg, die Menge der vorliegenden α -Strahler zu reduzieren, ist die Abtrennung des Rest-Pu vom Am-241, wobei das abgetrennte Pu im Brennstoffzyklus weiter verwendet werden kann. Dieser Vorgang ist in Abb. 2.16 als Fallstudie 2 schematisch dargestellt. Die aus der Weiterverwendung des Pu im Brennstoffzyklus resultierenden Abfälle sind im wesentlichen Spaltprodukte und unverbrauchtes Plutonium; diese Restmengen bleiben in der vorliegenden Betrachtung unberücksichtigt.

Das nach der Pu-Abtrennung vorliegende Am mit geringer Pu-Restverunreinigung wird wie in Fallstudie 1 als Abfall verworfen. Das resultierende Relative Schadenspotential ist in Abb. 2.18 als Kurve 2 dargestellt.

Der Vergleich der Kurven 1 und 2 in Abb. 2.18 zeigt, daß sich durch Abtrennung des Rest-Plutoniums aus den Brennelementfertigungs-Abfällen kurzfristig eine Verringerung des Relativen Schadenspotentials um etwa den Faktor 2 ergibt, diese Verringerung dann für Lagerzeiten um 10.000 Jahre sogar auf $1 \frac{1}{2}$ Zehnerpotenzen zunimmt; langfristig ergibt sich jedoch nur eine Verringerung um etwa den Faktor 1.5, was auf die höhere

Radiotoxizität der Zerfallsprodukte des sich aus dem unvermindert gebliebenem Am-241 bildenden Np-237 zurückzuführen ist. Eine weitergehende, insbesondere auch langfristig wirksame, Reduktion des Relativen Schadenspotentials kann daher nur durch Änderung der substanziiellen ursprünglichen Menge des Am-241 erfolgen.

2.3.3 Das RSP der Pu/Am-Abfalllösung nach Langzeitbestrahlung mit Neutronen (Fallstudie 3)

Eine Reduktion der Menge des vorliegenden Am-241 kann nur durch Bestrahlung des gemäß Fallstudie 2 von Plutonium weitgehend gereinigten Am-241 in einem Reaktor erfolgen. Dabei wird ein erheblicher Teil des Am in Spaltprodukte übergeführt; die nach erfolgter Langzeitbestrahlung noch vorliegenden α -Strahler werden als Abfall verworfen. Den Ablauf zeigt schematisch Abb. 2.17. Technisch ist eine kontinuierliche Langzeitbestrahlung über mehrere zehn Jahre aus Gründen der begrenzten mechanischen Stabilität der Hüllrohre von hierfür notwendigen Bestrahlungsstäben als Folge der verabreichten n-Dosis nicht möglich; die deshalb nur theoretische Betrachtung zeigt aber doch sehr deutlich, welche maximale Reduktion des Schadenspotential innerhalb der hier vorgesehenen Bestrahlungszeiten von bis zu 30 Jahren erzielbar sind. Der Zeitraum von 30 Jahren wurde in Anlehnung an die heute absehbaren Reaktorstandzeiten gewählt, stellt aber letztlich eine für diese Arbeit willkürlich gewählte Grenze dar. Ein Rézyklieren von α -Strahlern über diesen Zeitraum hinaus erscheint dem Autor nicht sinnvoll, jedoch prinzipiell möglich. Die Kurven 3-6 in Abb. 2.18 zeigen das der Fallstudie 3 entsprechende Relative Schadenspotential, aufgefächert für mehrere Bestrahlungszeiten.

Die Wirkung der diskutierten möglichen Maßnahmen zur Reduktion des Relativen Schadenspotentials der Pu/Am-Abfalllösung aus

der Pu-Verarbeitung, läßt sich aus Abb. 2.18 ersehen. Im Vergleich zu den vorher diskutierten Kurven 1 und 2 wird deutlich, daß durch Langzeitbestrahlungen das Relative Schadenspotential des Brennelementfertigungsabfalls erheblich gesenkt werden kann. Als Folge der mit der Bestrahlungszeit sich stark ändernden Nuklidzusammensetzung, ändert sich mit der Bestrahlungszeit nicht nur die absolute Höhe des Relativen Schadenspotentials sondern auch seine Zeitcharakteristik. So kann im Vergleich zu Kurve 1 in Abb. 2.18 für Langzeitbestrahlungen das Relative Schadenspotential langfristig um ca. 4 Zehnerpotenzen gesenkt werden, in dem Bereich von Lagerzeiten um 1000 bis 10.000 Jahren dagegen nicht (Kurve 6). Kürzere Bestrahlungszeiten führen dagegen zu einer Reduktion des langfristigen Schadenspotentials von nur ca. 3 Zehnerpotenzen, bewirken dagegen aber auch im mittelfristigen Bereich eine Reduktion um 1-2 Zehnerpotenzen.

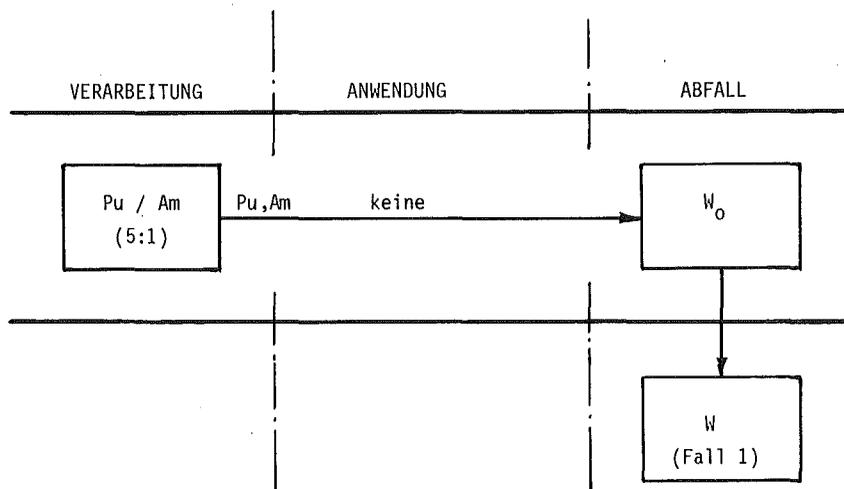


Abb. 2.15: Behandlungsschema für Pu/Am-Lösungen ohne Weiterverwendung

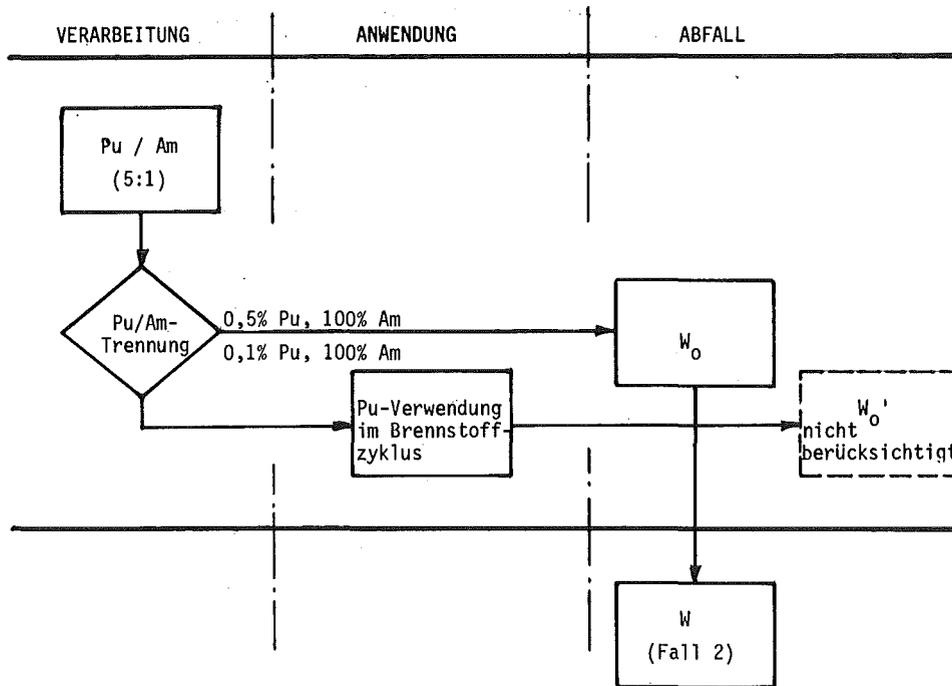


Abb. 2.16: Behandlungsschema für Pu/Am-Lösungen bei verbesserter Pu-Abtrennung (Fallstudie 2)

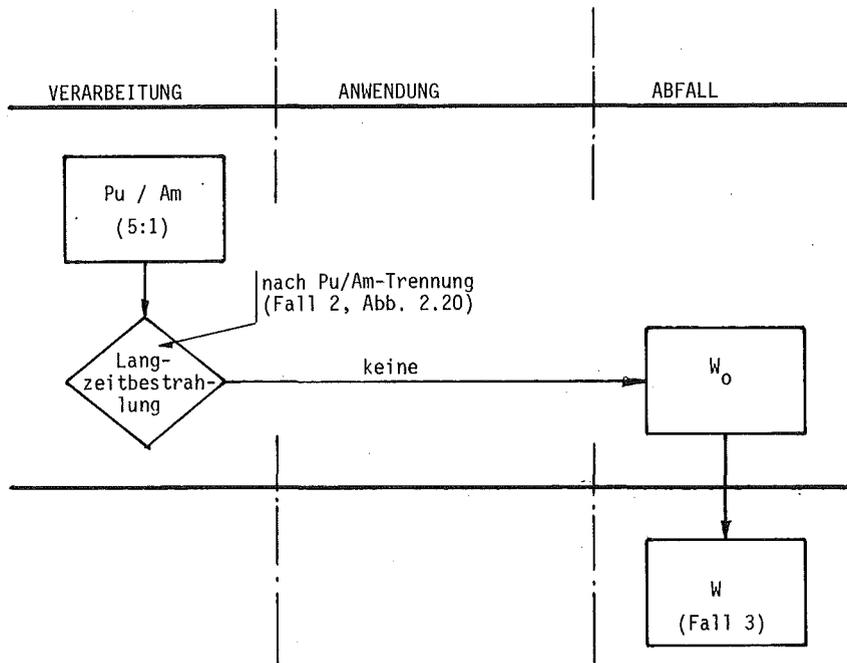
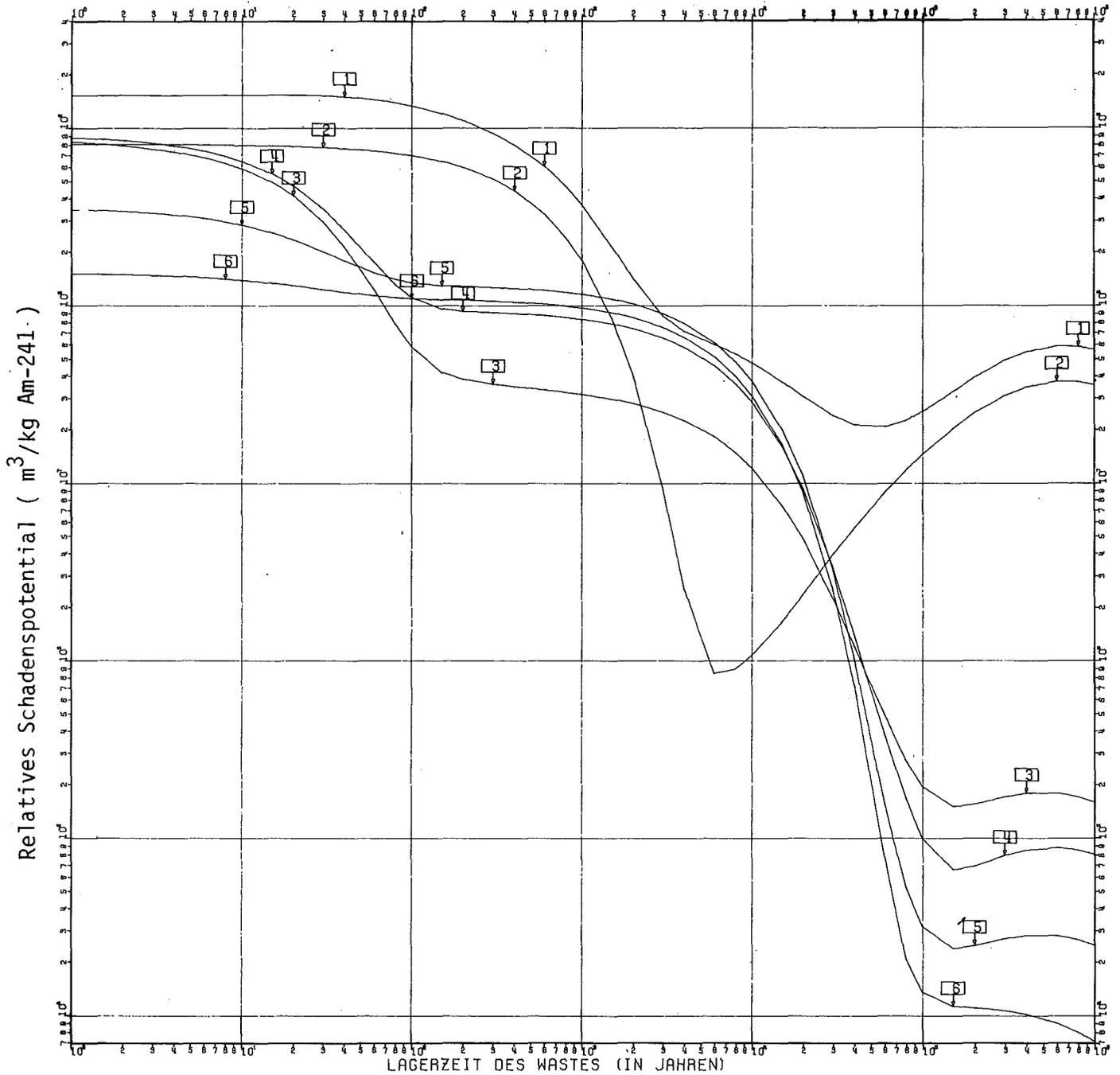


Abb. 2.17: Behandlungsschema für Pu/Am-Lösungen bei kontinuierlicher Langzeitbestrahlung (Fallstudie 3)



- 1 ... GEFAHRUNGSPOTENTIAL AM/PU-ABFALL, FALL 1: KEINE BEHANDLUNG
- 2 ... GEFAHRUNGSPOTENTIAL AM/PU-ABFALL, FALL 2: PU-ABTR., DF=99.5
- 3 ... GEFAHRUNGSPOTENTIAL AM/PU-ABFALL, FALL 3: LANGZEITBESTA. 5 JAHRE
- 4 ... GEFAHRUNGSPOTENTIAL AM/PU-ABFALL, FALL 3: LANGZEITBESTA. 10 JAHRE
- 5 ... GEFAHRUNGSPOTENTIAL AM/PU-ABFALL, FALL 3: LANGZEITBESTA. 20 JAHRE
- 6 ... GEFAHRUNGSPOTENTIAL AM/PU-ABFALL, FALL 3: LANGZEITBESTA. 30 JAHRE

Abb. 2.18: Relatives Schadenspotential des Abfalls aus der Fertigung Pu-haltiger Brennelemente für verschiedene Behandlungsalternativen (Fallstudien 1 - 3)

2.3.4 Das RSP der Pu/Am-Abfallösung nach realisierbaren Bestrahlungen mit Neutronen (Fallstudien 4 und 5)

Die oben beschriebene hypothetische Durchführung einer Langzeitbestrahlung mit Neutronen in einem thermischen Reaktor zeigt, daß eine erhebliche Reduktion des langfristigen Relativen Schadenspotentials auf ca. 0.1 % des Vergleichswertes aus dem Referenzfall (Fallstudie 1) erreichbar ist. Es soll daher gezeigt werden, welche Reduktionen unter den Bedingungen technisch durchführbarer Bestrahlungen erreicht werden können.

Bei geeigneter Wahl der Bestrahlungs- und Aufarbeitungsbedingungen läßt sich aus Am-241 als Zwischenprodukt Pu-238 gewinnen /32/, das bei ausreichender Reinheitsqualität im medizinisch-technischen Bereich als Energiequelle für implantierbare Kreislauf-Unterstützungsgeräte, z.B. Herzschrittmacher, eingesetzt werden kann /33/. Diese mögliche technische Verwendung des Zwischenproduktes Pu-238 ist jedoch im Rahmen der hier angestellten Überlegungen keine notwendige Bedingung, um den hier beschriebenen Effekt der Reduktion des Relativen Schadenspotentials zu erreichen. Abb. 2.19 zeigt das Bildungsschema von Pu-238 aus Am-241. Pu-238 entsteht beim Zerfall von Cm-242, das sich durch Einfang und anschließenden β -Zerfall aus Am-241 bildet. Die Abb. 2.20 und 2.21 zeigen die zwei alternativ möglichen Behandlungsschemata für Am-Bestrahlungen unter technischen Bedingungen.

Im Falle der Abb. 2.20 wird vor der chemischen Trennung das Bestrahlungstarget ca. 1.5 Jahre gelagert, um den weitgehenden Zerfall des während der Bestrahlung gebildeten Cm-242 abzuwarten; anschließend erfolgt die chemische Separation des Pu-238. Auf diese Weise läßt sich eine Pu-Fraktion mit ca. 80% Pu-238-Isotopenanteil gewinnen.

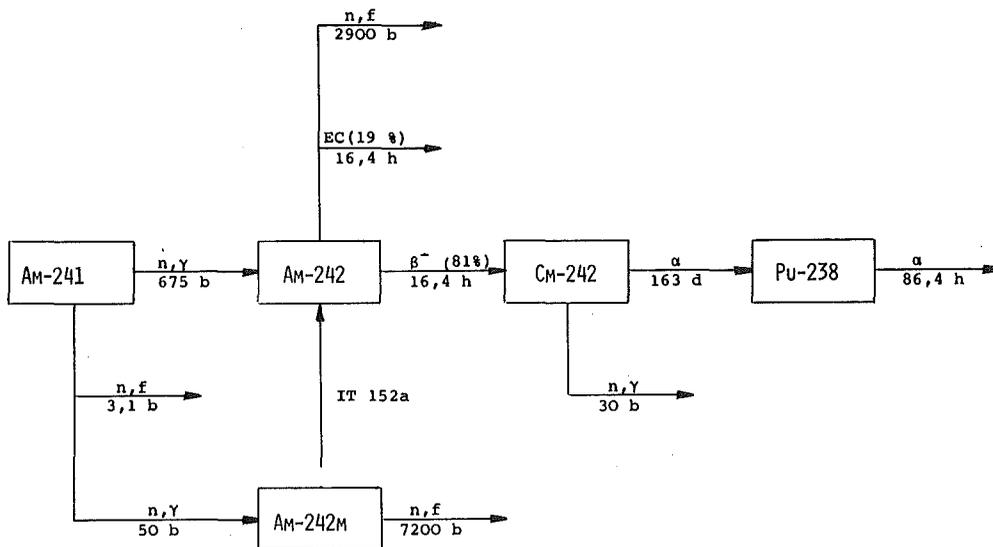


Abb. 2.19: Am-241 Bestrahlungskette zur Erzeugung von Pu-238, mit Nebenreaktionen

Im Falle der Abb. 2.21 wird unmittelbar nach Bestrahlung das während der Bestrahlung gebildete Cm-242 abgetrennt und anschließend dessen Zerfall in Pu-238 durch 1,5 jährige Lagerung abgewartet; anschließend ist eine erneute Trennung des Rest-Cm vom entstandenen Pu notwendig. Mit diesem Verfahren ist - mit kleinerer Ausbeute allerdings - die Herstellung von isotonenreinem Pu-238 möglich.

In den betrachteten Fallstudien 4 bzw. 5 wird das Pu-238 nach seiner Verwendung zur Energieversorgung in biomedizinischen Geräten als radioaktiver Abfall verworfen. Da das Produkt während dieser medizinischen Verwendung nur dem natürlichen radioaktiven Zerfall unterliegt und übriggebliebene Restmengen später als Abfall verworfen werden, kann es in der vorliegenden Betrachtung unmittelbar nach Separation aus dem Bestrahlungstarget, als Abfall deklariert, in die Ermittlung des Relativen Schadenspotentials einfließen.

Für die Fallstudie 4 zeigen die Abb. 2.22 bis 2.25 das resultierende Relative Schadenspotential jeweils im Vergleich zu den Fallstudien 1 und 2. Die Kurven 1-10 in Abb. 2.22 kennzeichnen das Relative Schadenspotential für die im Fließschema (Abb. 2.20) angegebenen Teil-Wastemengen W_i sowie das zum Ende der mehrfachen Bestrahlung resultierende gesamte RSP (Kurve 11); dieses ergibt sich durch Einbeziehung des in Abb. 2.23 dargestellten Relativen Schadenspotentials für die jeweils erzeugten Pu-238-Mengen (W_i' gemäß Abb. 2.20). Der Betrachtung wurde ein Dekontaminationsfaktor (DF) von 99,5%, bzw. als Variation ein DF von 99,9%, für alle chemisch durchzuführenden Trennschritte zugrundegelegt; dies bedeutet, daß bei jedem im Fließschema dargestellten Trennschritt nur 0,5% bzw. 0,1% des eingangs vorhandenen und nach Trennung zur Weiterverwendung anstehenden Materials in die jeweilige Teilwastemenge W_i bzw. W_i' gelangen.

Die Abb. 2.24 zeigt, daß bei einem DF von 99,5% die Fallstudie 4 (Kurve 11) gegenüber der Fallstudie 1 (Kurve 12) bei einer anfänglichen Erhöhung des Relativen Schadenspotentials um etwa den Faktor 1,5 zu einer langfristigen Reduktion um ca. den Faktor 80 führt. Gegenüber der Fallstudie 2 ergibt sich eine anfängliche Erhöhung um den Faktor 3 gegenüber einer langfristigen Reduktion um den Faktor 50. Die Nettobestrahlungszeit in dem betrachteten Fall betrug 5,4 Jahre; durch Vergleich mit Kurve 3 in Abb. 2.18 wird ersichtlich, daß die diskontinuierliche Bestrahlung gegenüber der kontinuierlichen ein um ca. den Faktor 3 schlechteres Ergebnis bringt, d.h. das Relative Schadenspotential wird weniger stark reduziert.

Die Abb. 2.24 und 2.25 zeigen bei gleichen Kurvenkennziffern den oben skizzierten Zusammenhang für einen Dekontaminationsfaktor von 99,9%. Bei etwa gleichem Ausgangswert für das Relative Schadenspotential ergibt sich für das langfristige Relative Schadenspotential eine zusätzliche Reduktion um knapp den Faktor 2 durch die Verbesserung des Dekontaminationsfaktors. Allerdings dürften die chemisch-technologischen Pro-

bleme - die Untersuchung dieser gehört nicht zum Inhalt dieser Arbeit - zur Erzielung derart extremer Dekontaminationsfaktoren ganz erheblich an Bedeutung zunehmen.

Für Fallstudie 5 sind die analogen Kurven in den Abb. 2.26 bis 2.29 dargestellt. Die Kurven 1-10 in Abb. 2.26 kennzeichnen das Relative Schadenspotential für die Summe der im Fließschema (Abb. 2.21) angegebenen Teilwastemengen $W_i + W_i'$. Kurve 11 stellt wiederum das Relative Schadenspotential für die Gesamtwastemenge W nach Abb. 2.21 dar. Im Vergleich zu Fallstudie 4 ergibt sich, daß für Fallstudie 5 das kurzfristige Relative Schadenspotential für den Zeitraum bis etwa 10 Jahre geringfügig vergrößert, das langfristige Relative Schadenspotential dagegen noch zusätzlich um etwa den Faktor 1,3 verkleinert wird.

Die durchgeführten Rechnungen wurden auf eine Zahl von jeweils neun Zyklen begrenzt. Wie aus den Abb. 2.22 bis 2.29 ersichtlich, nimmt der anfängliche Zuwachs im Verlauf des Relativen Schadenspotentials von Zyklus zu Zyklus stetig ab. Eine Erhöhung der Zyklenanzahl über 9 Zyklen hinaus würde keine wesentliche Änderung im Ergebnis der Betrachtung mehr bringen.

Zusammenfassend kann festgestellt werden, daß sich durch den nur theoretisch durchführbaren Fall einer Langzeitbestrahlung von ca. 30 Jahren eine Reduktion des langfristigen Relativen Schadenspotentials auf ca. 0,1% des ohne zusätzliche Behandlung vorhandenen Schadenspotentials erzielen läßt. Für technisch verifizierbare Bestrahlungen läßt sich aber immerhin noch eine Reduktion des Schadenspotentials auf ca. 1% erreichen.

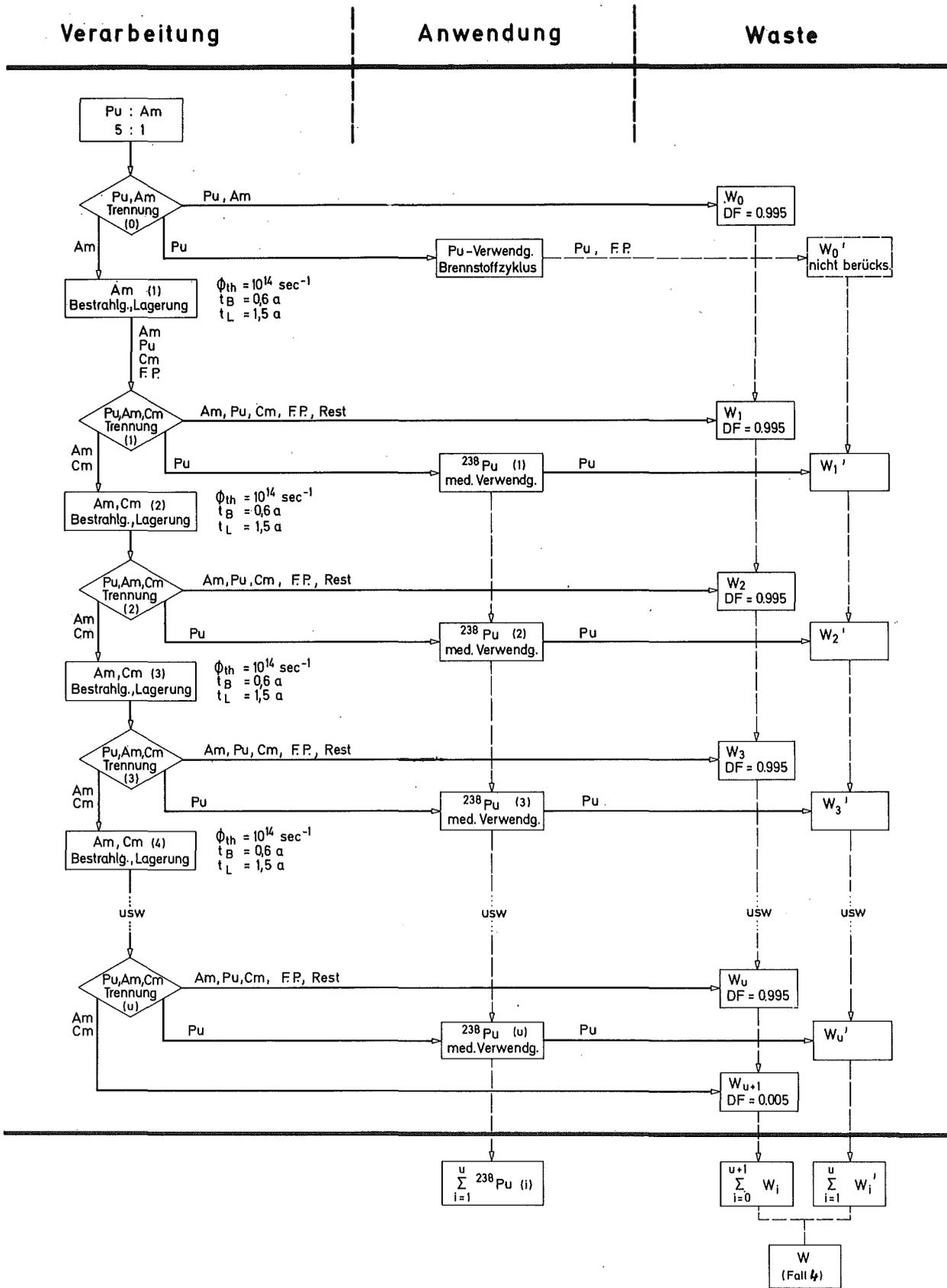


Abb. 2.20: Behandlungsschema für Pu/Am-Lösungen aus der Fertigung Pu-haltiger Brennelemente, Verwendung von Pu_{fiss} im Brennstoffzyklus und Herstellung von Pu-238 aus Am-241 durch Bestrahlung (Fallstudie 4)

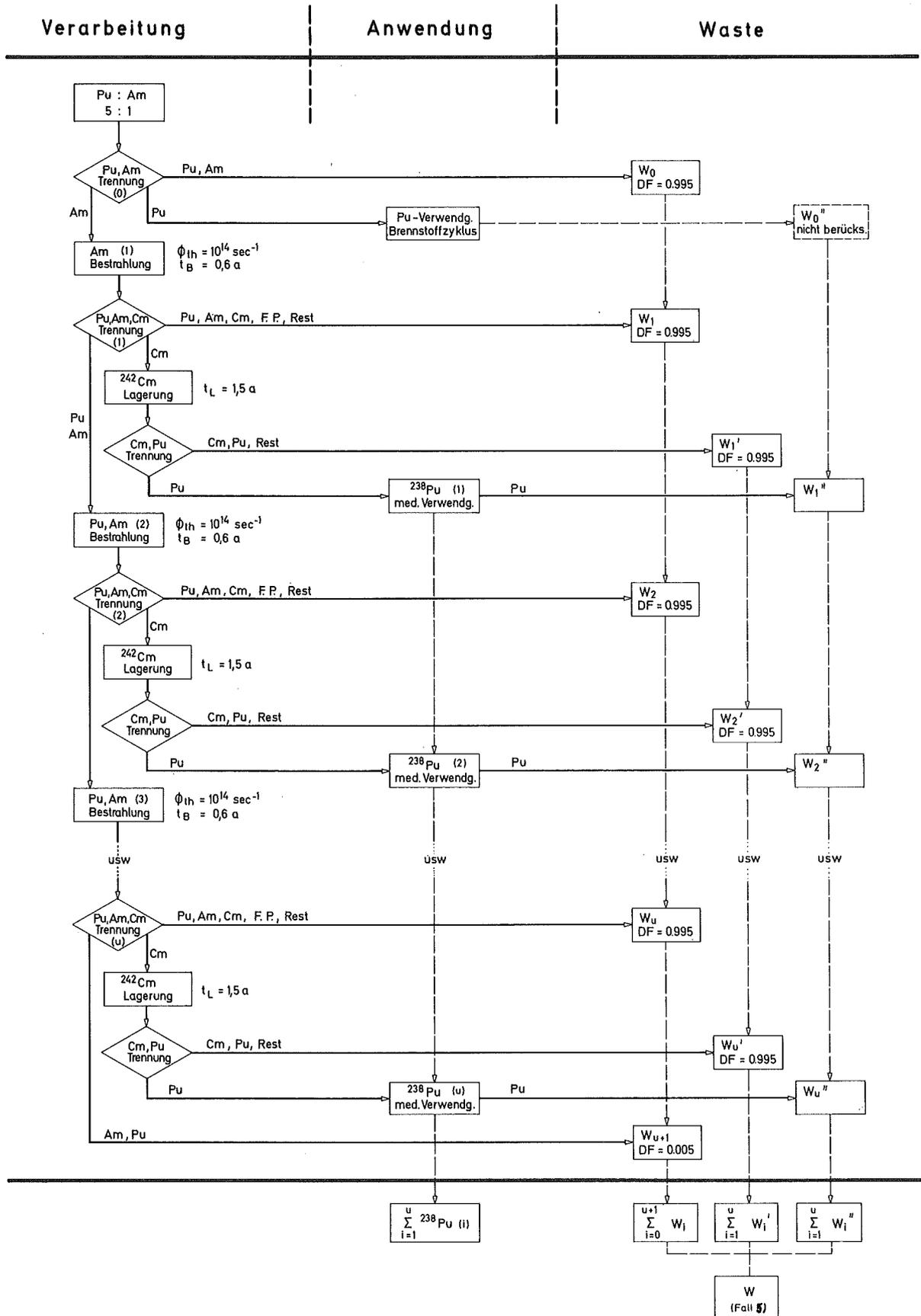
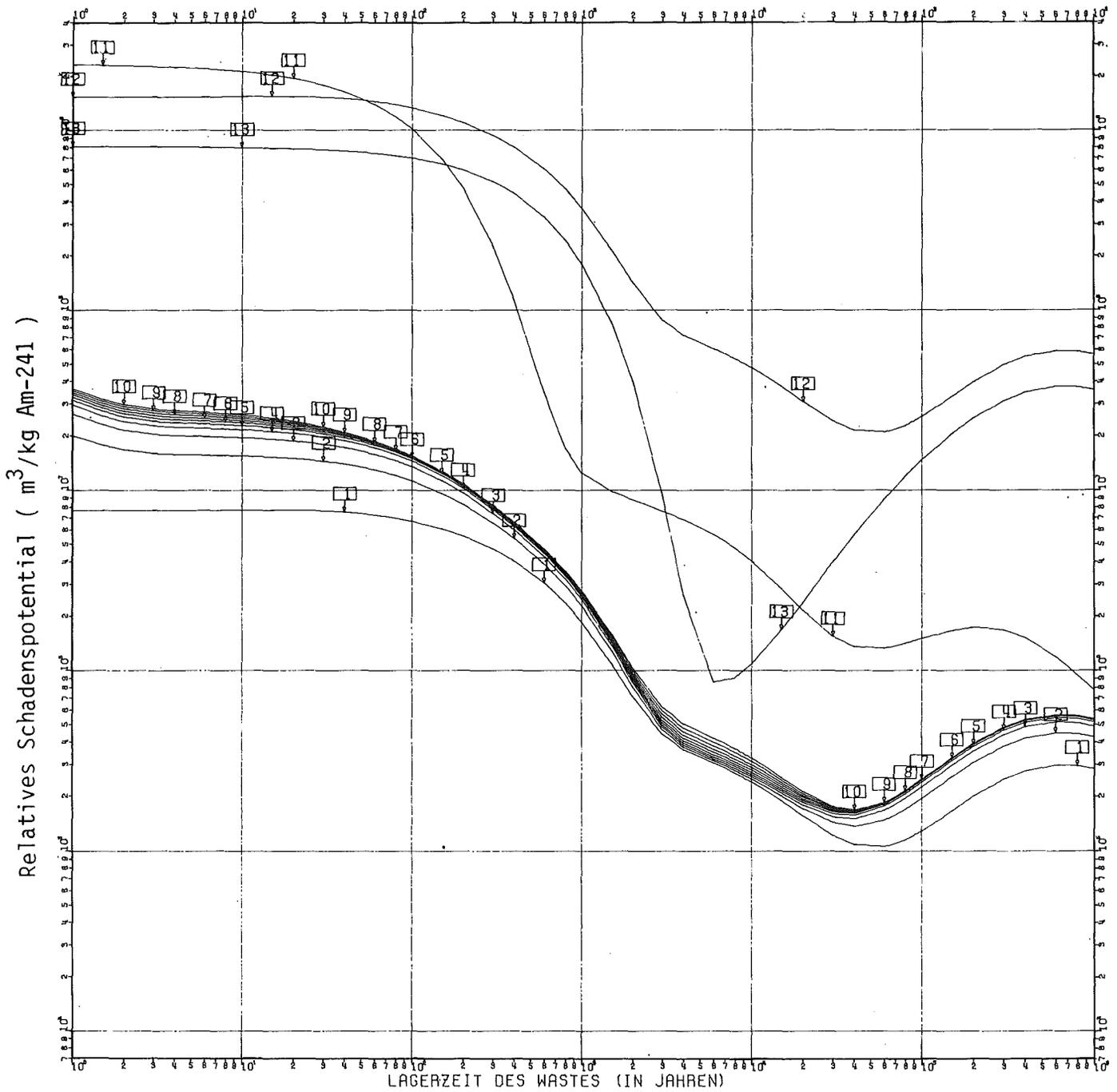
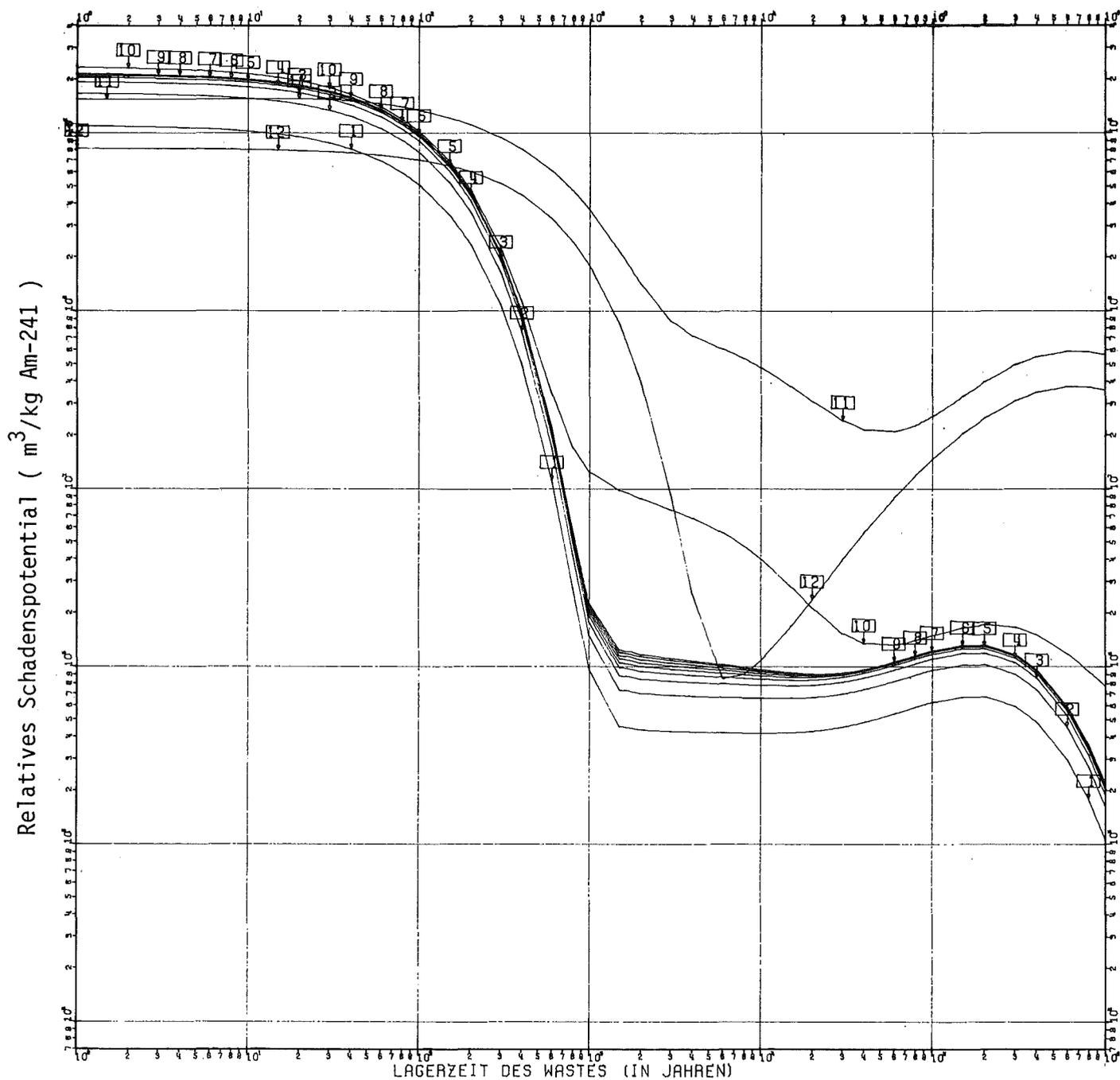


Abb. 2.21: Behandlungsschema für Pu/Am-Lösungen aus der Fertigung Pu-haltiger Brennelemente, Verwendung von Pu_{fiss} im Brennstoffzyklus und Herstellung von isotonenreinem Pu-238 aus Am-241 durch Bestrahlung (Fallstudie 5)



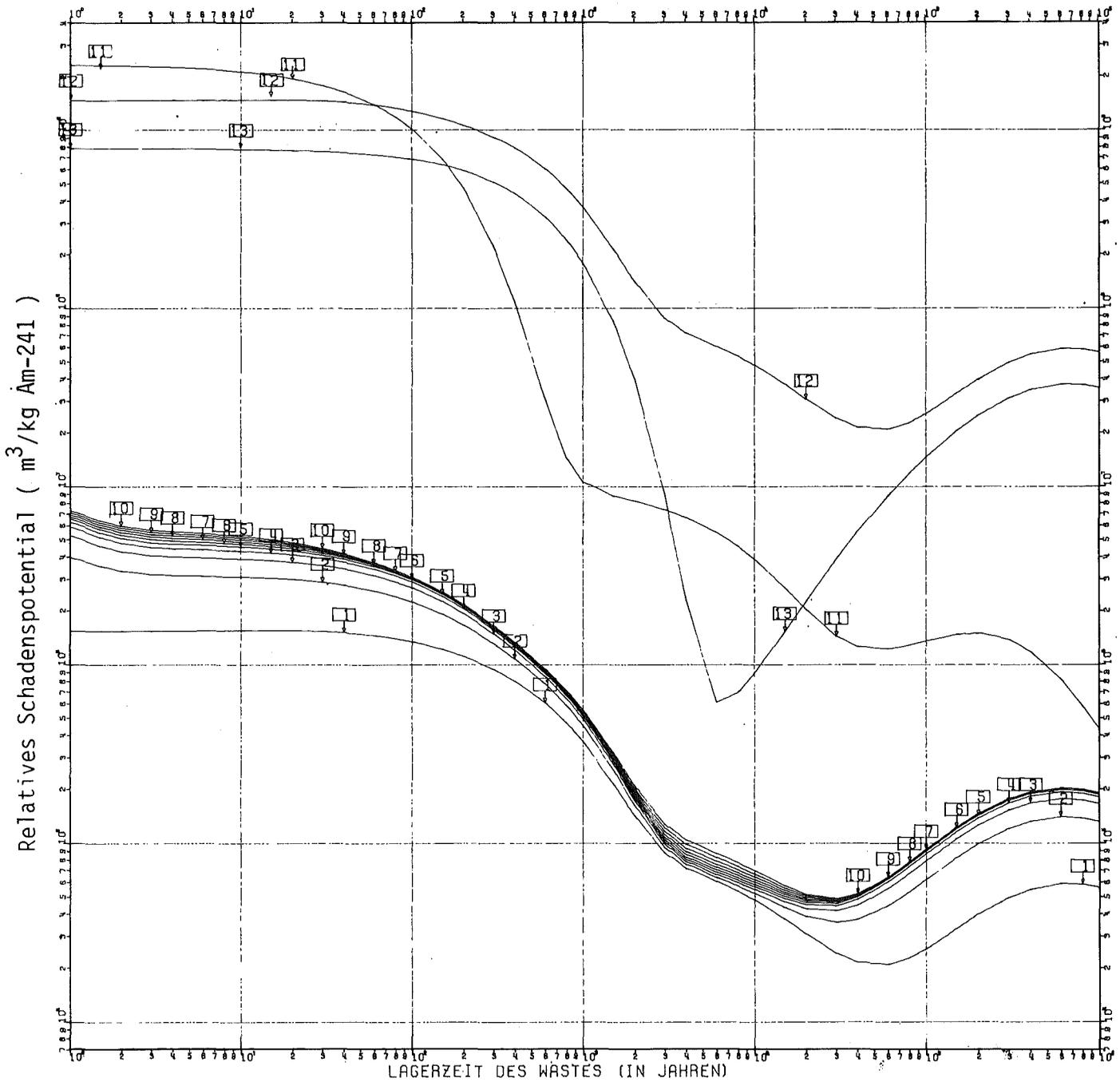
- 1 ... AM-241 BESTR., FALL 4: DF=99.5, WASTE 1, 0. ZYKLUS
- 2 ... AM-241 BESTR., FALL 4: DF=99.5, WASTE 1, 1. ZYKLUS
- 3 ... AM-241 BESTR., FALL 4: DF=99.5, WASTE 1, 2. ZYKLUS
- 4 ... AM-241 BESTR., FALL 4: DF=99.5, WASTE 1, 3. ZYKLUS
- 5 ... AM-241 BESTR., FALL 4: DF=99.5, WASTE 1, 4. ZYKLUS
- 6 ... AM-241 BESTR., FALL 4: DF=99.5, WASTE 1, 5. ZYKLUS
- 7 ... AM-241 BESTR., FALL 4: DF=99.5, WASTE 1, 6. ZYKLUS
- 8 ... AM-241 BESTR., FALL 4: DF=99.5, WASTE 1, 7. ZYKLUS
- 9 ... AM-241 BESTR., FALL 4: DF=99.5, WASTE 1, 8. ZYKLUS
- 10 ... AM-241 BESTR., FALL 4: DF=99.5, WASTE 1, 9. ZYKLUS
- 11 ... AM-241 BESTR., FALL 4: DF=99.5, WASTE GESAMT_NACH 9 ZYKLEN
- 12 ... GEFÄHRDUNGSPOTENTIAL AM/PU-ABFALL, FALL 1: KEINE BEHANDLUNG
- 13 ... GEFÄHRDUNGSPOTENTIAL AM/PU-ABFALL, FALL 2: PU-ABTR., DF=99.5

Abb. 2.22: Relatives Schadenspotential des Abfalls aus der Fertigung Pu-haltiger Brennelemente, Behandlung nach Fallstudie 4, DF = 99.5%, Einzelkurven 1-10: W_i für $i=0, \dots, 9$



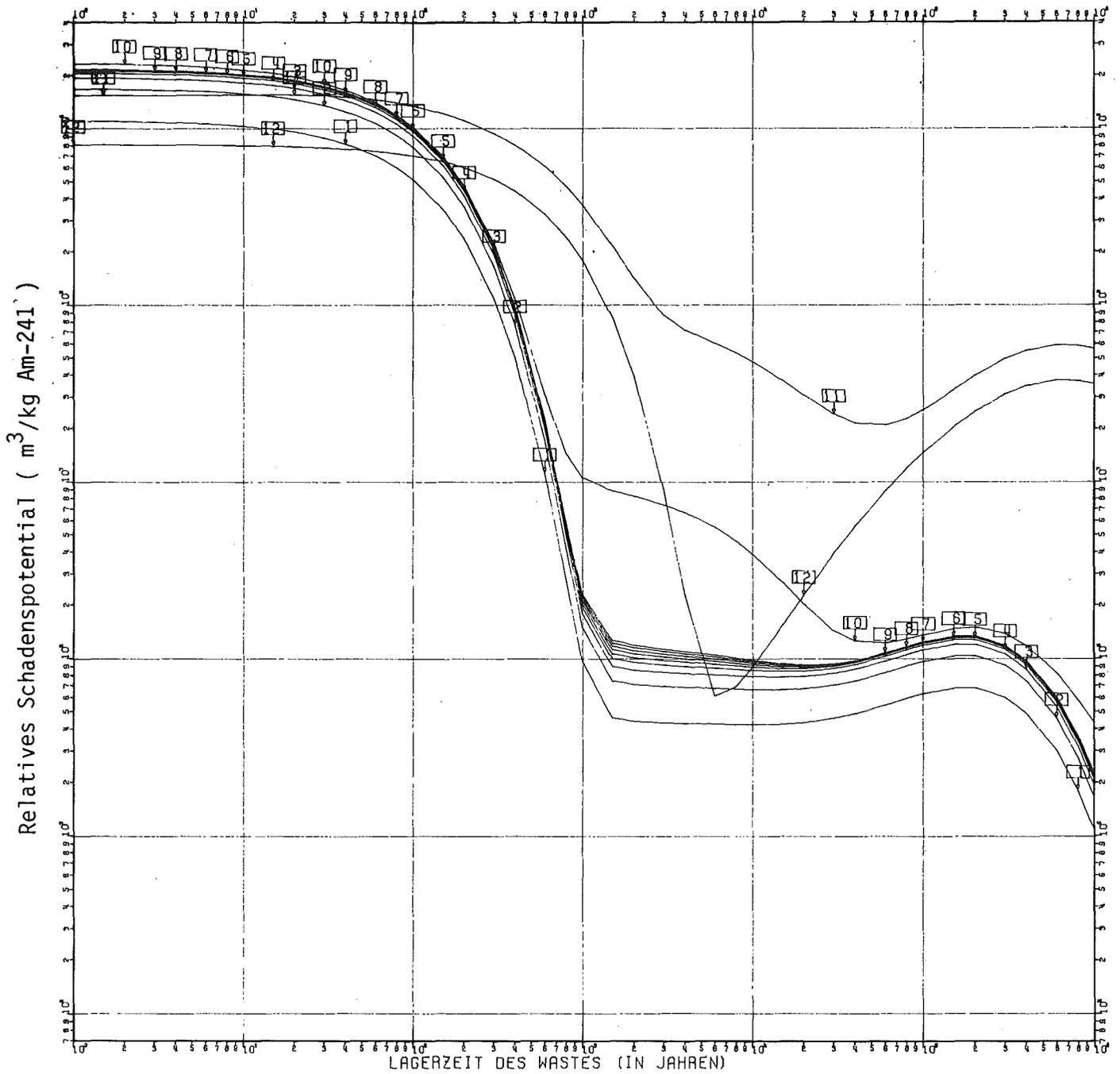
- 1 ... AM-241 BESTA., FALL 4; DF=99.5, WASTE 2, 1. ZYKLUS
- 2 ... AM-241 BESTA., FALL 4; DF=99.5, WASTE 2, 2. ZYKLUS
- 3 ... AM-241 BESTA., FALL 4; DF=99.5, WASTE 2, 3. ZYKLUS
- 4 ... AM-241 BESTA., FALL 4; DF=99.5, WASTE 2, 4. ZYKLUS
- 5 ... AM-241 BESTA., FALL 4; DF=99.5, WASTE 2, 5. ZYKLUS
- 6 ... AM-241 BESTA., FALL 4; DF=99.5, WASTE 2, 6. ZYKLUS
- 7 ... AM-241 BESTA., FALL 4; DF=99.5, WASTE 2, 7. ZYKLUS
- 8 ... AM-241 BESTA., FALL 4; DF=99.5, WASTE 2, 8. ZYKLUS
- 9 ... AM-241 BESTA., FALL 4; DF=99.5, WASTE 2, 9. ZYKLUS
- 10 ... AM-241 BESTA., FALL 4; DF=99.5, WASTE GESAMT NACH 9 ZYKLEN
- 11 ... GEFÄHRDUNGSPOTENTIAL AM/PU-ABFALL, FALL 1: KEINE BEHANDLUNG
- 12 ... GEFÄHRDUNGSPOTENTIAL AM/PU-ABFALL, FALL 2: PU-ABTA., DF=99.5

Abb. 2.23: Relatives Schadenspotential des Abfalls aus der Fertigung Pu-haltiger Brennelemente, Behandlung nach Fallstudie 4, DF = 99.5%, Einzelkurven 1-10: W_i für $i=1, \dots, 10$



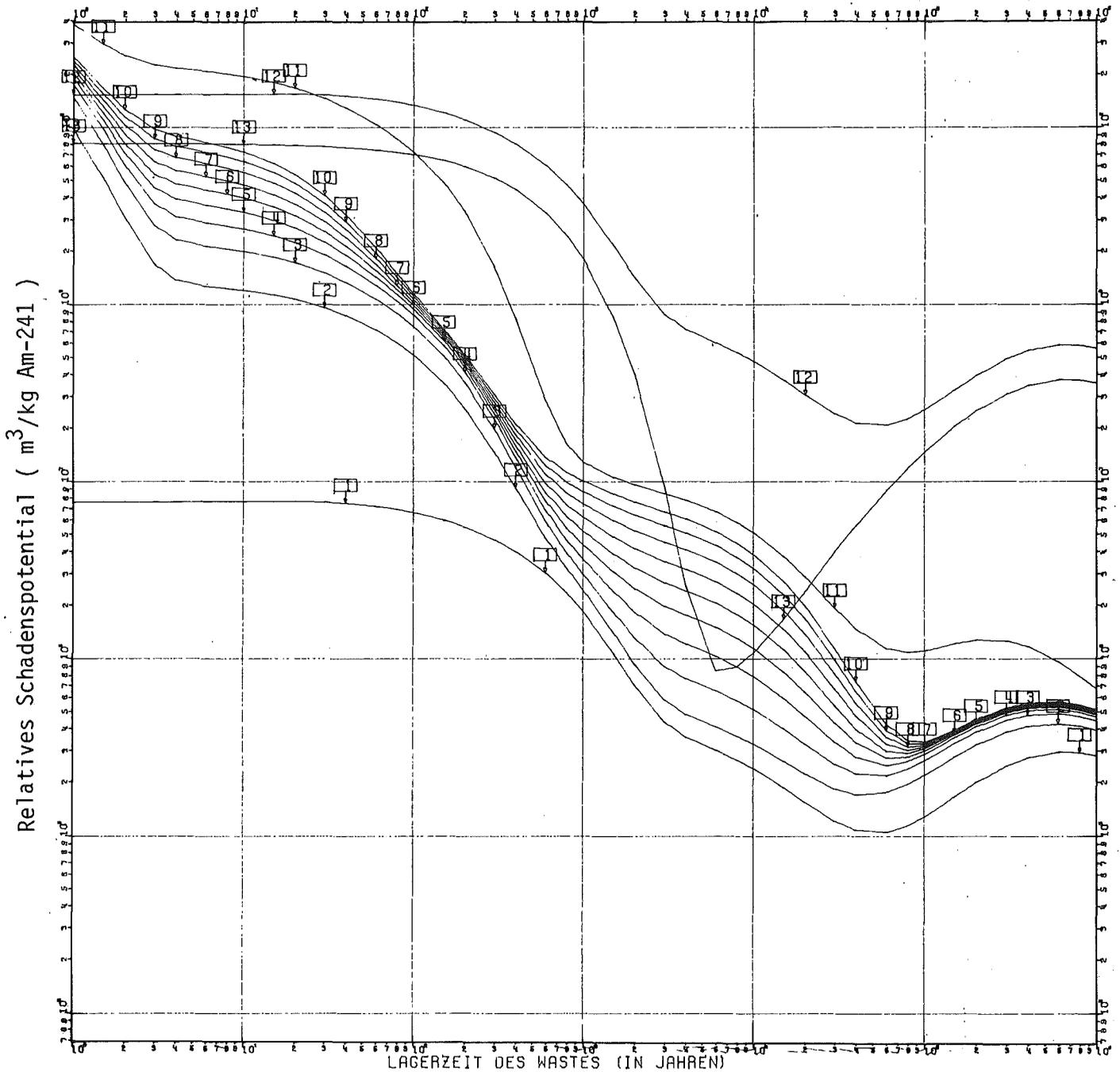
- 1 ... AM-241 BESTR., FALL 4; DF=99.9, WASTE 1, 0. ZYKLUS
- 2 ... AM-241 BESTR., FALL 4; DF=99.9, WASTE 1, 1. ZYKLUS
- 3 ... AM-241 BESTR., FALL 4; DF=99.9, WASTE 1, 2. ZYKLUS
- 4 ... AM-241 BESTR., FALL 4; DF=99.9, WASTE 1, 3. ZYKLUS
- 5 ... AM-241 BESTR., FALL 4; DF=99.9, WASTE 1, 4. ZYKLUS
- 6 ... AM-241 BESTR., FALL 4; DF=99.9, WASTE 1, 5. ZYKLUS
- 7 ... AM-241 BESTR., FALL 4; DF=99.9, WASTE 1, 6. ZYKLUS
- 8 ... AM-241 BESTR., FALL 4; DF=99.9, WASTE 1, 7. ZYKLUS
- 9 ... AM-241 BESTR., FALL 4; DF=99.9, WASTE 1, 8. ZYKLUS
- 10 ... AM-241 BESTR., FALL 4; DF=99.9, WASTE 1, 9. ZYKLUS
- 11 ... AM-241 BESTR., FALL 4; DF=99.9, WASTE GESAMT NACH 9 ZYKLEN
- 12 ... GEFÄHRDUNGSPOTENTIAL AM/PU-ABFALL, FALL 1; KEINE BEHANDLUNG
- 13 ... GEFÄHRDUNGSPOTENTIAL AM/PU-ABFALL, FALL 2; PU-ABTR., DF=99.9

Abb. 2.24: Relatives Schadenspotential des Abfalls aus der Fertigung Pu-haltiger Brennelemente, Behandlung nach Fallstudie 4, DF = 99.9%, Einzelkurven 1-10: W_i für $i=0, \dots, 9$



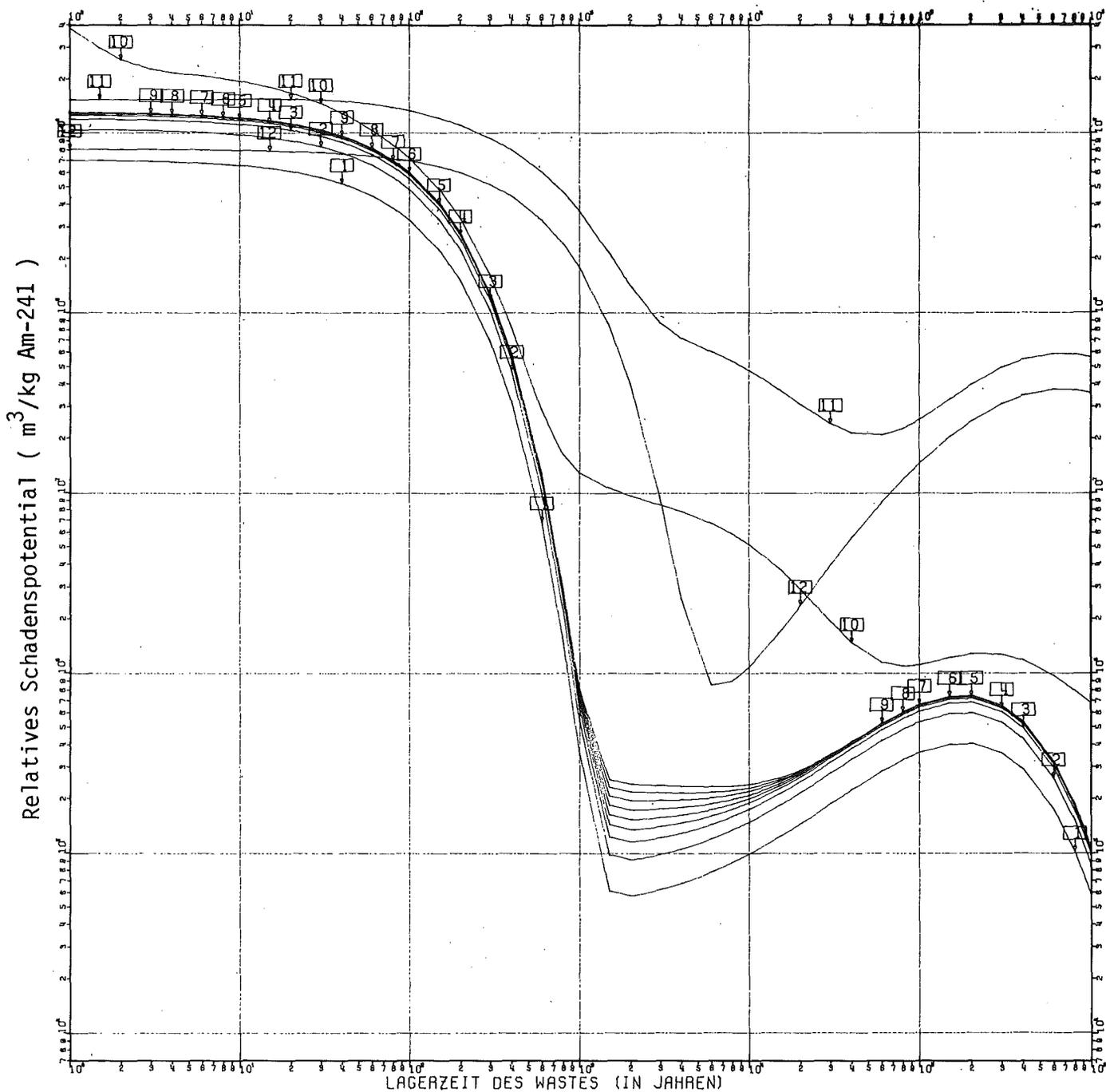
- 1 ... AM-241 BESTR., FALL 4; DF=99.9, WASTE 2, 1. ZYKLUS
- 2 ... AM-241 BESTR., FALL 4; DF=99.9, WASTE 2, 2. ZYKLUS
- 3 ... AM-241 BESTR., FALL 4; DF=99.9, WASTE 2, 3. ZYKLUS
- 4 ... AM-241 BESTR., FALL 4; DF=99.9, WASTE 2, 4. ZYKLUS
- 5 ... AM-241 BESTR., FALL 4; DF=99.9, WASTE 2, 5. ZYKLUS
- 6 ... AM-241 BESTR., FALL 4; DF=99.9, WASTE 2, 6. ZYKLUS
- 7 ... AM-241 BESTR., FALL 4; DF=99.9, WASTE 2, 7. ZYKLUS
- 8 ... AM-241 BESTR., FALL 4; DF=99.9, WASTE 2, 8. ZYKLUS
- 9 ... AM-241 BESTR., FALL 4; DF=99.9, WASTE 2, 9. ZYKLUS
- 10 ... AM-241 BESTR., FALL 4; DF=99.9, WASTE GESAMT NACH 9 ZYKLEN
- 11 ... GEFÄHRDUNGSPÖTENTIAL AM/PU-ABFALL, FALL 1: KEINE BEHANDLUNG
- 12 ... GEFÄHRDUNGSPÖTENTIAL AM/PU-ABFALL, FALL 2: PU-ABTR., DF=99.9

Abb. 2.25: Relatives Schadenspotential des Abfalls aus der Fertigung Pu-haltiger Brennelemente, Behandlung nach Fallstudie 4, DF = 99.9%, Einzelkurven 1-10: W_i für $i=1, \dots, 10$



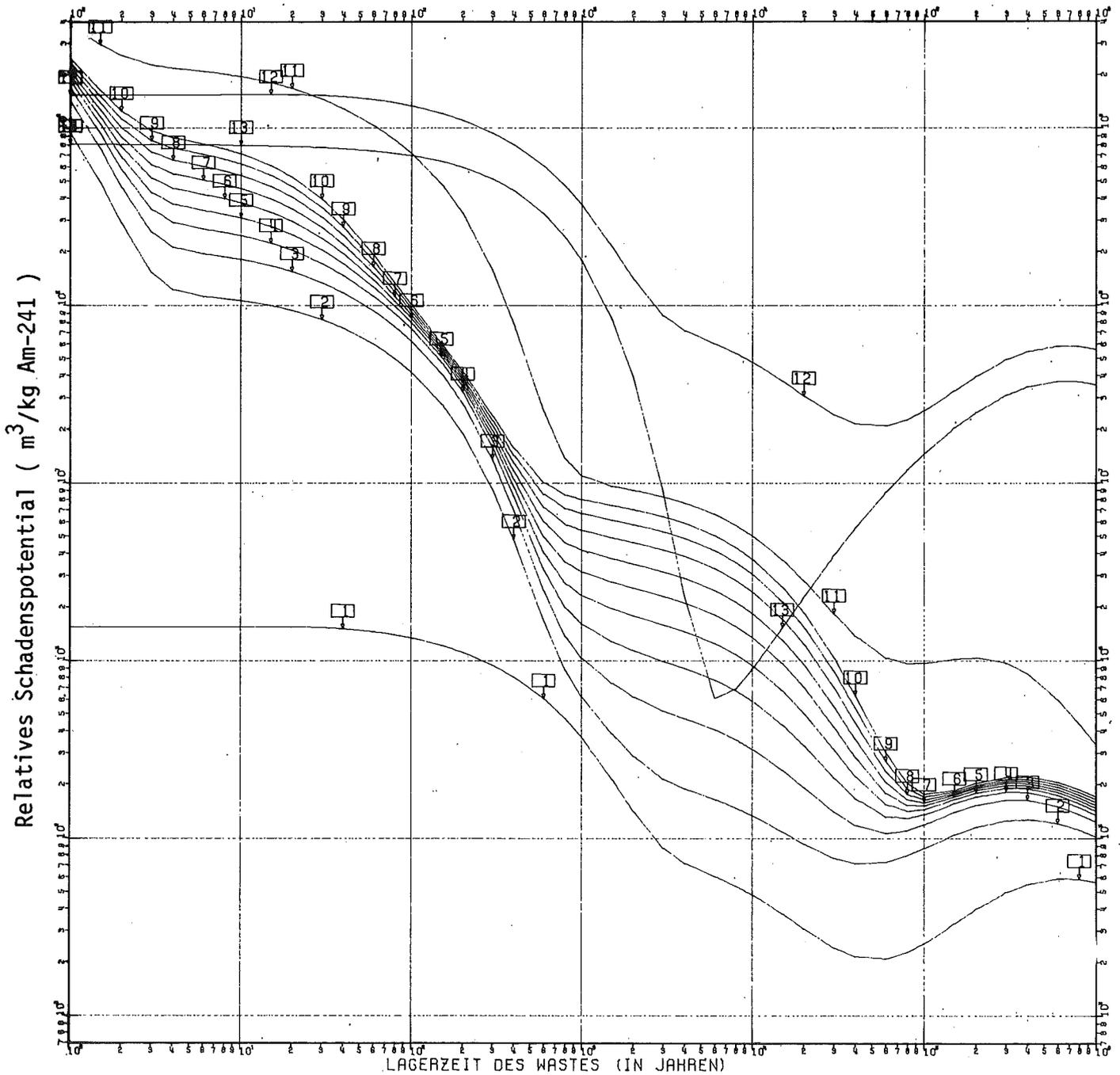
- 1 ... AM-241 BESTA., FALL 5; DF=99.5, WASTE 1, 0. ZYKLUS
- 2 ... AM-241 BESTA., FALL 5; DF=99.5, WASTE 1, 1. ZYKLUS
- 3 ... AM-241 BESTA., FALL 5; DF=99.5, WASTE 1, 2. ZYKLUS
- 4 ... AM-241 BESTA., FALL 5; DF=99.5, WASTE 1, 3. ZYKLUS
- 5 ... AM-241 BESTA., FALL 5; DF=99.5, WASTE 1, 4. ZYKLUS
- 6 ... AM-241 BESTA., FALL 5; DF=99.5, WASTE 1, 5. ZYKLUS
- 7 ... AM-241 BESTA., FALL 5; DF=99.5, WASTE 1, 6. ZYKLUS
- 8 ... AM-241 BESTA., FALL 5; DF=99.5, WASTE 1, 7. ZYKLUS
- 9 ... AM-241 BESTA., FALL 5; DF=99.5, WASTE 1, 8. ZYKLUS
- 10 ... AM-241 BESTA., FALL 5; DF=99.5, WASTE 1, 9. ZYKLUS
- 11 ... AM-241 BESTA., FALL 5; DF=99.5, WASTE GESAMT NACH 9 ZYKLEN
- 12 ... GEFÄHHRUNGSPOTENTIAL AM/PU-ABFALL, FALL 1; KEINE BEHANDLUNG
- 13 ... GEFÄHHRUNGSPOTENTIAL AM/PU-ABFALL, FALL 2; PU-ABTR., DF=99.5

Abb. 2.26: Relatives Schadenspotential des Abfalls aus der Fertigung Pu-haltiger Brennelemente, Behandlung nach Fallstudie 5, DF = 99.5%, Einzelkurven 1-10: $W_i + W_i'$ für $i=0, \dots, 9$



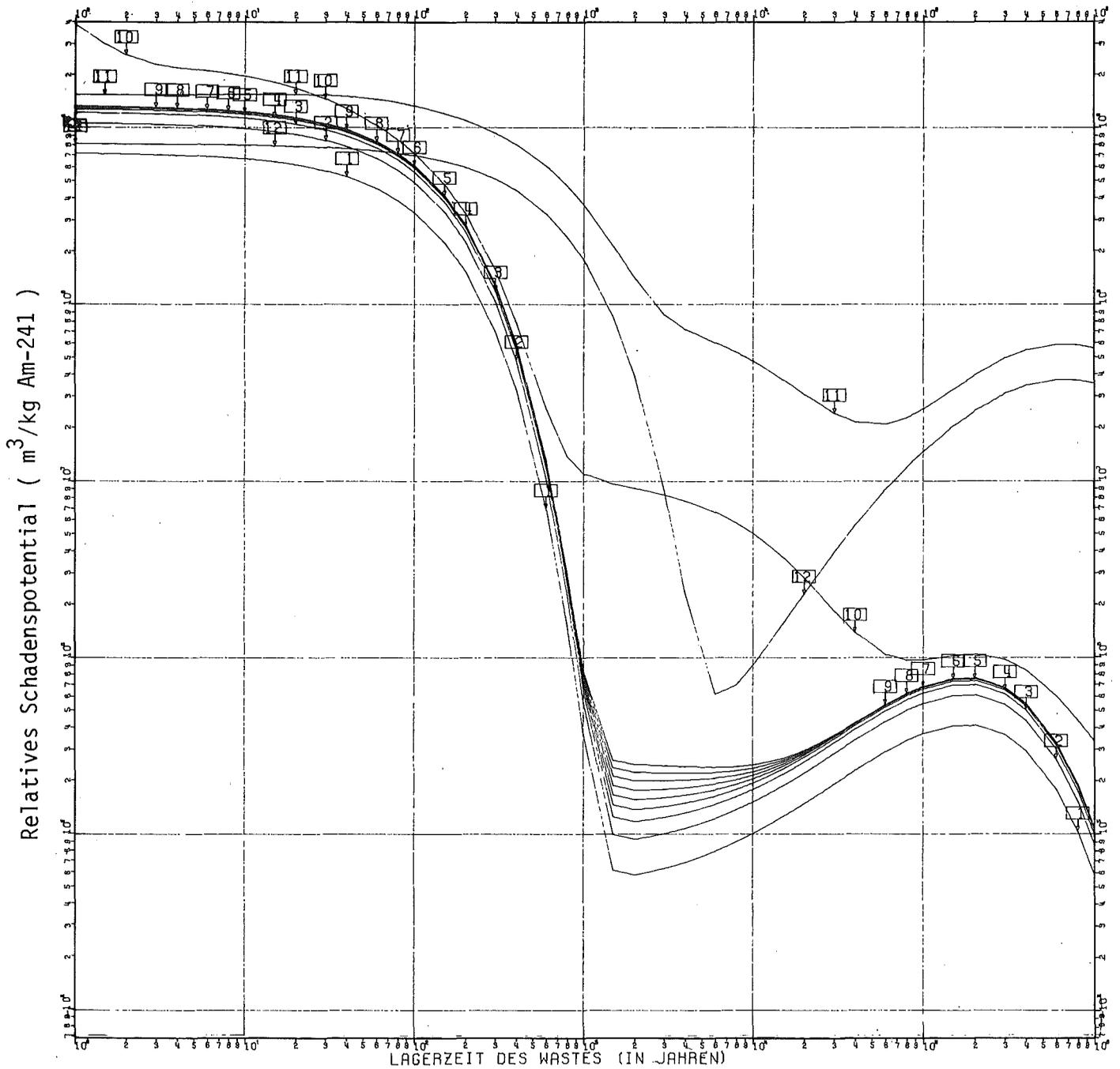
- 1 ... AM-241 BESTR., FALL 5: DF=99.5, WASTE 2, 1. ZYKLUS
- 2 ... AM-241 BESTR., FALL 5: DF=99.5, WASTE 2, 2. ZYKLUS
- 3 ... AM-241 BESTR., FALL 5: DF=99.5, WASTE 2, 3. ZYKLUS
- 4 ... AM-241 BESTR., FALL 5: DF=99.5, WASTE 2, 4. ZYKLUS
- 5 ... AM-241 BESTR., FALL 5: DF=99.5, WASTE 2, 5. ZYKLUS
- 6 ... AM-241 BESTR., FALL 5: DF=99.5, WASTE 2, 6. ZYKLUS
- 7 ... AM-241 BESTR., FALL 5: DF=99.5, WASTE 2, 7. ZYKLUS
- 8 ... AM-241 BESTR., FALL 5: DF=99.5, WASTE 2, 8. ZYKLUS
- 9 ... AM-241 BESTR., FALL 5: DF=99.5, WASTE 2, 9. ZYKLUS
- 10 ... AM-241 BESTR., FALL 5: DF=99.5, WASTE GESAMT NACH 9 ZYKLEN
- 11 ... GEFAHRUNGSPOTENTIAL AM/PU-ABFALL, FALL 1: KEINE BEHANDLUNG
- 12 ... GEFAHRUNGSPOTENTIAL AM/PU-ABFALL, FALL 2: PU-ABTR., DF=99.5

Abb. 2.27: Relatives Schadenspotential des Abfalls aus der Fertigung Pu-haltiger Brennelemente, Behandlung nach Fallstudie 5, DF = 99.5%, Einzelkurven 1-10: W_i für $i=1, \dots, 10$



- 1 ... AM-241 BESTR., FALL 5: DF=99.9, WASTE 1, 0. ZYKLUS
- 2 ... AM-241 BESTR., FALL 5: DF=99.9, WASTE 1, 1. ZYKLUS
- 3 ... AM-241 BESTR., FALL 5: DF=99.9, WASTE 1, 2. ZYKLUS
- 4 ... AM-241 BESTR., FALL 5: DF=99.9, WASTE 1, 3. ZYKLUS
- 5 ... AM-241 BESTR., FALL 5: DF=99.9, WASTE 1, 4. ZYKLUS
- 6 ... AM-241 BESTR., FALL 5: DF=99.9, WASTE 1, 5. ZYKLUS
- 7 ... AM-241 BESTR., FALL 5: DF=99.9, WASTE 1, 6. ZYKLUS
- 8 ... AM-241 BESTR., FALL 5: DF=99.9, WASTE 1, 7. ZYKLUS
- 9 ... AM-241 BESTR., FALL 5: DF=99.9, WASTE 1, 8. ZYKLUS
- 10 ... AM-241 BESTR., FALL 5: DF=99.9, WASTE 1, 9. ZYKLUS
- 11 ... AM-241 BESTR., FALL 5: DF=99.9, WASTE GESAMT NACH 9 ZYKLEN
- 12 ... GEFÄHRDUNGSPOTENTIAL AM/PU-ABFALL, FALL 1: KEINE BEHANDLUNG
- 13 ... GEFÄHRDUNGSPOTENTIAL AM/PU-ABFALL, FALL 2: PU-ABTR., DF=99.9

Abb. 2.28: Relatives Schadenspotential des Abfalls aus der Fertigung Pu-haltiger Brennelemente, Behandlung nach Fallstudie 5, DF = 99.9%, Einzelkurven 1-10: $W_i + W_i'$ für $i=0, \dots, 9$



- 1 ... AM-241 BESTR., FALL 5: DF=99.9, WASTE 2, 1. ZYKLUS
- 2 ... AM-241 BESTR., FALL 5: DF=99.9, WASTE 2, 2. ZYKLUS
- 3 ... AM-241 BESTR., FALL 5: DF=99.9, WASTE 2, 3. ZYKLUS
- 4 ... AM-241 BESTR., FALL 5: DF=99.9, WASTE 2, 4. ZYKLUS
- 5 ... AM-241 BESTR., FALL 5: DF=99.9, WASTE 2, 5. ZYKLUS
- 6 ... AM-241 BESTR., FALL 5: DF=99.9, WASTE 2, 6. ZYKLUS
- 7 ... AM-241 BESTR., FALL 5: DF=99.9, WASTE 2, 7. ZYKLUS
- 8 ... AM-241 BESTR., FALL 5: DF=99.9, WASTE 2, 8. ZYKLUS
- 9 ... AM-241 BESTR., FALL 5: DF=99.9, WASTE 2, 9. ZYKLUS
- 10 ... AM-241 BESTR., FALL 5: DF=99.9, WASTE GESAMT NACH 9 ZYKLEN
- 11 ... GEFÄHRDUNGSPOTENTIAL AM/PU-ABFALL, FALL 1: KEINE BEHANDLUNG
- 12 ... GEFÄHRDUNGSPOTENTIAL AM/PU-ABFALL, FALL 2: PU-ABTR., DF=99.9

Abb. 2.29: Relatives Schadenspotential des Abfalls aus der Fertigung Pu-haltiger Brennelemente, Behandlung nach Fallstudie 5, DF = 99.9%, Einzelkurven 1-10: W_i für $i=1, \dots, 10$

3. Durchführung von Bestrahlungen mit Am-241 in Forschungsreaktoren

3.1 Überblick über bisher durchgeführte Bestrahlungen von Actiniden

Mit Ausnahme einiger kleinerer Bestrahlungsexperimente in Europa /34 - 37/ wurden bisher nur in den USA größere Bestrahlungsprogramme für Actiniden in Reaktoren /38,39,40/ durchgeführt.

3.1.1 Savannah River Laboratory

Im Auftrag der USAEC wurden wegen der großen Verfügbarkeit von Bestrahlungskapazität in den Reaktoren der Savannah River Anlagen (SRL) /38/ bestrahlt:

- große Mengen Np-237 zur Herstellung von Pu-238 /44,45/
- etwa 200 kg Pu-239 zur Herstellung von Cf-252 über die Zwischenprodukte Pu-242, Am-243 und Cm-244 /38,39/
- etwa 1 kg Am-241 /40/
- etwa 2 kg Am-Mischung, wie sie sich aus dem Hochaktiv-Waste der Brennelementaufarbeitung gewinnen läßt /46/.

Mit Ausnahme der Pu-239-Bestrahlungen, bei denen man das Pu in Form einer Legierung mit Aluminium einsetzte, wurden alle Targets in Cermettechnik als Preßlinge einer homogenen Mischung von Actinidoxid-Pulver mit Aluminium-Pulver hergestellt und bestrahlt.

Die Pellets enthielten ca. 7 Gew.% Actinidoxid, das in zwei

Preßschritten bis auf ca. 98% der theoretisch möglichen Dichte gepreßt wurde. Die Hülle aus Reinaluminium wurde in einer hydraulischen Druckkammer isostatisch aufgepreßt.

Diese Targets wurden teilweise über Zeiten von mehr als einem Jahr bei Neutronenflüssen um 10^{15} n/sec.cm² bestrahlt. Von aufgetretenen Schäden wird nichts berichtet. Nennenswertes Schwellen der Kapseln wurde bei den Nachbestrahlungsuntersuchungen nicht festgestellt /41/.

3.1.2 Oak Ridge National Laboratory

Im High-Flux-Isotope-Reactor (HFIR/Oak Ridge, USA) wurden speziell zur Gewinnung von Cf-252 Hochflußbestrahlungen von Pu-242, Cm-244 sowie von Mischungen aus Am-243/Cm-244 im kg-Maßstab durchgeführt /39/.

Anfänglich wurden die Targetstäbe entsprechend der SRL-Technik hergestellt und in den SRL-Reaktoren vorbestrahlt, um anschließend im HFIR eingesetzt zu werden. Nach Auftreten der ersten Schäden an den Hüllrohren aus isostatisch aufgepreßtem Al wurde eine eigene Targetierungstechnik entwickelt. Die Ursache für die Schäden wurde in der Volumenzunahme der Pellets infolge Schwellens des Matrixmaterials durch die kontinuierliche Entstehung von Spaltprodukten ("Spaltproduktschwellen") sowie infolge Schwellens des Strukturmaterials, hier Aluminium, aufgrund von primär bzw. sekundär durch Neutronenreaktionen verursachte Gitterstörungen ("Strukturmaterialschwellen") /42/ gesehen. Der letztere Effekt bewirkt gleichzeitig eine Verringerung der mechanischen Stabilität des Strukturmaterials ("Strahlenversprödung") /42/.

Den Bestrahlungen liegt jetzt folgendes Konzept zugrunde:

- 35 jeweils von einer dünnen Al-Hülle umgebene Pellets in einen Stab
- jedes Pellet wird zusammen mit der Al-Hülse auf ca. 80% der theoretisch möglichen Dichte (th.D.) gepreßt.
- im Cermet befinden sich etwa 45 Gew.% Actinidoxid zu 55 Gew.% Al-Matrix
- das Leervolumen im Gesamtstab beträgt ca. 40%.

Auf das gesamte Pellet (einschließlich Al-Hülse) bezogen ergibt sich:

Actiniden-Oxid	~ 23 Gew.%
Leervolumen	~ 20 Vol.%
Preßdichte	~ 80 % th.D.

Um guten thermischen Übergang zwischen den Pellets und der äußeren Aluminium-Hülle zu erhalten, wird diese isostatisch aufgepreßt. Diese Targets mit etwa auf 20% erhöhter Porosität zeigten ein wesentlich besseres Bestrahlungsverhalten als die vorangegangenen; es scheinen jedoch immer noch gelegentlich Schäden aufzutreten, die aber auf Fertigungsfehler zurückgeführt werden /46/.

Es wird eine Volumenzunahme von etwa 1% - bezogen auf das Actinidenvolumen - pro 1% gespaltener Atome angenommen. Von den während der Bestrahlung produzierten Gasen - im wesentlichen Spaltgasen und Helium - wurden nur etwa 5% in den Stabhohlräumen gefunden.

Im HFIR wurden bisher keine Bestrahlungen von Am-241 durchgeführt; jedoch wurden im benachbarten Oak-Ridge-Research-Reactor (ORR) ca. 7,5 g Cm-242 aus etwa 80 g Am-241 hergestellt. Auch bei dieser Bestrahlung zeigt sich, daß der Gasdruck im Plenum der Stäbe unter dem errechneten Wert lag /40/, er betrug nur etwa 1/5 des erwarteten Wertes.

3.1.3 Europäisches Institut für Transurane, Karlsruhe

Neun Kapseln mit je 1,5 g Am-241 wurden hergestellt und im Reaktor BR-2 (Mol/Belgien) bestrahlt. Die Actinidenkonzentration betrug 25 Gew.% AmO₂ in Aluminium-Matrix, die Pellets waren auf 92% th.D. verdichtet. Eine der Kapseln wurde bei einer Dosis von $1 \cdot 10^{21}$ n/cm² undicht und führte zu einer starken α -Kontamination des Reaktors.

Die Nachbestrahlungsuntersuchungen /36/ ergaben, daß die Länge der Pelletsäule um 17%, der Radius der Pellets um 11% zugenommen hatte. Nennenswerte Gasmengen wurden im Plenum der intakt gebliebenen Stäbe nicht gefunden.

3.1.4 Institut für Radiochemie, Technische Universität München

Verschiedene Bestrahlungen von bis zu 1,2 g Am-241 wurden vom Institut für Radiochemie der Technischen Universität München im BR2 (Mol/Belgien) durchgeführt /34,35/. Bei der Bestrahlung von 1.2 g Am-241 bestand das Target aus zwei Pellets mit 18 Gew.% AmO₂ in Aluminium-Matrix; die Pellets waren doppelt in Aluminium gehüllt und zusätzlich mit Edelstahl gekapselt. Die Bestrahlung verlief ohne Zwischenfall; die angewandte Technik ist jedoch so aufwendig und aus der Sicht einer optimalen thermischen Auslegung so unzureichend, daß sie für die Durchführung technischer Bestrahlungen im kg-Maßstab ausgeschlossen werden muß.

3.2 Auslegung der Bestrahlungsstäbe

3.2.1 Mechanische Auslegung der Bestrahlungsstäbe

Aufbauend auf den aus der Literatur gewonnenen Erfahrungen wurde für das Bestrahlungsprogramm der hier diskutierten Arbeit ein Bestrahlungsstab konzipiert (Abb. 3.1), der den folgenden Randbedingungen genügen sollte:

- (1) Hüllrohr mit hoher Zugfestigkeit bei ausreichender Duktilität auch bei Neutronendosen $> 10^{21} \text{ n/cm}^2$.
- (2) Am-Oxid eingebettet in eine Matrix hoher Wärmeleitfähigkeit
- (3) Am-Oxid und Matrixmaterial zu Pellets verpreßt bei einem Anteil von 20 Vol.% Porosität
- (4) Spalt zwischen Hüllrohr und Pellets für max. Betriebstemperatur möglichst gegen Null gehend, wegen besserem Wärmeübergang Füllung des Stabes mit Helium
- (5) einfache Herstellbarkeit

Die einzelnen Punkte bedürfen noch einer kurzen Erläuterung:

zu (1): In bisher durchgeführten Experimenten sind Volumenänderungen der Pellets vorgekommen, die in Zusammenwirken mit einem Druckaufbau durch Helium und/oder Spaltgas zum Bersten von Stäben führten. Diese Stäbe hatten als Außenhülle Aluminium, das insbesondere bei höheren Temperaturen nur noch eine geringe Zugfestigkeit aufweist und außerdem durch Si-28- bzw. Mg-24-Bildung im Metallgitter /42/ über die Reaktionen

Al-27 (n, γ) Al-28 (β^-) Si-28

Al-27 (n, α) Na-24 (β^-) Mg-24

gerade bei höheren Temperaturen zu starkem Verspröden neigt. Als geeignetes Hüllmaterial wurde daher Edelstahl der Werkstoff-Nr. 1.4306 (entsprechend USA-Norm AISI 304 L) ausgewählt, der sich durch hohe Zugfestigkeit, Restduktilität auch in bestrahltem Zustand und gute Schweißbarkeit auszeichnet. Seine mechanischen Eigenschaften vor und nach Bestrahlung zeigen die Tabellen 3.1 und 3.2.

Tabelle 3.1: Mechanische Eigenschaften des Werkstoffes W.Nr. 1.4306
 (nach DIN 17440, unbestrahlt)

Parameter		Wert	
Testtemperatur	($^{\circ}\text{C}$)	20	300
Zugfestigkeit σ_B	(kg/mm^2)	> 45	
$\sigma_{0.2}$ -Grenze	(kg/mm^2)	18	10
Bruchdehnung σ	(%)	~ 50	

Tabelle 3.2: Mechanische Eigenschaften des Werkstoffes W.Nr. 1.4306 (bestrahlt) /34/

Parameter		Wert	
Dosis (> 1 MeV)	(n/cm ²)	1.10 ²¹	1.10 ²¹
Temperatur bei Bestrahlung	(°C)	50	260
Testtemperatur	(°C)	20	20
Zugfestigkeit σ_B	(kg/mm ²)	60	84
Bruchdehnung	(%)	45	20

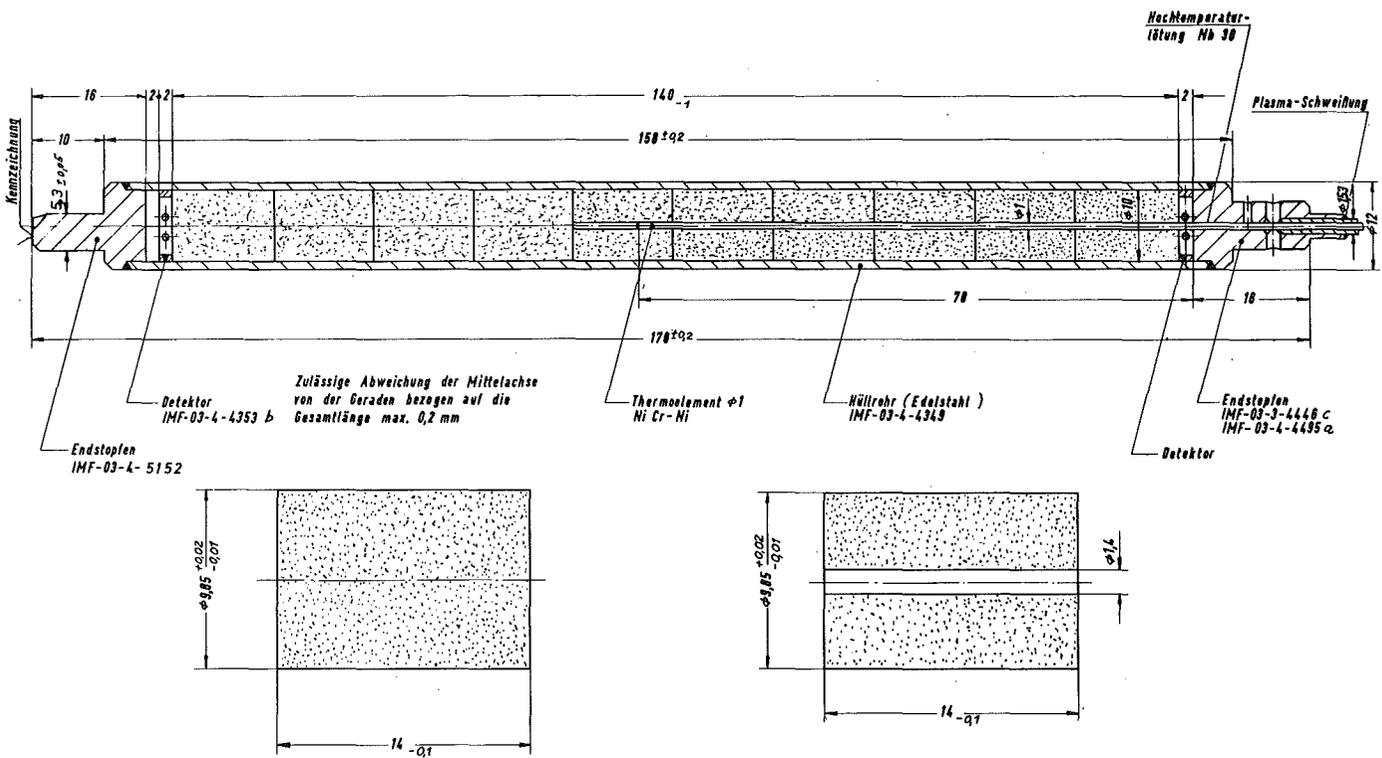


Abb. 3.1: Ausführung der Am-241-Bestrahlungsstäbe

zu (2): Während der Bestrahlung von Am-241 wird im wesentlichen durch Spaltung von Am-242/242m, das sich durch Neutroneneinfang aus Am-241 bildet, eine beträchtliche Wärmemenge freigesetzt. Bei einem Neutronenfluß von 2×10^{14} n/sec.cm² beträgt die maximale Wärmefreisetzung ca. 1 kW/g Am-241. Diese Leistung muß an das Reaktorkühlmittel abgeführt werden. Dies kann am besten durch Einbetten des Am-Oxids in eine metallische Matrix erfolgen, die in radialer Richtung gute Wärmeleitungsbrücken bildet. Aus neutronenphysikalischen Gründen - niedriger Absorptionsquerschnitt - ist Aluminium besonders gut geeignet.

zu (3): Die Mischung aus Am-Oxid und Aluminiumpulver wird zum Erreichen genügender mechanischer Stabilität zu Pellets gepreßt. Durch die Entstehung von Spaltprodukten in den Am-Oxid-Körnern muß (vgl. /40/) mit einer Volumenvergrößerung der Pellets, dem sog. Spaltproduktschwellen, gerechnet werden. Als relativ pessimistische Annahme kann hier in Analogie zu Reaktorbrennstoff von einer Volumenänderung des Am-Oxids um 1,5% bei Spaltung von 1% der ursprünglich im gleichen Volumen vorhandenen Am-Atome ausgegangen werden.

Ferner entsteht durch α -Zerfall, insbesondere durch Zerfall des in der Aufbaukette von Am-241 vorkommenden Cm-242, Helium, das zu einem starken Druckaufbau im Stab bzw. im Einzelpellet führen kann.

Um diesen beiden Phänomenen entgegenzuwirken, werden die Pellets nur auf 80% der theoretisch möglichen Dichte (80%th.D.) verpreßt, da man dann davon ausgehen kann, daß sich die Matrix wie eine weiche Masse verhält, die wegen der Möglichkeit der inneren Verdichtung Volumenänderungen infolge Materialschwellens derart aufnehmen kann, daß keine Spannungsspitzen durch Festkörperdruck in der Hülle zu erwarten sind. Ferner ist das verbleibende Porenvolumen von 20% des genannten Pellets in der Lage, die sich bildenden Gase unter zulässigen Druckbedingungen aufzunehmen.

zu (4): Zur Vermeidung einer zu hohen Zentraltemperatur im Bestrahlungsstab muß der Wärmeübergang vom Pellet zum Reaktor-kühlmittel möglichst gut sein. Dies ist erreichbar durch einen kleinen Gasspalt zwischen Pellet und Hüllrohr, der im Idealfall gegen Null gehen sollte, sowie durch Füllung des Spaltes mit einem günstigen Wärmeübertragungsmittel. Helium ist hierfür wegen seiner großen Wärmeleitfähigkeit gut geeignet und erleichtert die Schweißung des Hüllrohres, die ohnehin unter He-Schutzgasatmosphäre durchgeführt werden muß.

zu (5): Die Bestrahlungsstäbe wurden konzipiert für Bestrahlungen, die später im kg-Bereich durchgeführt werden sollten. Ihre Herstellungstechnik sollte einfach und auch später auf fernbediente Heißzellenanlagen übertragbar sein. Aus dieser Perspektive kam nur ein Konzept in Frage, das mit einer einzigen gasdichten Umhüllung die aktiven Pellets umschließt.

Da bei Beginn der Herstellung der ersten Stäbe noch keine Erfahrungen über die mechanische Stabilität der Pellets vorlag, wurden die Pellets der ersten Versuchsreihe von einer Al-Hülse und stirnseitigen Deckschichten aus verpreßtem Al-Pulver - insgesamt in einem Arbeitsgang gepreßt - radial und axial umgeben, um den Einfüllvorgang kontaminationsarm durchführen zu können. Hülse (auch Liner genannt) und Deckschichten konnten nach Entwicklung einer entsprechend sauberen Einfülltechnik entfallen (vgl. Kap. 3.3.1).

3.2.2 Nukleares Verhalten der Bestrahlungsstäbe

Aus Sicherheitsgründen mußte vor Bestrahlungsaufnahme eine detaillierte reaktorphysikalische Analyse der durchzuführenden Bestrahlungsexperimente dem jeweiligen Reaktorbetreiber

Tab. 3.3: Übersicht über die wesentlichen Daten der Bestrahlungen im HFR/Petten

Parameter	Experiment							
	HFR-1	HFR-2		HFR-3			HFR-4	
Anzahl der Stäbe (Stück)	9	6	3	3	3	3	6	3
Gesamtlänge, Einzelstab (mm)	178	178	178	178	178	178	178	80
Außendurchmesser, Hüllrohr (mm)	12	12	12	12	12	12	12	12
Wandstärke, Hüllrohr (mm)	1	1	1	1	1	1	1	1
Hüllrohr-Material (Werkst.Nr.)	1.4306	1.4306	1.4306	1.4306	1.4306	1.4306	1.4306	1.4306
Flußmonitore (Stück)	2	2	2	2	2	2	2	2
Monitor-Material	Co,Fe							
Anzahl der Pellets pro Stab	10	10	10	10	10	10	10	3
- durchbohrte Pellets (Stück)	6	0	6	0	0	6	6	2
- Bohrungsdurchmesser (mm)	1.4	-	1.4	-	-	1.4	1.4	1.4
Äußerer Pelletdurchmesser:								
- mit Al-Liner (mm)	9.85	9.85	9.85	9.85	9.85			
- ohne Al-Liner (mm)	~ 8	~ 8	~ 8	~ 8	~ 8	9.85	9.85	9.85
Pellet-Länge (mm)	14	14	14	14	14	14	14	14
Pressdichte (%th.D.)	80	80	80	80	80	80	80	80
Dicke der Al-Deckschichten (mm)	~ 1	~ 1	~ 1	~ 1	~ 1			
Actinidenoxid-Gehalt (Gew.%)	15	15	30	10	15	25	25	25
Am-241-Dichte im Pellet (g/cm ³)	0.3225	0.3225	0.7394	0.2062	0.3225	0.5875	0.5875	0.5875
Aktives Pelletvolumen (cm ³)	0.59	0.59	0.59	0.59	0.59	1.07	1.07	1.07
Am-Gewicht pro Pellet (g)	0.195	0.195	0.436	0.122	0.195	0.627	0.627	0.627
Am-Gewicht pro Stab (g)	1.95	1.95	4.36	1.22	1.95	6.27	6.27	1.881
Gasfüllung im freien Volumen	Helium							
He-Druck (at)	1	1	1	1	1	1	1	1
Porenvolumen je Stab (cm ³)	1.41	1.41	1.41	1.41	1.41	2.41	2.41	0.64
freies Gesamtvolumen (cm ³)	1.82	1.82	1.82	1.82	1.82	2.55	2.55	1.05
Bestrahlungsposition	H5	H5	H5	H5	H5	H5	H6	H6
geplante Bestrahlungszeit (d)	105	90	90	95	95	95	114	114
tats. Bestrahlungszeit (d)	32	101	101	57	57	57	26	26
Neutronenfluß (n/sec.cm ²)	1x10 ¹⁴							
Neutronendosis, therm. (n/cm ²)	2.7x10 ²⁰	2.7x10 ²⁰	8.7x10 ²⁰	4.9x10 ²⁰	4.9x10 ²⁰	4.9x10 ²⁰	2.2x10 ²⁰	2.2x10 ²⁰

Tab. 3.3: (Fortsetzung) Übersicht über die wesentlichen Daten der Bestrahlungen im BR-2/Mo1

Parameter	Experiment	
	Mo1 14-1	Mo1 14-2
Anzahl der Stäbe (Stück)	1	1
Gesamtlänge, Einzelstab (mm)	178	178
Außendurchmesser, Hüllrohr (mm)	12	12
Wandstärke, Hüllrohr (mm)	1	1
Hüllrohr-Material (Werkst.Nr.)	1.4306	1.4306
Flußmonitore (Stück)	2	2
Monitor-Material	Co,Fe	Co,Fe
Anzahl der Pellets pro Stab	10	10
- durchbohrte Pellets (Stück)	-	-
- Bohrungsdurchmesser (mm)	-	-
Äußerer Pelletdurchmesser:		
- mit Al-Liner (mm)	9.85	9.85
- ohne Al-Liner (mm)	~ 8	~ 8
Pellet-Länge (mm)	14	14
Pressdichte (%th.D.)	80	80
Dicke der Al-Deckschichten (mm)	~ 1	~ 1
Actinidenoxid-Gehalt (Gew.%)	10	10
Am-241-Dichte im Pellet (g/cm ³)	0.2062	0.2062
Aktives Pelletvolumen (cm ³)	0.59	0.59
Am-Gewicht pro Pellet (g)	0.122	0.122
Am-Gewicht pro Stab (g)	1.22	1.22
Gasfüllung im freien Volumen	Helium	Helium
He-Druck (at)	1	1
Porenvolumen je Stab (cm ³)	1.41	1.41
freies Gesamtvolumen (cm ³)	1.82	1.82
geplante Bestrahlungszeit (d)	42	42
tats. Bestrahlungszeit (d)	63	63
Neutronenfluß (n/sec.cm ²)	2x10 ¹⁴	2.2x10 ¹⁴
Neutronendosis (n/cm ²)	1.1x10 ²⁰	1.2x10 ²⁰

vorgelegt werden. Stellvertretend für die insgesamt durchgeführten 6 Bestrahlungsexperimente (Tab. 3.3) werden im folgenden die theoretischen Vorüberlegungen zum 3. Experiment am HFR/Petten (HFR-3) aufgezeigt. Für die sicherheitstechnische Beurteilung sind vor allem die folgenden Parameter zu untersuchen:

- Nuklidaufbau als Funktion der Zeit
- Wärmefreisetzung durch Spaltung und α -Zerfall als Funktion der Zeit
- Temperaturprofil im Bestrahlungsstab bei maximaler Wärmefreisetzung.

3.2.2.1 Nuklidaufbau bei Bestrahlung von Am-241

Die Abb. 2.2, S. 9, zeigt das Nuklid Am-241 in der Aufbaukette der Transurane. Entsprechend Abb. 3.2 läßt sich die zeitabhängige Anzahl von Atomen jedes einzelnen Nuklides dieser Aufbaukette durch die folgende Differentialgleichung angeben.

$$\begin{aligned} \frac{dN_i}{dt} = & \lambda_{\beta, i-m} \cdot N_{i-m} + \lambda_{EC, i+1} \cdot N_{i+1} + \lambda_{\alpha, i+k} \cdot N_{i+k} \\ & + \sigma_{c, i-1} \cdot N_{i-1} \cdot \phi_{eff} + \sigma_{n2n, i+1} \cdot N_{i+1} \cdot \phi_{eff} \\ & - (\lambda_{\beta, i} + \lambda_{EC, i} + \lambda_{\alpha, i}) \cdot N_i - (\sigma_{c, i} + \sigma_{f, i} + \sigma_{n2n, i}) \cdot \phi_{eff} \cdot N_i \end{aligned}$$

Bei den vorliegenden Rechnungen wurden insgesamt 42 Einzelnuclide - von U-235 bis Cf-252 - berücksichtigt, so daß sich ein System von 42 miteinander gekoppelten Differentialgleichungen ergibt. Dieses Gleichungssystem wurde durch iterierende

Rechenschritte mittels des Programmsystems ACTINID /47/ gelöst. Die Iteration wurde einer analytischen Lösung vorgezogen, da letztere nur die Berechnung fortlaufender Ketten gestattet und für Rückkoppelungen - z.B. über α -Zerfall - ein erheblicher Programmaufwand notwendig würde, der viel Rechenzeit benötigte.

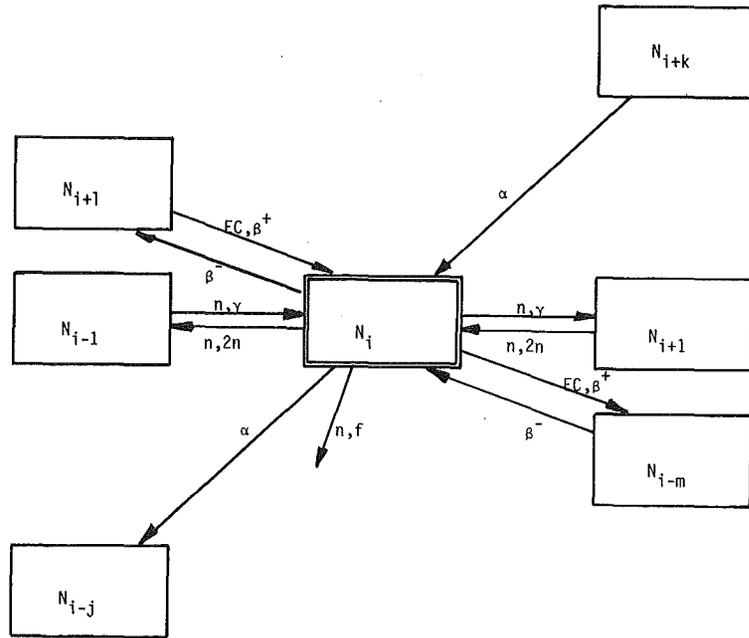


Abb. 3.2: Verknüpfung des Nuklids N_i mit den Nachbarnukliden gemäß obiger Differentialgleichung

Für die Rechnungen wurden die Querschnitte nach Tab. 3.4, S. 67, verwendet /49-56/. Die effektiven Querschnitte für thermischen Neutronenfluß σ_{eff} ergeben sich nach Westcott /48/ durch die Beziehung

$$\sigma_{\text{eff},x} = T \cdot \sigma_{0,x} + R \cdot I_x$$

wobei

T	Temperaturfaktor	(-)
$\sigma_{0,x}$	Querschnitt für Einfang ($x=c$) oder Spaltung ($x=f$) für 2200 m/sec	(cm^2)
R	Resonanzfaktor	(-)
I_x	Resonanzintegral für Einfang bzw. Spaltung	(cm^2)

bedeuten.

Wegen der relativ niedrigen Primärkreislauftemperaturen (Moderator) von BR-2 bzw. HFR konnte der Temperaturfaktor mit 1.0 angesetzt werden. Der Resonanzfaktor wurde entsprechend den Spektrumsmessungen der Reaktorbetreiber für den HFR mit 0,05 für den BR-2 mit 0,06 (Randposition) bzw. 0,20 (Core-Position) angenommen /41/. Abb. 3.3 zeigt den zeitabhängig berechneten Nuklid Aufbau bei Bestrahlung von Am-241 für ausgewählte Am-, Pu-, Cm-Isotope bei einem thermischen Neutronenfluß von

$$\phi_{th} = 1,2 \times 10^{14} \text{ sec}^{-1} \text{ cm}^{-2}.$$

Zur Abschätzung des Reaktivitätsverhaltens des Bestrahlungseinsatzes während der Bestrahlungszeit wurde der zeitabhängige Verlauf des Einfang- bzw. Spaltquerschnittes nach der Gleichung

$$\sigma_x(t) = \frac{\sum_{i=1}^n \sigma_{x,i} \cdot N_i(t)}{\sum_{i=1}^n N_i(t=0)} \quad [\text{barn}]$$

auf die Ausgangskonzentration normiert berechnet. Die Abb. 3.4 und 3.5 zeigen den Verlauf der normierten Querschnitte für zwischen 0,8 und $1,2 \times 10^{14} \text{ sec}^{-1} \text{ cm}^{-2}$ variiertem Neutronenfluß (ungestört).

Ausgehend vom ungestörten Neutronenfluß ergibt sich aufgrund der relativ hohen Absorption und Selbstabschirmung über den Stabquerschnitt eine Flußdepression, die hauptsächlich vom makroskopischen Absorptionsquerschnitt und damit der Teilchendichte im Stab und vom Stabdurchmesser abhängt. Nach /50/ kann der mittlere effektive Neutronenfluß näherungsweise nach der Formel

$$\phi_{eff} = \phi_0 \left(1 - \frac{5}{6} \cdot d_{pe} \cdot \sigma_i \cdot N_i \right) \quad [\text{n/sec.cm}^2]$$

berechnet werden. Dabei bedeuten

- ϕ_0 ungestörter Neutronenfluß [n/sec.cm²]
 d_{pe} Pelletdurchmesser [cm]
 σ_i Absorptionsquerschnitt des i-ten Nuklids [cm²]
 N_i Teilchendichte des i-ten Nuklids [cm⁻³]

Aufgrund der sich während der Bestrahlung stetig verändernden Absorptionsverhältnisse ergibt sich der in Abb. 3.6 dargestellte effektive Neutronenfluß in Bestrahlungsposition ausgehend von einem ungestörtem Neutronenfluß zwischen 0,8 und $1,2 \times 10^{14} \text{ sec}^{-1} \text{ cm}^{-2}$. Dieser effektive Neutronenfluß wurde allen nuklearen Rechnungen zugrunde gelegt.

Tab. 3.4: Halbwertszeiten und Wirkungsquerschnitte einiger ausgewählter Actiniden-Nuklide (nach /49-56/)

Nuklid	Halbwertszeit $t_{1/2}$	$\sigma_{o,c}$ (barn)	I_c (barn)	$\sigma_{o,f}$ (barn)	I_f (barn)
Np-237	2.14×10^6 a	184	805	0	0
Np-238	50.8 h	1600	600	2070	880
Pu-238	87.8 a	588	164	16.3	24
Pu-239	2.44×10^4 a	265.7	195	742.7	324
Pu-240	6537. a	281	8453	0	0
Pu-241	14.89 a	383	166	1006	541
Pu-242	3.87×10^5 a	20	1180	0	0
Pu-243	4.96 h	80	0	210	0
Am-241		700	850	0	0
Am-241	433. a	80	250	2.9	8.5
Am-242	16. h	0	0	2900	0
Am-242m	152. a	1720	1100	5900	5500
Am-243	7400. a	77	2000	0	0
Am-244	10.1 h	0	0	140	0
Cm-242	163.0 d	16	150	5	0
Cm-243	30. a	250	200	700	1860
Cm-244	18.1 a	8	650	1	19
Cm-245	8532. a	340	100	1920	1140
Cm-246	4820. a	1.2	121	0.2	11
Cm-247	1.56×10^7 a	78	200	120	1060
Cm-248	3.61×10^5 a	5.2	250	0	0

Es muß an dieser Stelle darauf hingewiesen werden, daß die Wirkungsquerschnitte der einzelnen Actinidennuklide gemäß Tab. 3.4 zum Teil noch mit erheblichen Unsicherheiten behaftet sind; bei der Berechnung der Nuklidzusammensetzung bei Bestrahlung von z.B. Am-241 und Berücksichtigung sehr vieler Einzelnuclide vervielfachen sich wegen der Koppelung der Einzelnuclide gemäß dem o.g. Differentialgleichungssystem (vgl. S. 64) diese Fehlerkomponenten, so daß je nach Wahl der Querschnittsätze und Wahl der spektralen Neutronenflußverhältnisse für die höheren Actinidennuklide (z.B. Curium) durchaus Abweichungen der Rechenergebnisse im Bereich von $\pm 50\%$ gegenüber chemischen Analysen von bestrahlten Proben auftreten können.

In /62/ wurde für das ORIGEN-Programmsystem /63/, das in null-dimensionaler Weise - ähnlich dem System ACTINID /47/, jedoch für wesentlich mehr Nuklide - den Aufbau von Nuklidketten bei Neutronenbestrahlung beschreibt, eine Sensitivitätsanalyse bezüglich des Einflusses von Änderungen der Wirkungsquerschnitte auf die Bildungsraten der höheren Actiniden durchgeführt, mit dem Ergebnis, daß sich bei Änderung der Querschnittsätze im Bereich der heute experimentell bekannten Unsicherheiten für die höheren Curium-Isotope (etwa ab Cm-244) eine Fehlerbreite von $\pm 40\%$ ergeben kann, für andere Nuklide aber immerhin auch noch von bis zu $\pm 20\%$.

Dabei wurden jedoch noch keine Selbstabschirmungseffekte, wie sie aufgrund der endlichen Dichte realer Bestrahlungstargets besonders im epithermischen Bereich des Neutronenspektrums wegen der in diesem Bereich besonders ausgeprägten Absorptionsresonanzen auftreten können, berücksichtigt; die Existenz solcher Effekte vergrößert die oben angegebene Fehlerbreite der theoretischen Berechnungen von Reaktionsraten im Bereich der Actiniden möglicherweise noch erheblich.

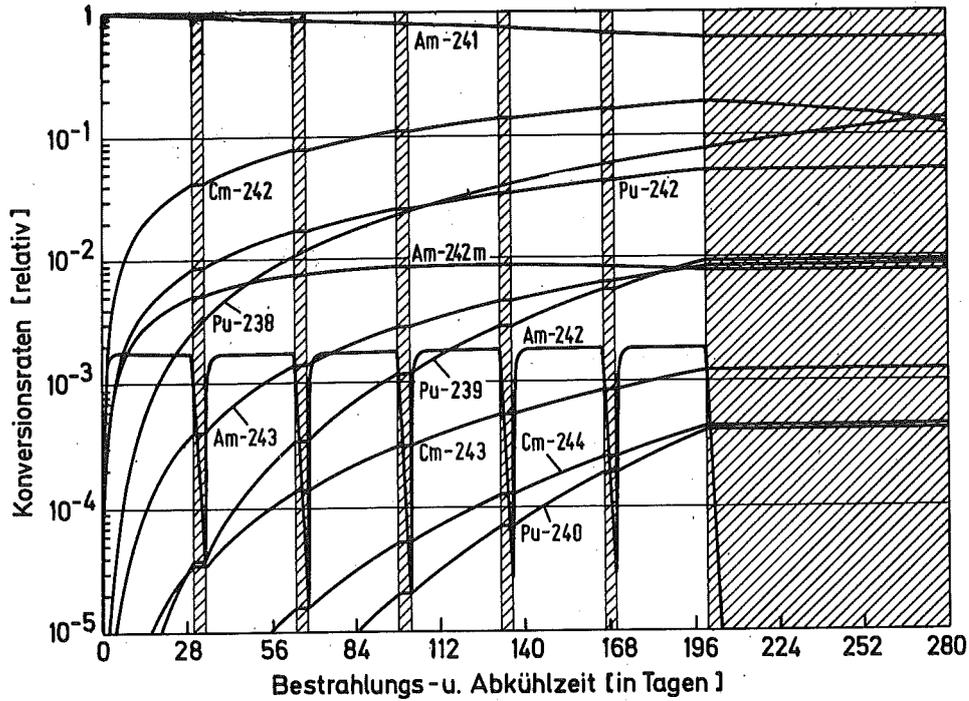


Abb. 3.3 : Nuklidkonzentration als Funktion von Neutronenfluß und Bestrahlungszeit, Pellets mit 25 Gew.% AmO_2 , ohne Liner, $\phi_0 = 1.2 \cdot 10^{14} \text{ sec.cm}^2$

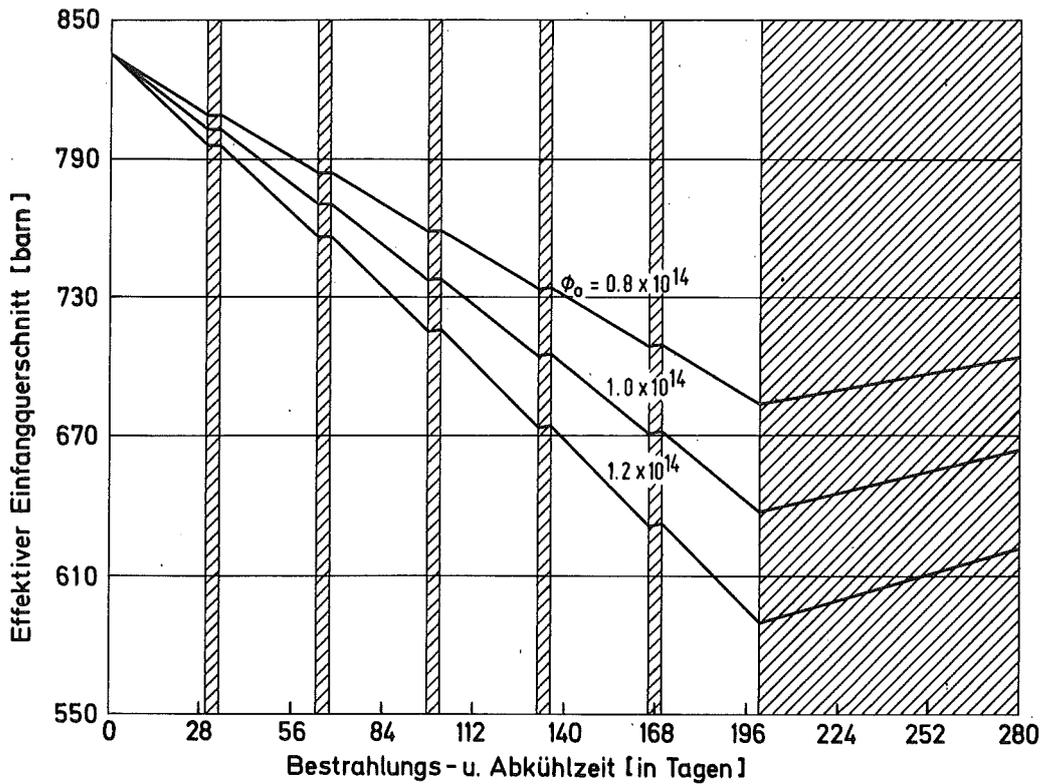


Abb. 3.4: Einfangquerschnitt als Funktion von Bestrahlungszeit und Neutronenfluß, Pellets mit 25 Gew.% AmO_2 , ohne Liner

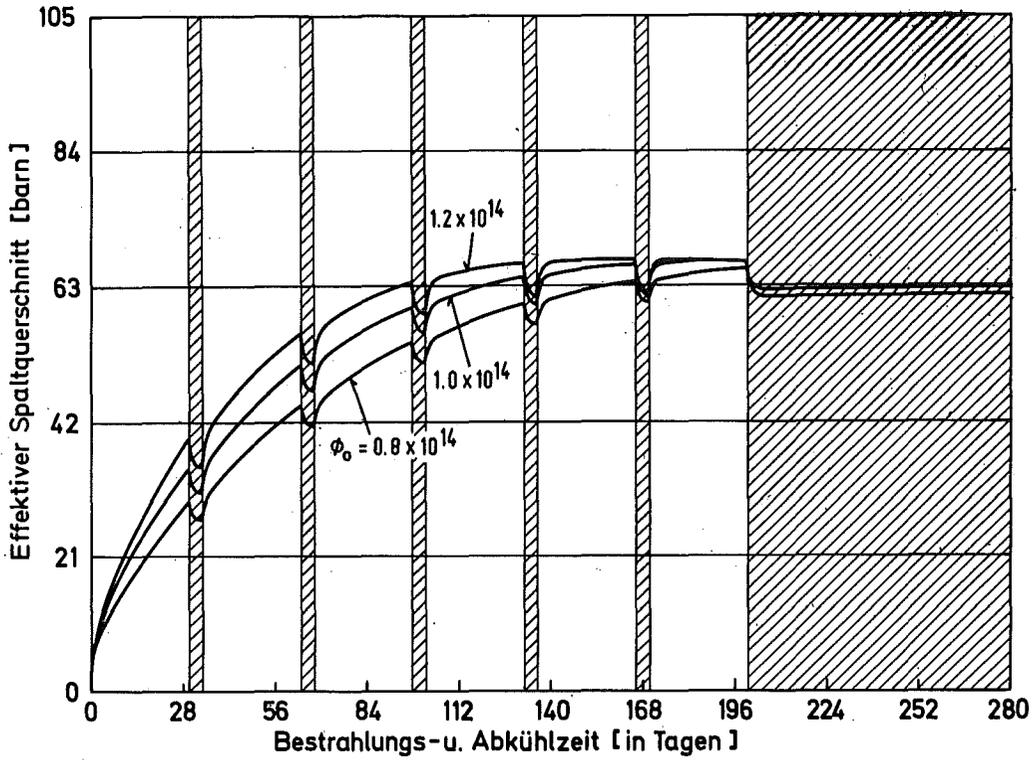


Abb. 3.5: Spaltquerschnitt als Funktion der Bestrahlungszeit und Neutronenfluß, Pellets mit 25 Gew.% AmO₂, ohne Liner

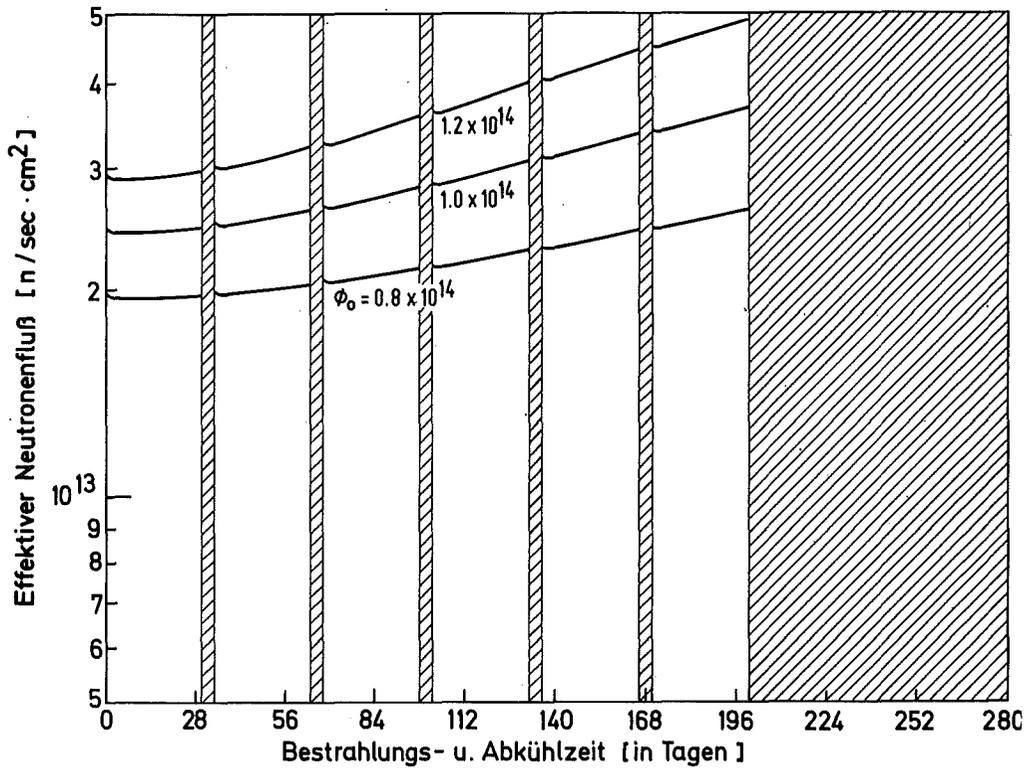


Abb. 3.6: Effektiver Neutronenfluß als Funktion der Bestrahlungszeit für unterschiedliche Höhe des ungestörten Neutronenflusses

3.2.2.2 Wärmefreisetzung durch Spaltung und α -Zerfall

Ausgehend von einer Energiefreisetzung von 205 MeV pro Spaltung wurde die in Abb. 3.7 dargestellte zeitabhängige Wärmeentwicklung ermittelt. Die Darstellung berücksichtigt sowohl die sich stetig verändernde Nuklidzusammensetzung während der Bestrahlung als auch den sich ebenfalls damit verändernden effektiven Neutronenfluß. Zusätzlich zeigt Abb. 3.8 die durch α -Zerfälle bedingte Wärmefreisetzung, die sich durch Summation der freigesetzten Energie aus den Zerfällen der einzelnen α -Nuklide ergibt, die jedoch um eine Größenordnung unter der Spaltwärmefreisetzung liegt; sie wird im wesentlichen durch Aufbau und Zerfall des Cm-242 bedingt, für das sich wegen seiner hohen spezifischen Aktivität von ca. 3300 Ci/g und seiner hohen Zerfallsenergie von 6.04 MeV eine spezifische Wärmeerzeugung von ca. 120 W/g ergibt.

Als Summe der Wärmefreisetzung aus Spaltung und α -Zerfall ergibt sich die spezifische Leistung des Bestrahlungsmaterials ($W_{\text{nukl.}}$) bzw. die auf die Stablänge bezogene Leistung (S) nach Tab. 3.5. Diese Werte gehen als obere Grenzwerte in die Berechnung des Temperaturprofils, d.h. in die Bestimmung der Zentraltemperatur des Bestrahlungsstabes ein.

Tab. 3.5 : Maximale Wärmefreisetzung aus Spaltung und α -Zerfall bezogen auf 1 g eingesetztes Am-241 bzw. 1 cm Stablänge.

ϕ ungest. ($\text{sec}^{-1}\text{cm}^{-2}$)	W_{nukl} (W/g)	S (W/cm)
0.8×10^{14}	149	66.7
1.0×10^{14}	212	94.9
1.2×10^{14}	280	125.4

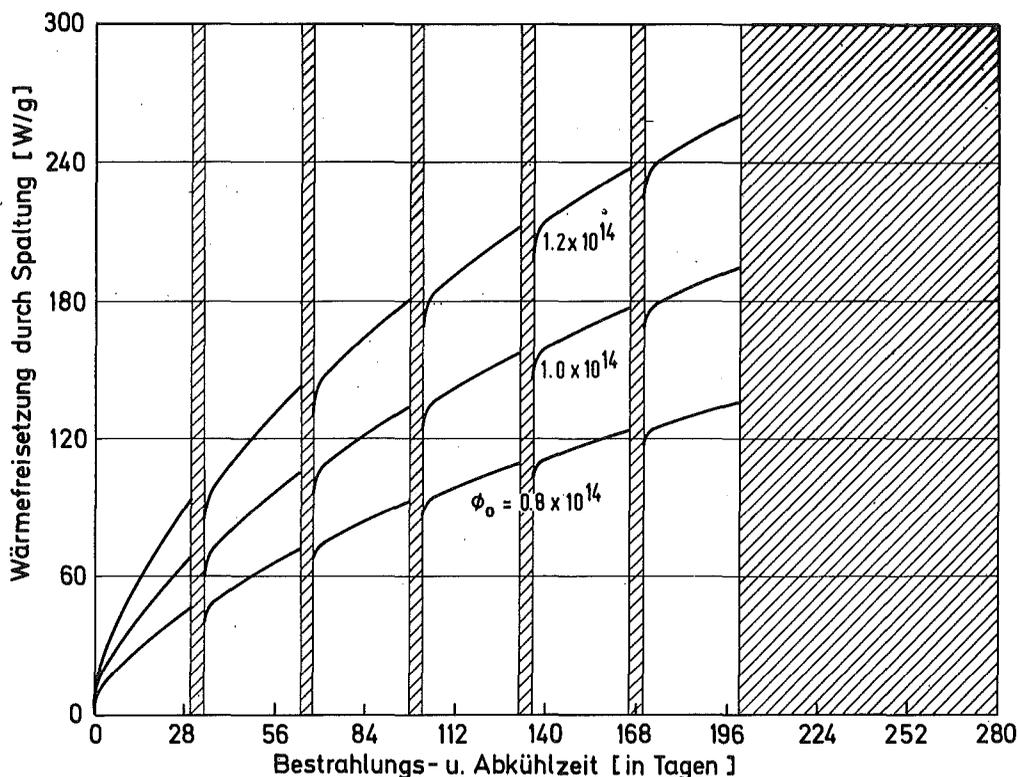


Abb. 3.7: Wärmeentwicklung durch Spaltung normiert auf 1g eingesetztes Am-241 als Funktion von Bestrahlungszeit und Neutronenfluß, Pellets mit 25 Gew.% AmO₂, ohne Liner

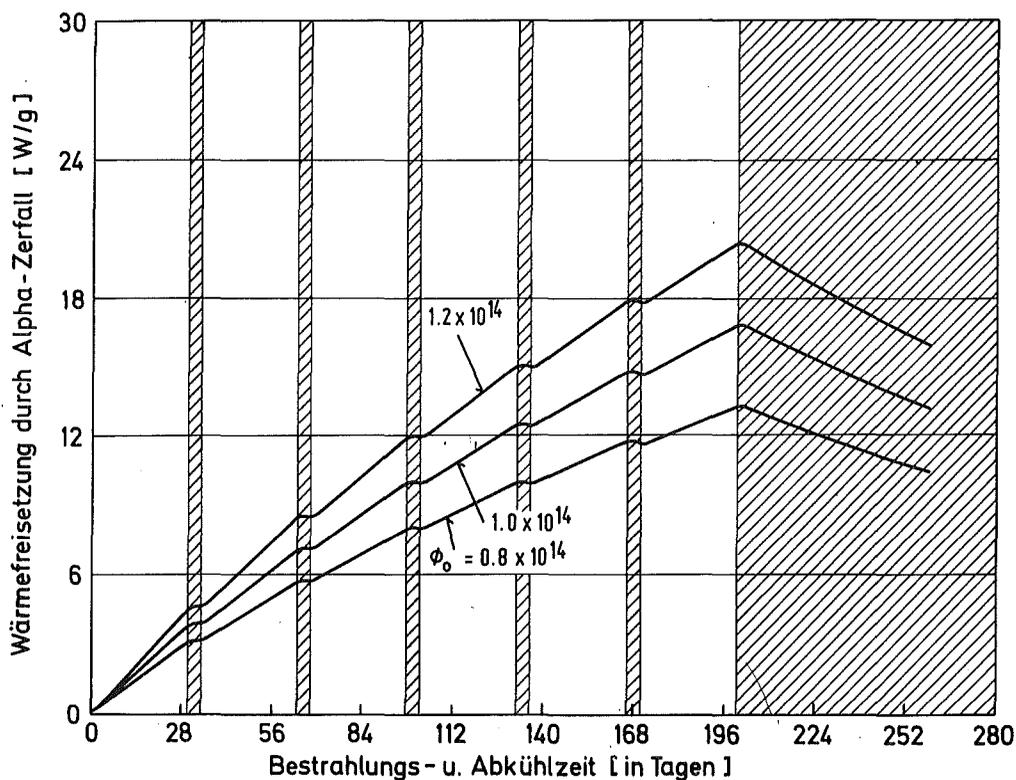


Abb. 3.8: Wärmeentwicklung durch α -Zerfall normiert auf 1g eingesetztes Am-241 als Funktion von Bestrahlungszeit und Neutronenfluß, Pellets mit 25 Gew.% AmO₂, ohne Liner

3.2.2.3 Temperaturprofil im Bestrahlungsstab bei maximaler Wärmefreisetzung

Entsprechend Abb. 3.9 müssen für die Ermittlung der Zentraltemperatur im Bestrahlungsstab 4 Temperaturdifferenzen ermittelt werden

- die Aufheizung des Kühlmittels im Wandbereich des Stabes (Δt_1)
- die Temperaturdifferenz in der Hüllrohrwand (Δt_2)
- die Temperaturdifferenz im He-gefüllten Spalt (Δt_3)
- die Temperaturdifferenz zwischen Pelletmitte und -außenseite (Δt_4).

Die Temperaturdifferenzen Δt_1 bis Δt_4 lassen sich nach den folgenden Formeln berechnen:

$$t_1 = \frac{S}{\pi d_{Ha} \alpha} \quad (^\circ\text{C})$$

$$t_2 = \frac{S}{2 \pi \lambda_H} \cdot \ln \frac{d_{Ha}}{d_{Hi}} \quad (^\circ\text{C})$$

$$t_3 = \frac{S}{2 \pi \lambda_{He}} \cdot \ln \frac{d_{Hi}}{d_p} \quad (^\circ\text{C})$$

$$t_4 = \frac{S}{4 \pi \lambda_p} \quad (^\circ\text{C})$$

wobei die verwendeten Größen die folgende Bedeutung haben:

S	Stableistung	(W/cm)
d_{Ha}	Außendurchmesser Hüllrohr	(cm)
d_{Hi}	Innendurchmesser Hüllrohr	(cm)
d_p	Pellet-Durchmesser	(cm)

α	Wärmeübergangszahl, Kühlmittel-Hüllrohr	$(W/cm^2 \text{ } ^\circ C)$
λ_H	Wärmeleitfähigkeit Hüllrohr	$(W/cm \text{ } ^\circ C)$
λ_{He}	Wärmeleitfähigkeit Spalt	$(W/cm \text{ } ^\circ C)$
λ_p	Wärmeleitfähigkeit Pellet	$(W/cm \text{ } ^\circ C)$

Die Zentraltemperatur T_z ergibt sich zu

$$T_z = T_o + \sum_{i=1}^4 \Delta t_i \quad (^\circ C)$$

mit T_o als Kühlmittelleinlaufstemperatur in die Bestrahlungsposition.

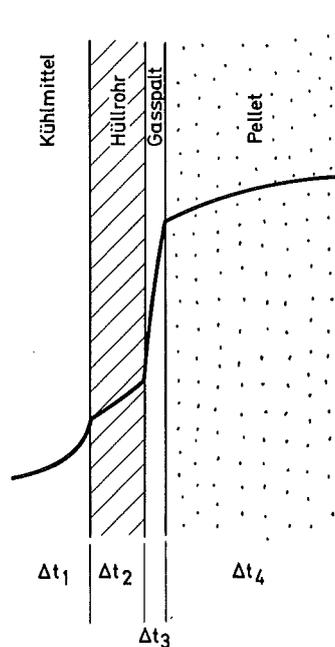


Abb. 3.9 : Erläuterung zur Bestimmung des Temperaturprofils im Bestrahlungsstab

Da aufgrund der Wärmeausdehnung des Bestrahlungsmaterials die Größen d_{Ha} , d_{Hi} und d_p jeweils eine Funktion der Temperatur sind und damit die reale Gasspaltbreite beeinflussen; lässt sich die Zentraltemperatur nur iterativ bestimmen.

Unter Verwendung der in Tab. 3.6 gegebenen Stoffkonstanten ergibt sich für die Stabtemperatur das in Abb. 3.10 dargestellte radiale Profil.

Tab. 3.6: Stoffkonstanten für die thermische Berechnung

Parameter	Wert
Wärmeübergangszahl Kühlmittel-Hüllrohr	$\alpha = 2.5 \text{ W/cm}^2 \text{ } ^\circ\text{C}$
Wärmeleitfähigkeit Hüllrohr	$\lambda_H = 0.146 \text{ W/cm } ^\circ\text{C}$
Wärmeleitfähigkeit Al-Hülse	$\lambda_{Al} = 2.22 \text{ W/cm } ^\circ\text{C}$
Wärmeleitfähigkeit Pellet	$\lambda_{Pe} = 0.8 \text{ W/cm } ^\circ\text{C}$
Wärmeleitfähigkeit Spalt-Hüllrohr	$\lambda_{He} = 1.49 \cdot 10^{-3} (1 + 1.74 \cdot 10^{-3})$
Ausdehnungskoeffizient Pellet	$\alpha_{Pe} = 22 \cdot 10^{-6} \text{ 1/}^\circ\text{C}$
Spez. Gewicht Hüllrohr	$\rho_H = 7.9 \text{ g/cm}^3$
Spez. Gewicht Pellet	$\rho_{Pe} = 2.34 \text{ g/cm}^3$

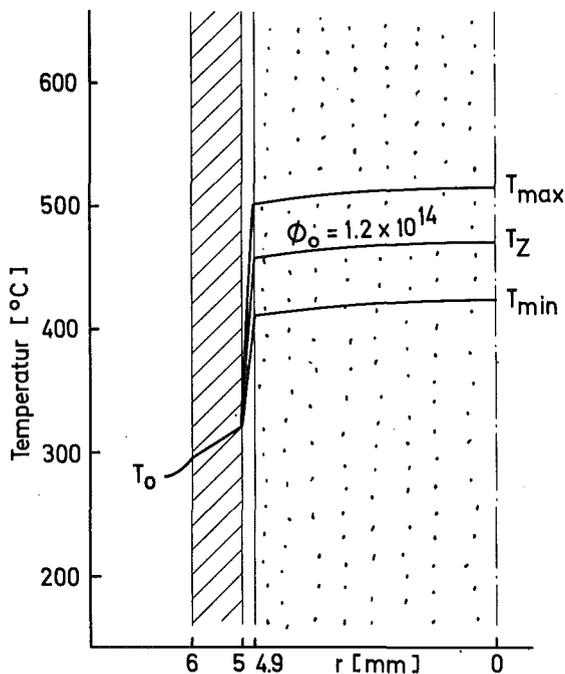


Abb. 3.10: Radiales Temperaturprofil für Bestrahlungsstäbe mit Am-241, Pellets mit 25 Gew.% Am-241, ohne Liner, $\phi_{ung.} = 1.2 \cdot 10^{14} \text{ n/sec.cm}^2$

3.3 Herstellung der Bestrahlungsstäbe und Bestrahlungsvorrichtungen

Die Überführung des Am-241 in eine bestrahlungsfähige Form, die dann auch den zum Teil sehr restriktiven Vorschriften für den Betrieb der vorgesehenen Reaktoren genügt, erfolgt in verschiedenen Stufen. Man muß hier unterscheiden zwischen den **B e s t r a h l u n g s s t ä b e n**, die das Am-241 gasdicht umhüllen, und den sonstigen **B e s t r a h l u n g s v o r r i c h t u n g e n**, die als Strukturmaterial letztlich nur der mechanischen, rückholbaren Fixierung der Bestrahlungsstäbe in der entsprechenden Bestrahlungsposition des Reaktors dienen. Die vollständig assemblierte Einheit, bestehend aus den Bestrahlungsstäben und verschiedenen Strukturmaterialien wird **B e s t r a h l u n g s e i n s a t z** genannt. Im folgenden werden die einzelnen Stufen der Herstellung der Bestrahlungseinsätze beschrieben.

3.3.1 Herstellung der Pellets

Entsprechend den Hinweisen der amerikanischen Literatur waren die Pellets zunächst so konzipiert, daß sie an ihren Außenflächen aus inaktivem Material bestanden, d.h. mit einer Aluminium-Hülse, dem sog. Liner, gekapselt waren. Den eigentlichen Kern des Pellets bildete Am-Oxid, das möglichst homogen mit Aluminiumpulver verdünnt wurde, um die für die Bestrahlung notwendige Dichte des Am-Oxids einzustellen.

Die Herstellung des Pellets erfolgte nach dem Fließschema entsprechend Abb. 3.11. Im späteren Verlauf der Arbeiten stellte sich heraus, daß der Liner entfallen konnte; die Pelletfertigung erfolgte dann nach dem entsprechend vereinfachten Fließschema gemäß Abb. 3.12.

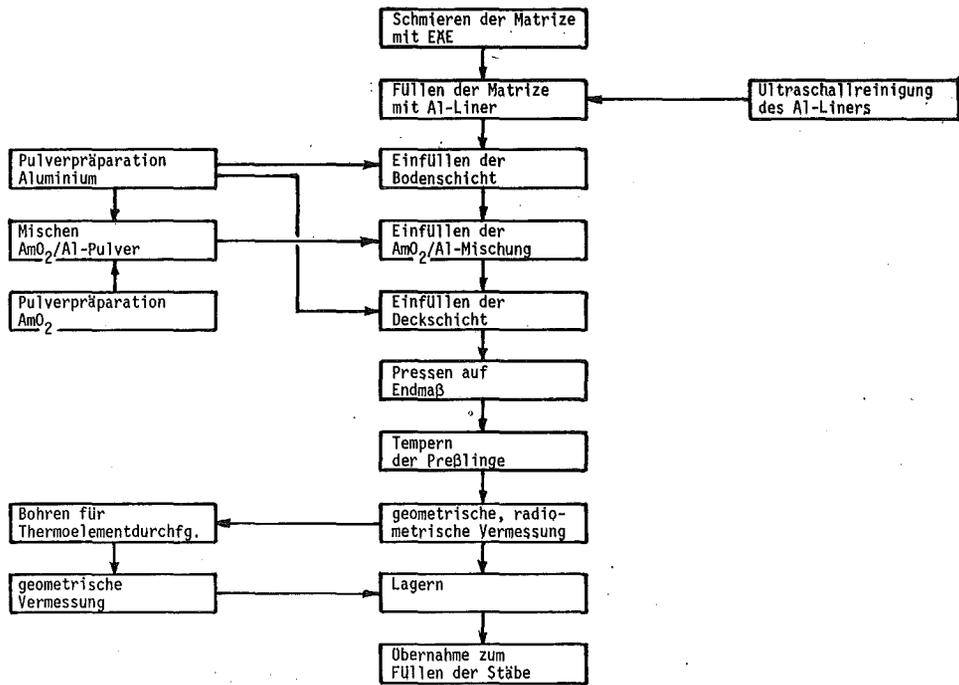


Abb. 3.11: Fließschema für Pelletfertigung, Pellets mit Liner
EAE: Essigsäureäthylester

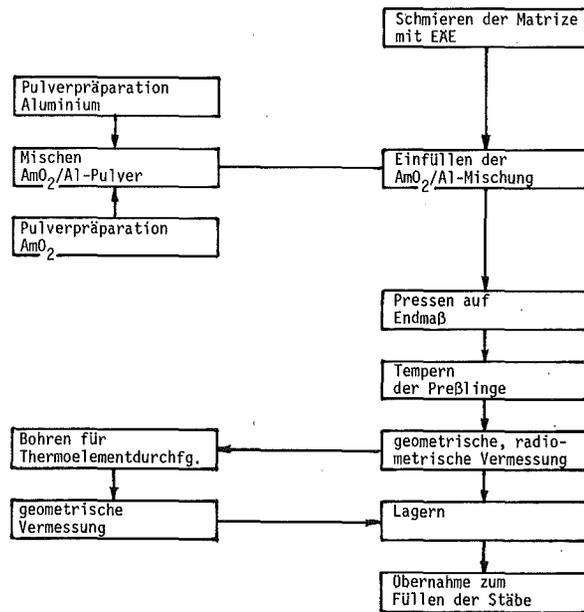


Abb. 3.12: Fließschema für Pelletfertigung, Pellets ohne Liner

Das AmO_2 -Pulver war bereits bezüglich seinem Körnungsgrad in einem Zustand, der ohne weitere Umstrukturierung verwendet werden konnte. Bewährt hat sich ein Pulver mit Korngrößen von 20-100 μm (vgl. Abb. 3.13). Pulver mit einem Kornanteil unter 20 μm neigt beim später folgenden Mischvorgang zu Ballungen, Pulver mit einem Kornanteil von über 100 μm neigt beim später folgenden Mischvorgang zu ständigem Entmischen bei allen Manipulationen, die ein Schütten des Pulvers notwendig machen.

Das AmO_2 -Pulver wurde nach dem Öffnen der Versandkapseln einige Stunden bei ca. 280°C unter ständiger Zufuhr von trockener Preßluft ausgeheizt und anschließend in einem Exsikkator bis zur Weiterverwendung gelagert.

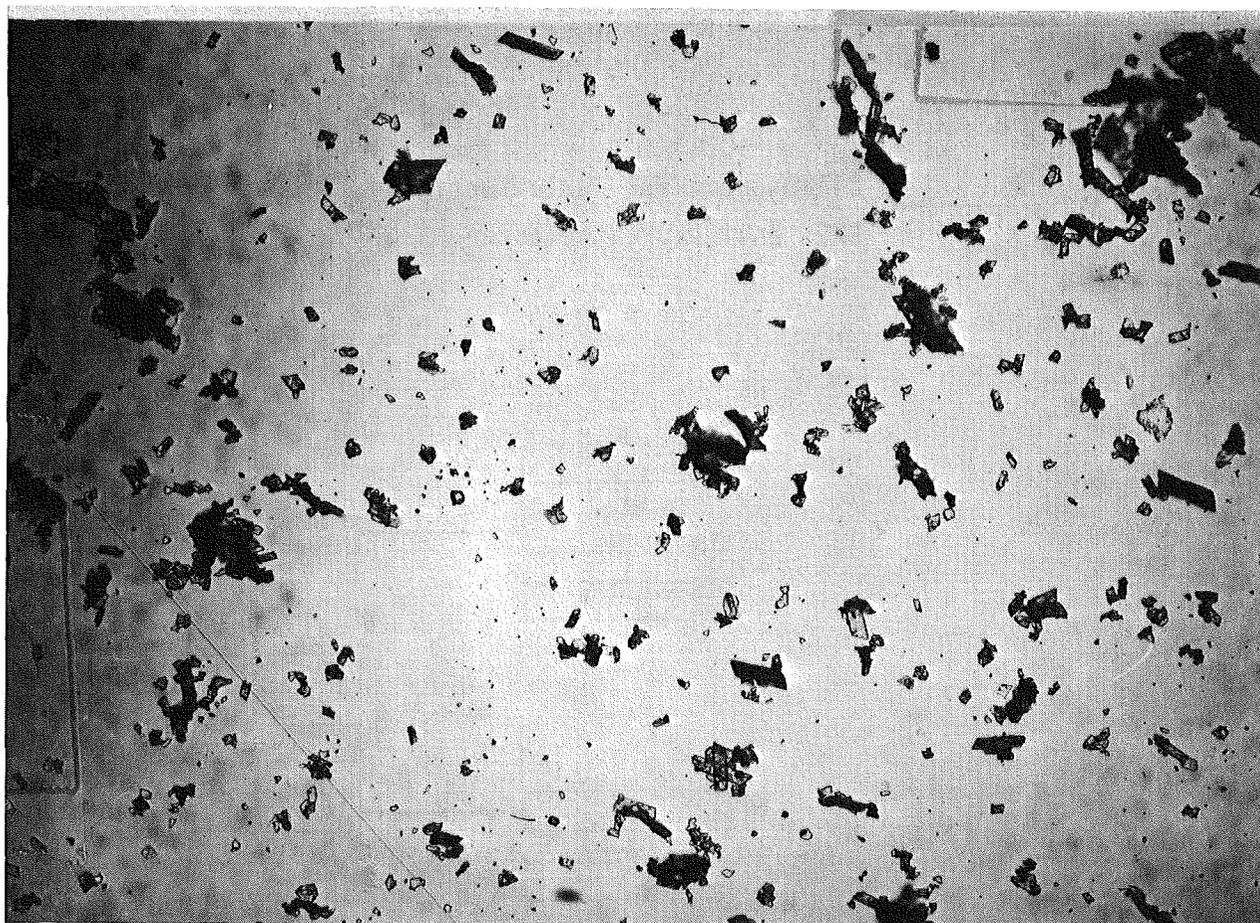


Abb. 3.13: Mikroskopische Aufnahme von AmO_2 -Pulver,
Vergrößerung ~ 500 -fach

In Vorversuchen zeigte sich; daß bezüglich der Korngrößenverteilung des Verdünnungsmittels (Al-Pulver) ebenfalls Pulver mit Korngrößen von 20-100 μm am besten geeignet war. Es wurde daher handelsübliches Aluminiumpulver durch Sieben entsprechend fraktioniert. Für die nach Abb. 3.11 notwendigen Deckschichten aus Aluminium wurde eine Pulverfraktion von 100-150 μm Korngröße gewählt. Dadurch konnte gewährleistet werden, daß diese Deckschichten an den Stirnseiten der Pellets eine höhere Porosität und somit erhöhte Gasdurchlässigkeit aufwiesen. Der Siebvorgang erfolgte unter Schutzgasatmosphäre, um eine weitergehende Oxidation der Oberflächen des Al-Pulvers zu verhindern und somit gleichmäßige Wärmeleitfähigkeit der Preßlinge zu erzielen.

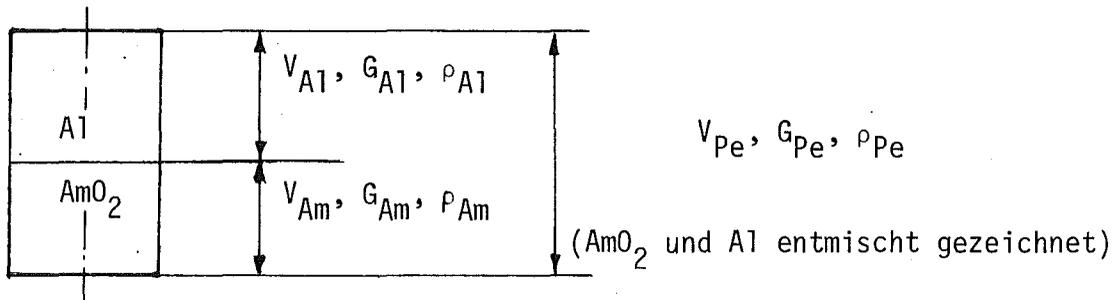
Bis zur Weiterverwendung wurde das vorbereitete Aluminiumpulver zum Schutz vor Feuchtigkeit im Exsikkator gelagert.

Da der Am-241-Gehalt pro Pellet sehr genau eingehalten werden mußte, konnte nicht in großer Charge das AmO_2 -Pulver mit dem Al-Pulver gemischt werden; es wurde nur jeweils die einem Pellet entsprechende Menge AmO_2 und Aluminium in ein Einwegglas eingewogen und darin gemischt. Je nach verwendeter Glasart und -größe mußte empirisch ein entsprechender Zuschlag ermittelt werden, der die Materialverluste durch an den Wänden haftende Pulverteilchen ausgleichen sollte. Dieser Zuschlag bewegte sich im allgemeinen im Bereich von 0.5 bis 1% und wurde durch Wägung und nachträgliche naßchemische Analyse des Am-Gehaltes an fertig gepreßten Pellets bestimmt.

Die Vielzahl der auszuführenden Wägungen mit AmO_2 brachte naturgemäß, trotz Arbeitens mit bleiverstärkten Gummihandschuhen, eine erhebliche Strahlenbelastung für Hände und Unterarme mit sich. Aus diesem Grund wurde im weiteren Verlauf der Arbeiten eine automatisch arbeitende Dosierwaage mit einstellbarer Gewichtsvorgabe in die Fertigungslinie eingebaut,

die es erlaubt, mit einer Toleranz von ± 1 mg das AmO_2 fernbedient zu portionieren.

Für vorgegebene Porosität, AmO_2 -Anteil und Pelletgeometrie lassen sich die abzuwägenden Mengen für die aktive Pelletzone folgendermaßen berechnen:



$$G_{\text{Pe}} = \rho_{\text{Pe}} \cdot V_{\text{Pe}} \quad (1)$$

$$G_{\text{Al}} = \rho_{\text{Al}} \cdot V_{\text{Al}} \quad (2)$$

$$G_{\text{Am}} = \rho_{\text{Am}} \cdot V_{\text{Am}} \quad (3)$$

$$G_{\text{Pe}} = G_{\text{Al}} + G_{\text{Am}} \quad (4)$$

$$V_{\text{Pe}} = V_{\text{Al}} + V_{\text{Am}} \quad (5)$$

$$G_{\text{Am}} = a \cdot G_{\text{Pe}} \quad (6)$$

wobei die einzelnen Größen jeweils die folgende Bedeutung haben:

- a Anteil des AmO_2 -Gewichts am gesamten Pelletgewicht ($G_{\text{Am}}/G_{\text{Pe}}$)
- V Volumen (cm^3)
- G Gewicht (g)
- ρ Dichte (g/cm^3)
- Pe Pellet
- Al Aluminium
- Am AmO_2

Mit der Beziehung

$$V_{Pe} = V_{Al} + V_{Am} \quad (7)$$

sowie der allgemeinen Beziehung

$$V = \frac{G}{\rho} \quad (8)$$

ergibt sich

$$\frac{G_{Pe}}{\rho_{Pe}} = \frac{G_{Al}}{\rho_{Al}} + \frac{G_{Am}}{\rho_{Am}} = \frac{(1-a)}{\rho_{Al}} \cdot G_{Pe} + \frac{a}{\rho_{Am}} \cdot G_{Pe} \quad (9)$$

$$\frac{1}{\rho_{Pe}} = \frac{1-a}{\rho_{Al}} + \frac{a}{\rho_{Am}} \quad (10)$$

$$\rho_{Pe} = \frac{\rho_{Al} \cdot \rho_{Am}}{a \cdot \rho_{Al} + (1-a) \cdot \rho_{Am}} \quad (11)$$

Mit $TD = 1 - P$, wobei P die gewünschte Porosität angibt, ergibt sich

$$\rho_{Pellet} = TD \cdot \frac{\rho_{Al} \cdot \rho_{Am}}{a \cdot \rho_{Al} + (1-a) \cdot \rho_{Am}} \quad (12)$$

Damit lassen sich die Einzelgewichte für AmO_2 bzw. Al folgendermaßen berechnen:

$$G_{Am} = a \cdot \rho_{Pe} \cdot V_{Pe} \quad (13)$$

$$G_{Al} = (1-a) \cdot \rho_{Pe} \cdot V_{Pe} \quad (14)$$

V_{Pe} läßt sich unschwer aus der vorgegebenen Zylindergeometrie errechnen.

Zum Mischen eignete sich am besten ein langsam laufender Walzenmischer, der die Gläser in axialer Richtung drehte. Durch

leichtes Schrägstellen des Mischers ergab sich auch ein guter Mischeffekt in axialer Richtung. Der Erfolg des Mischens wurde empirisch mittels zweier unterschiedlicher Methoden geprüft:

- a) Die fertig gepreßten Pellets wurden in Teile zersägt und anschließend über Wägung und naßchemische Analyse der Am-Gehalt bestimmt. Es zeigte sich, daß bei entsprechender Konstanz aller sensitiven Parameter, daß z.B. das Verhältnis der Am-Konzentration der oberen zur unteren Pelletthälfte nur maximal 2% Abweichung zeigte, wobei allein schon 1% Abweichung auf die systematische Ungenauigkeit der Meßmethodik zurückzuführen ist.
- b) Von den fertig gepreßten Pellets wurde mittels einer speziell gefertigten Ausgleichsform aus Edelstahl eine Röntgendurchstrahlungsaufnahme angefertigt. Mit dieser - nicht quantitativen - Methode konnten Inhomogenitäten der Mischung als unterschiedliche Schwärzungsgrade sichtbar gemacht werden (vgl. Abb. 3.14).

Die Pellets wurden in einer zylindrischen Matrize mit entsprechenden Ober- und Unterstempeln gepreßt. Das Radialmaß der Matrize wurde empirisch so bestimmt, daß nach Ausstoßen des gepreßten Pellets aus der Matrize und anschließendem Tempern bei Temperaturen um 450°C, was beides ein geringes radiales und axiales Wachsen des Pellets zur Folge hat, gerade das gewünschte Endmaß erreicht wurde. Die radiale Maßhaltigkeit war besser als ± 0.01 mm.

Zum Pressen wurde eine hydraulische Rahmenpresse mit einer maximalen Preßkraft von 15 t verwendet. Für den gewünschten Verdichtungsvorgang und der hier gewählten Geometrie war eine Preßkraft von 3,8 bis 4,0 t ausreichend. Da aufgrund von Reibungsverlusten und nicht genügend präziser hydraulischer Meßtechnik mittels Preßkraftvorwahl keine ausreichende

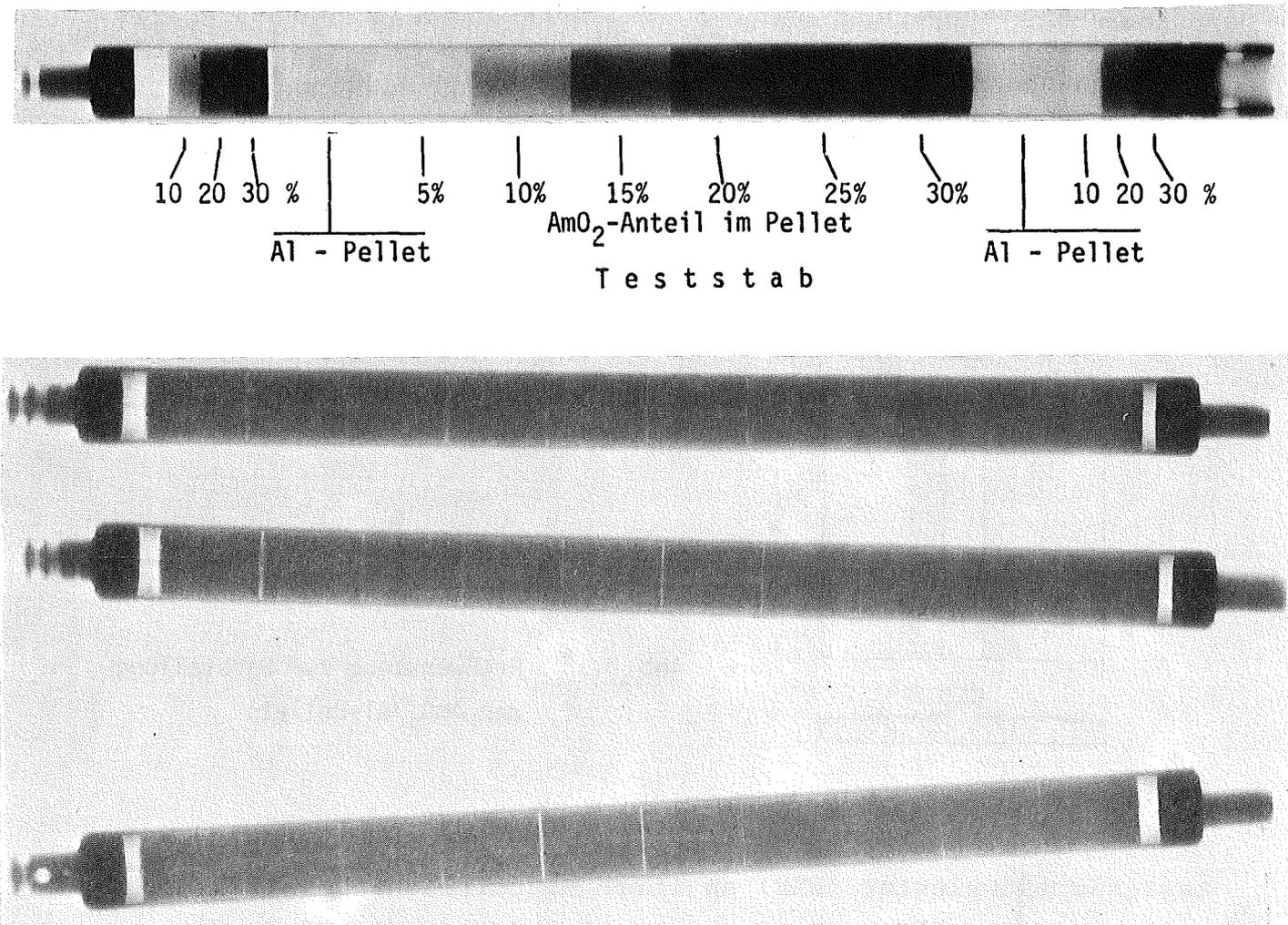


Abb. 3.14 : Röntgendurchstrahlungsaufnahme von AmO_2/Al -Pellets

Reproduzierbarkeit bezüglich der axialen Länge der Pellets erzielbar war, wurde schließlich mit Preßstempeln mit Längensschlag gearbeitet, so daß damit unabhängig von der Preßkraft, die Länge der Pellets nur noch von der Werkzeuggeometrie abhing. Auf diese Weise konnte die Pelletlänge nach Ausstoßen und Tempern innerhalb einer Toleranzbreite von ± 0.05 mm gehalten werden. Abb. 3.15 zeigt schematisch das verwendete Preßwerkzeug.

Aluminium neigt unter entsprechend hohem Druck wegen seiner hohen Schmierfähigkeit zum Kaltverschweißen mit anderen Metallen; um dieses Kaltverschweißen mit dem gehärteten Werkzeugstahl der Preßmatrize zu vermeiden, wurde diese vor jedem Preßvorgang mit einer Lösung von 3% Stearinsäure in

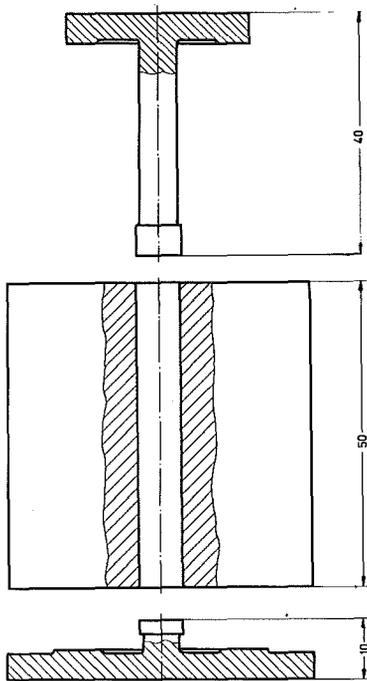


Abb. 3.15 : Preßwerkzeug zur Herstellung
der AmO_2/Al -Pellets

Essigsäureäthylester (EÄE) an ihrer Mantelfläche benetzt. Nach Verdunsten des EÄE haftete so ein hauchdünner Gleitfilm aus Stearinsäure an der Oberfläche der Matrize und verhinderte wirkungsvoll ein Kaltverschweißen des Pellets mit der Matrize. Der Stearinsäurefilm an der Oberfläche des Pellets ließ sich durch das später folgende Tempern wieder gut abdampfen. Mit dieser Methode wurden bessere Ergebnisse erzielt, als mit der in der Brennelementfertigung üblichen, nämlich Stearinsäure in pulverisierter Form bereits dem Preßgut als Gleitmittel zuzusetzen. Im Falle der Fertigung von Reaktor-Brennelementen verflüchtigt sich der Stearinsäurezusatz beim Sintern der Pellets aufgrund der dabei angewandten und dort möglichen hohen Temperaturen.

Im Falle der in der vorliegenden Arbeit verwendeten Pellets auf der Basis von Aluminium als Matrixmaterial durften beim Tempern nur Temperaturen bis ca. 500°C erreicht werden, um Geometrieänderungen der Pellets infolge beginnenden Aufschmelzens des

Aluminiums zu vermeiden. Wie sich hierbei empirisch herausstellte, reichten aber Temperaturen unter 500°C nicht aus, um als Gleitmittel zugemischte Stearinsäure wirkungsvoll aus den Pellets zu entfernen; es bestand vielmehr die Gefahr, daß die Pellets auch unter Bestrahlungsbedingungen zu gasen anfangen und dies einen unzulässigen Druckaufbau verursachen würde.

Für die anfänglichen Bestrahlungsexperimente wurden die Pellets in einem Arbeitsgang ganz mit inaktivem Material - Al-Liner am Pelletmantel bzw. verpreßtes Al-Pulver an den Stirnflächen - gekapselt. Dies wurde als wirkungsvolle Hilfe angesehen, um die Pellets später kontaminationsfrei in die vorbereiteten Hüllrohre einzufüllen. Im Verlauf der Versuchsreihen stellte sich aber heraus, daß auch ohne inaktiven Mantel gepreßte AmO_2 -Al-Pellets eine derart gute Oberflächenbeschaffenheit aufweisen, daß bei entsprechend sorgfältiger Einfülltechnik eine Kontamination der Hüllrohröffnung vermieden werden konnte.

Die Oberflächenbeschaffenheit der Pellets war nach dem Pressen - mit oder ohne Al-Liner - hochglänzend, was durch Vergleich mit geprüften Rohrstücken eine Rauhtiefe (RT) gemäß DIN 4726 von weniger als $15\ \mu\text{m}$ erwarten ließ.

Die Pellets wurden einzeln nach dem Pressen mit einem weichen Graphitstift an einer Stirnfläche gekennzeichnet, so daß damit eine eindeutige Zuordnung zu den Meßprotokollen als auch eine Kennzeichnung der Preßlage möglich war.

Die Al-Liner wurden mit Überlänge, dafür entsprechend reduzierter Wandstärke, aus Reinaluminium gefertigt, so daß ihre Gesamtlänge der Schütthöhe des einzufüllenden Pulvers entsprach. Nach dem Pressen waren diese Al-Hülsen insgesamt so gestaucht, daß eine weitgehend gleichmäßig starke Wandung aus Aluminium die Pellets umgab (Abb. 3.16).

Aus Gründen der besseren Volumenausnutzung sollte die Wandstärke des inaktiven Al-Liners möglichst gering sein. Empirisch wurde ermittelt, daß eine Wandstärke von 1 mm am fertigen Pellet die untere Grenze darstellt, um noch einwandfreies Fließen des Aluminiums während des Preßvorgangs zu gewährleisten. Bei dünneren Wandstärken besteht die Gefahr, daß sich der Al-Liner während des Pressens wie ein Metall-Faltenbalg faltet, was zu extremen axialen Inhomogenitäten des Am-Gehalts der Pellets führt.

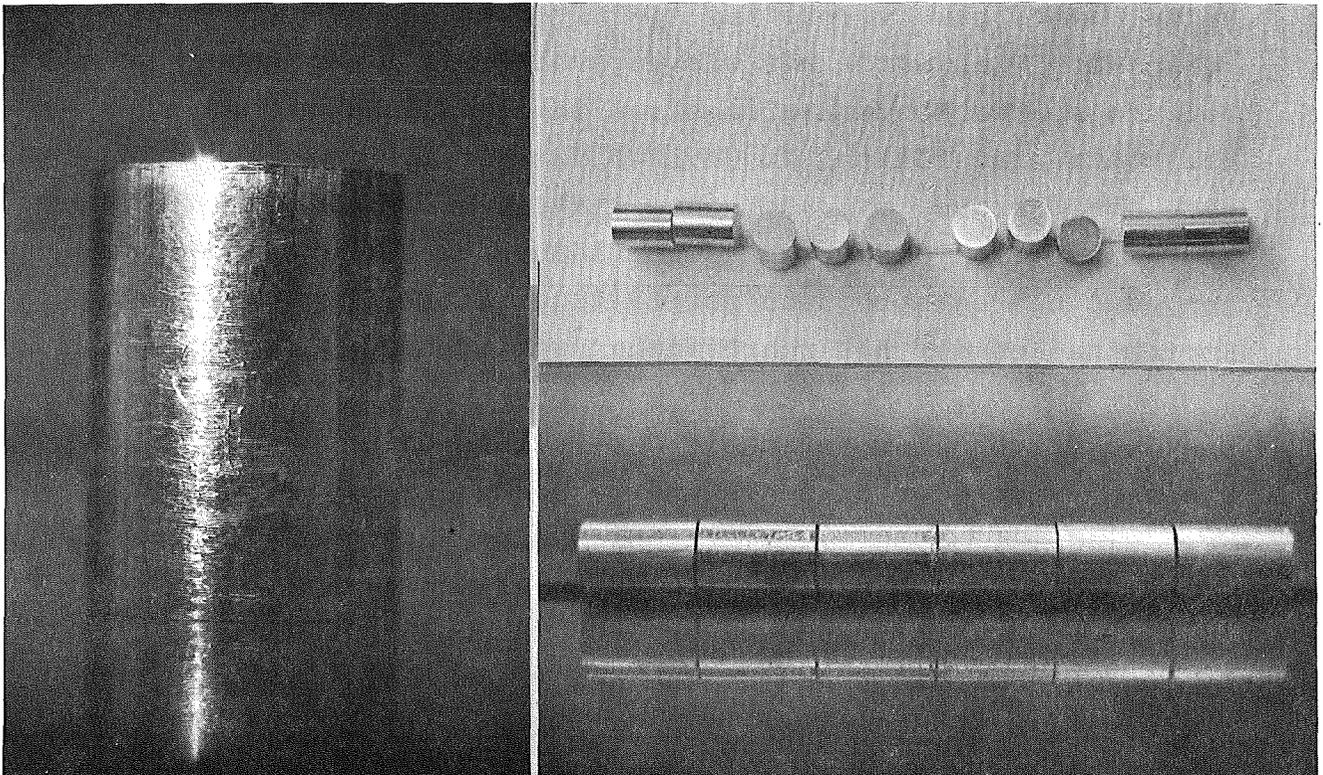


Abb. 3.16: AmO₂/Al-Pellets, mit und ohne Al-Liner

Nach dem Pressen wurden die Pellets in einem Rohrofen mit vorgewähltem Temperaturprogramm unter Schutzgasatmosphäre während 2 Stunden langsam auf 400°C erhitzt und über weitere 2 Stunden wieder auf Raumtemperatur abgekühlt. Dadurch verflüchtigten sich die an der Oberfläche anhaftenden Reste der Stearinsäure; gleichzeitig konnten sich im Pellet bestehende mechanische Spannungen abbauen, das Pellet erhielt durch

geringfügigen irreversiblen Volumenzuwachs seine endgültige Geometrie. Versuchsweises mehrmaliges Hochfahren der Temperatur änderte nichts mehr an der so erreichten Geometrie. Die Pellets wurden daher nach dem Tempern vermessen und gewogen, die Ergebnisse protokolliert. Die Ergebnisse lagen mit ganz wenigen Ausnahmen, die aber meist durch Fertigungsfehler, z.B. Bedienungsfehler der Presse oder Wägefehler, erklärbar waren, in den weiter oben bereits genannten Toleranzgrenzen.

Von allen gefertigten Pellets wurden anschließend Röntgendurchstrahlungsaufnahmen angefertigt (vgl. Abb. 3.14, S. 83), einzelne stichprobenweise entnommene Pellets wurden naßchemisch auf ihren Am-Gehalt analysiert.

Soweit die Pellets für Stäbe mit Temperaturinnenmessung während der Bestrahlung vorgesehen waren, wurden diese Pellets mit einer zentralen Bohrung versehen (vgl. Abb. 3.1, S. 59) und anschließend nochmals vermessen, um ggfs. zwischenzeitlich eingetretene Beschädigungen feststellen zu können.

Die Pellets wurden daraufhin - bereits zu fertigen Stablängen vorsortiert - an die Handschuh-Box zum Füllen der Stäbe übergeben.

3.3.2 Füllen der Bestrahlungsstäbe

Am-241 ist ein α -Strahler mit einer spezifischen Aktivität von 3,4 Ci/g und somit geeignet, bereits in Spuren vorkommend, Oberflächen meßbar zu kontaminieren. Es muß hier beachtet werden, daß sich während der Bestrahlung aufgrund der Konversionsraten des Am-241 zu Cm-242 und der Halbwertszeitenverhältnisse diese primär anhaftende Aktivität sich um etwa den Faktor 200 vergrößert.

Die Bestrahlungsstäbe wurden im Falle des BR-2 direkt in dem Primärkreislauf des Reaktors, im Falle des HFR in einem vom Primärkreislauf getrennt betriebenen Kühlkreislauf (HD-Loop) bestrahlt, mußten aber während der Be- und Entladephase auch im HFR durch das Primärkreislaufsystem des Reaktors geführt werden; es war daher eine strikte Auflage der Reaktorbetreiber, daß nach der Fertigung der Bestrahlungsstäbe keine meßbare α -Aktivität an deren Oberfläche nachweisbar sein dürfte.

Da das Konzept der Stabherstellung andererseits darauf aufbaut, nur eine einzige Umhüllung für das Bestrahlungsmaterial zu verwenden (vgl. Abb. 3.1, S. 59) und somit nicht die sonst bei der Verpackung von radioaktivem Material übliche Methode ermöglicht, durch mehrfaches Einhüllen den Kontaminationsgrad schrittweise zu erniedrigen, mußte hier ein Konzept entwickelt werden, mit dessen Hilfe die vorgefertigten Hüllrohre ohne Kontamination der Rohrstirnfläche bzw. des Rohraußenmantels trotz der an den Pellets anhaftenden Aktivität mit diesen zu beschicken. Hierfür wurde eine Anordnung gemäß Abb. 3.17 entwickelt, die sich im Betrieb bestens bewährte.

Der Kern dieser Anordnung ist ein kurzes aus Edelstahl sehr präzise gefertigtes Rohrstück - Mundstück genannt -, das auf das Hüllrohr aufgesetzt wird; die Fertigungstoleranzen dieses Rohrstückes wurden so gewählt, daß sein Innendurchmesser geringfügig kleiner ist als der Innendurchmesser des Hüllrohres, so daß beim Durchschieben der Pellets, kein Abrieb an der Innenkante der Hüllrohrstirnfläche entstehen kann.

Die bei den ersten Stäben vorgesehenen Al-Liner, die die einzelnen Pellets radial umgaben, sollten zusätzlich gewährleisten, daß trotz der oben beschriebenen Vorrichtung nicht schon beim Durchschieben der Pellets an den Mantelseiten der Pellets Abrieb von radioaktivem Material entstehen könnte, der sich dann in dem unvermeidbaren Spalt zwischen Mundstück und

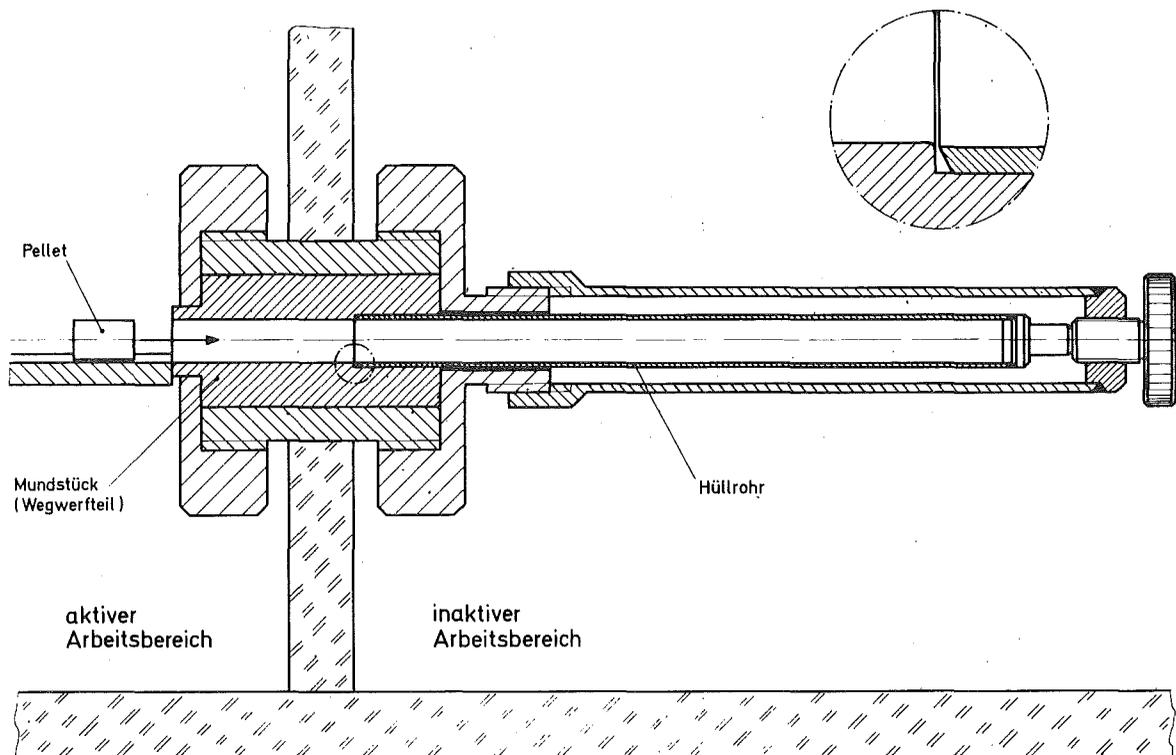


Abb. 3.17: Beschickungsvorrichtung zum Füllen der Bestrahlungsstäbe

Hüllrohrstirnfläche (vgl. Abb. 3.17) absetzen und so diese Stirnfläche kontaminieren könnte. Wie später folgende Versuche zeigten, war die Mantelfläche von nur aus Pulver (ohne Al-Liner) gepreßten Pellets ausreichend glatt und abriebfest, daß durch die beim Füllen der Hüllrohre auftretende mechanische Beanspruchung keine Kontamination in den kritischen Hüllrohrbereichen auftrat. Aus diesem Grund konnte, wie weiter oben schon erwähnt, für spätere Bestrahlungen zu Gunsten einer besseren Volumenausnutzung der Bestrahlungsstäbe auf die Verwendung von Al-Linern verzichtet werden.

Die Mundstücke wurden jeweils nur einmal verwendet, nach jedem Füllvorgang in das Innere der Handschuh-Box gezogen und anschließend als radioaktiver Abfall ausgeschleust und verworfen. Ein neues Mundstück wurde jeweils zu Beginn eines

neuen Füllvorganges von der inaktiven Seite der Füllbox her in die Vorrichtung wieder eingesetzt. Durch entsprechende Unterdruckhaltung im radioaktiven Teil der Füllbox konnte erreicht werden, daß während der Phasen, während derer die Durchführung nicht verschlossen sein konnte, eine ständige Luftströmung von der inaktiven zur aktiven Seite vorherrschte, so daß keine Radioaktivität verschleppt werden konnte.

Bei entsprechend sorgfältigen Manipulationen bei diesem kritischsten Schritt des Herstellungsprozesses der Bestrahlungsstäbe, war es möglich, über den gesamten Zeitraum (mehr als 1 1/2 Jahre) der Herstellung von Bestrahlungsstäben, wobei insgesamt 42 Bestrahlungsstäbe mit zusammen über 115 g Am-241 gefertigt wurden, sowohl stets kontaminationsfreie Hüllrohre auszuschleusen, als auch den als inaktiv vorgesehenen Teil der Füllbox tatsächlich kontaminationsfrei zu halten.

Die Hüllrohre der Stäbe, die zur Messung der Zentraltemperatur während der Bestrahlung mit einem Thermoelement ausgerüstet waren, wurden vor dem Einsetzen in die Füllvorrichtung mit einem dünnen Hilfsröhrchen ausgerüstet, das über das bis etwa Stabmitte reichende Thermoelement geschoben wurde und dann ausreichend weit über das offene Ende des Hüllrohres hinausreichte. Dadurch konnten die durchbohrten Pellets zunächst auf dieses Hilfsröhrchen aufgefädelt und dann in das Hüllrohr geschoben werden. Das Hilfsröhrchen wurde dann abgezogen und der Stab mit den noch fehlenden vier nicht durchbohrten Pellets gefüllt.

Die gefüllten Stäbe wurden nach diesem Vorgang mit einem provisorischen Stopfen verschlossen und unmittelbar an die Handschuh-Boxen, die die Schweißvorrichtungen enthielten, übergeben.

3.3.3 Schweißen der Bestrahlungsstäbe

Die Bestrahlungsstäbe mußten zum Einsatz in den Reaktor gasdicht verschweißt werden, die Schweißung wiederum bestimmten, vom Reaktorbetreiber vorgeschriebenen Qualitätskriterien genügen. Die Qualität der erzielbaren Schweißungen mußte deshalb vor Aufnahme der Bestrahlungen durch ein umfangreiches Prüfprogramm nachgewiesen werden. Hierzu wurde durch zerstörende und zerstörungsfreie Prüfungen der Nachweis erbracht daß die Schweißung über die volle Wandstärke des Hüllrohres erfolgte, und daß die Schweißzone lunkerfrei (ohne Poren) und ohne Einschlüsse war. Es mußte ferner nachgewiesen werden, daß im Falle von Lunkern oder Einschlüssen die zerstörungsfreie Prüfung (Röntgendurchstrahlung) in der Lage war, solche Schadstellen aufzuzeigen, wenn sie 1/10 der Wandstärke überschritten. Es wurde ferner der Nachweis gefordert, daß die Schweißungen reproduzierbar durchgeführt werden konnten.

Dies alles erforderte ein umfangreiches Testprogramm, durch das die einstellbaren Parameter für den Schweißvorgang ermittelt werden konnten.

Die Schweißungen selbst erfolgten als Lichtbogenschweißung in Helium-Atmosphäre, wobei durch Drehung des Stabes der Lichtbogen über den Umfang des Hüllrohres geführt wurde. Die anzuwendende Stromstärke konnte durch ein auf Lochkarte kodierte Programm automatisch gesteuert werden; die Drehzahl des Stabes, d.h. die Wanderungsgeschwindigkeit des Lichtbogens am Stabumfang, sowie die Zeitabhängigkeit der Stromstärke des Lichtbogens beeinflußt in besonderem Maße die Qualität der Schweißung. Abb. 3.18 zeigt einige Beispiele von erfolgten Schweißungen sowie von metallographischen Schliffen aus dem Schweißnahtbereich.

Vor dem Schweißen wurden die Stäbe nach Übernahme aus der Füllstation in einer speziellen Kammer durch mehrfaches Evakuieren und Fluten mit Helium gefüllt und noch in dieser Kammer durch Aufpressen mit dem Originalstopfen verschlossen und dann unmittelbar in die Schweißkammer weitergereicht und verschweißt. Durch geringfügige Drucküberhöhung gegenüber Außendruck und gute Passung des Stopfenaußendurchmessers im Verhältnis zum Hüllrohrinnendurchmesser konnte sichergestellt werden, daß während der kurzen Manipulationszeit zwischen Füllen mit Helium und Schweißen des Stabes die Helium-Atmosphäre in den Hohlräumen des Stabes in reiner Form erhalten blieb.

3.3.4 Assemblieren der Bestrahlungseinsätze

Die Bestrahlungseinsätze bestanden jeweils aus einem Bündel von 9 Bestrahlungsstäben, die zu je 3 Stück parallel in einer Ebene in 3 Ebenen übereinander angeordnet wurden. Aus transport-technischen Gründen (vgl. Kap. 3.5) wurden die Bestrahlungseinsätze noch in zerlegter Form transportiert und erst in den Reaktorbetriebsräumen assembliert. Dabei erfolgte auch die Endabnahme der Bestrahlungsstäbe und Prüfung aller Fertigungsprotokolle durch den Reaktorbetreiber mit anschließender Freigabe zur Bestrahlung. Abb. 3.19 zeigt einen komplett assemblierten Bestrahlungseinsatz.

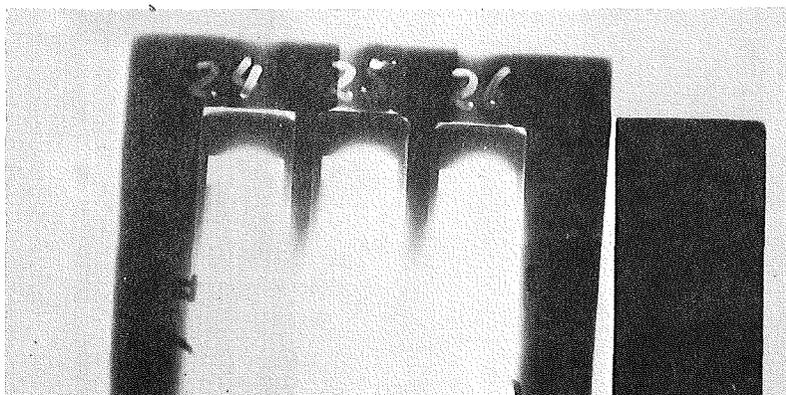
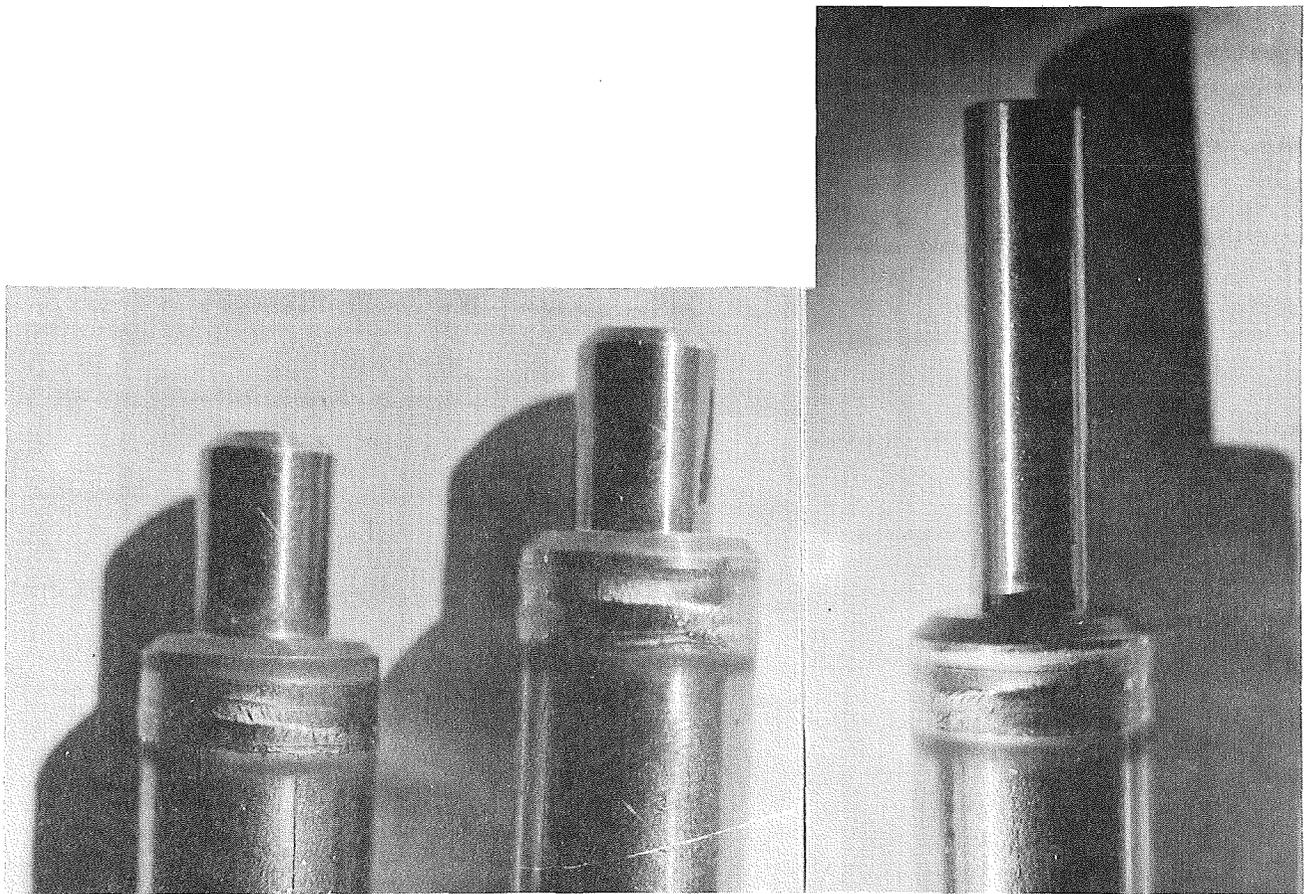


Abb. 3.18: Schweißnahtuntersuchungen an Am-241-Bestrahlungsstäben, Außenansicht und Röntgendurchstrahlung

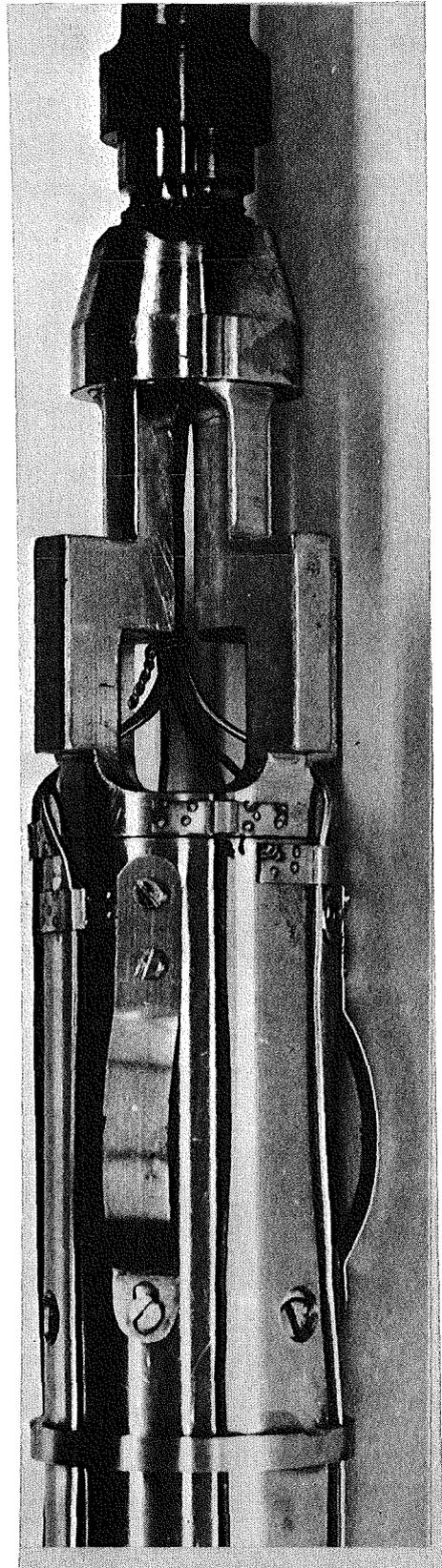
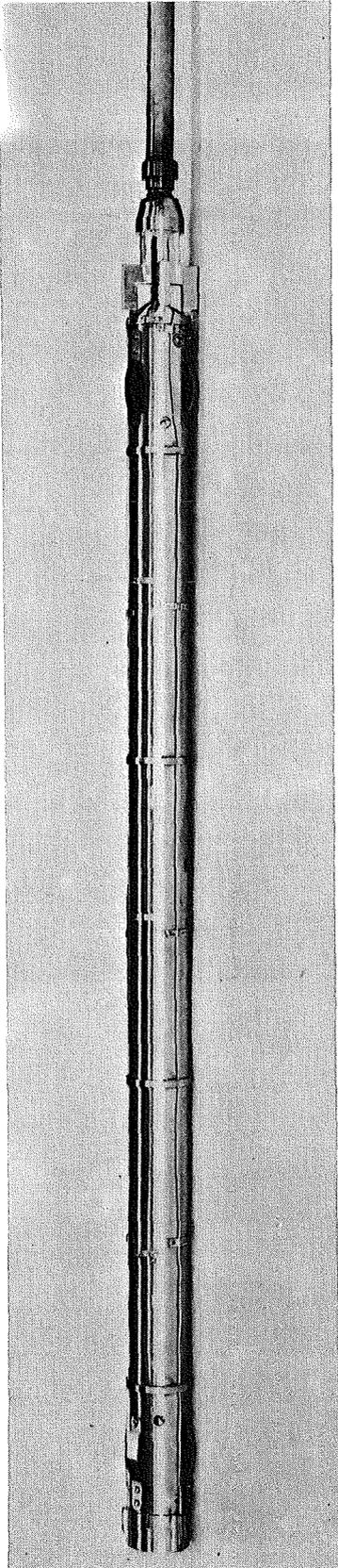


Abb. 3.19: Assemblierter Bestrahlungseinsatz, Experiment HFR-3

3.4 Ablauf der Bestrahlungen

Insgesamt wurden 6 Bestrahlungsexperimente durchgeführt, davon 4 Bestrahlungen im HFR/Petten (Holland) und 2 Bestrahlungen im BR2/Mol (Belgien), vgl. Tab. 3.3, S. 62/63.

Die Bestrahlungen im HFR erfolgten in einer Loop-Position, in der durch Druck- und Temperaturerhöhung des Kühlmittels Leistungsreaktorbedingungen simuliert werden konnten (Abb. 3.20, S. 97). Die Bestrahlungseinsätze des HFR waren teilweise mit instrumentierten Bestrahlungsstäben zur Messung der Zentraltemperatur während der Bestrahlung ausgerüstet. Die Meßstellen dieser Thermoelemente waren so positioniert, daß sie im axialen Maximum des Neutronenflusses die auftretenden Maximaltemperaturen erfassen konnten. Den zeitlichen Verlauf dieser Temperaturmessungen geben die Abb. 3.21 bis 3.23, S. 98 bis 100, wieder.

Im Vergleich zu den vorangegangenen Berechnungen sind gewisse Abweichungen festzustellen, die durch verschiedene Ursachen erklärt werden können. So ist z.B. die Geometrie der Bestrahlungsstäbe unter Bestrahlungsbedingungen nicht so stabil bzw. achsensymmetrisch wie für die Berechnungen angenommen wurde. Es werden sich auch - bedingt durch die betriebsmäßige Wechsellast des Reaktors - die Ringspaltdimensionen nicht in der im Rechenmodell ausschließlich durch Wärmedehnung angenommenen Weise verändern, sondern es kann vielmehr angenommen werden, daß es durch temperaturbedingte Gefügeänderungen im Pellet partiell zu einem ständigen Anliegen von einzelnen Pellets während der gesamten Bestrahlungsdauer kommt. Damit ist insbesondere ein nach wenigen Tagen Bestrahlungsdauer beobachtbarer Rückgang der Zentraltemperatur erklärbar.

Neben diesen Phänomenen, die im Grunde geeignet sind, die Zentraltemperatur gegenüber der Rechnung zu erniedrigen, kamen

auch Temperaturexkursionen nach oben vor, die - sofern Fehler in der Meßsonde ausgeschlossen werden können - dadurch erklärbar sind, daß sich aus der Innenwandung der Bohrung, die das Thermoelement aufnimmt, Am-Oxid-Körnchen herauslösen, die sich dann mit schlechtem Wärmeübergang nach außen zwischen Thermoelement und Bohrung festsetzen. Das Herauslösen von Am-Oxid-Körnchen aus der Innenwandung der Bohrungen durch die Pelletmitte ist deshalb leicht möglich, da diese Bohrungen erst nachträglich nach abgeschlossenem Preßvorgang mit einem Spiralbohrer angefertigt wurden, was naturgemäß zu rauher Oberfläche mit lose anhaftenden Pulverteilchen führte. In derartig isoliert liegenden AmO_2 -Körnern von einigen $10 \mu\text{m}$ Korngröße können sich leicht Temperaturen von über 1000°C einstellen. Aufgrund der geringen Wärmekapazität der Thermo-elementmeßstelle können hierdurch Temperaturfehlmessungen im Zentrum der Stäbe vorkommen. Die später nach Abschluß der Bestrahlungen erfolgten zerstörenden Nachuntersuchungen (vgl. Kap. 4) brachten jedoch keine Anhaltspunkte dafür, daß an irgendeiner Stelle der Bestrahlungsstäbe Temperaturen aufgetreten wären, die über dem Schmelzpunkt von Aluminium lagen.

Es kann festgestellt werden, daß die Temperaturmessungen die vorher durchgeführten Rechnungen, wenn auch nicht im Detail, so doch in ihrer Tendenz über die Bestrahlungszeit hinweg sowohl in der Größenordnung als auch nach ihrem zeitlichen Verlauf mit Abweichungen von ca. $\pm 20\%$ bestätigten. Eine Verfeinerung dieser Meßtechnik würde eine erhebliche Vermehrung des getriebenen technischen Aufwandes nach sich ziehen, ohne über das Erreichte hinaus zu wesentlich neuen Erkenntnissen zu führen.

Die Bestrahlungen im BR-2/Mol wurden ohne instrumentierte Stäbe durchgeführt; sie verliefen ohne erkennbare Störungen. Aussagen über den Temperaturverlauf im Stabinneren während der Bestrahlungszeit sind jedoch nicht möglich.

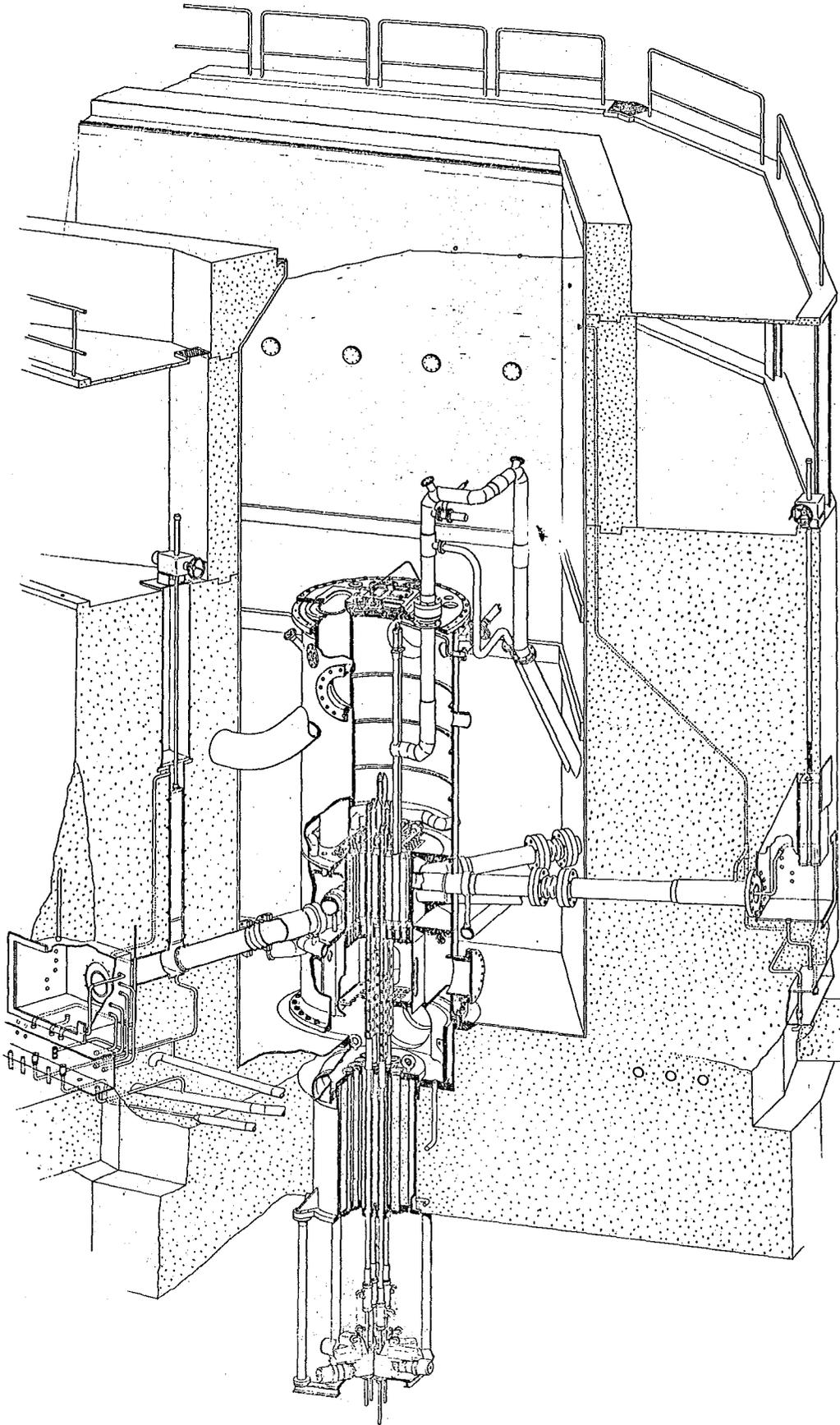


Abb. 3.20: Darstellung der Bestrahlungsposition im HFR/Petten

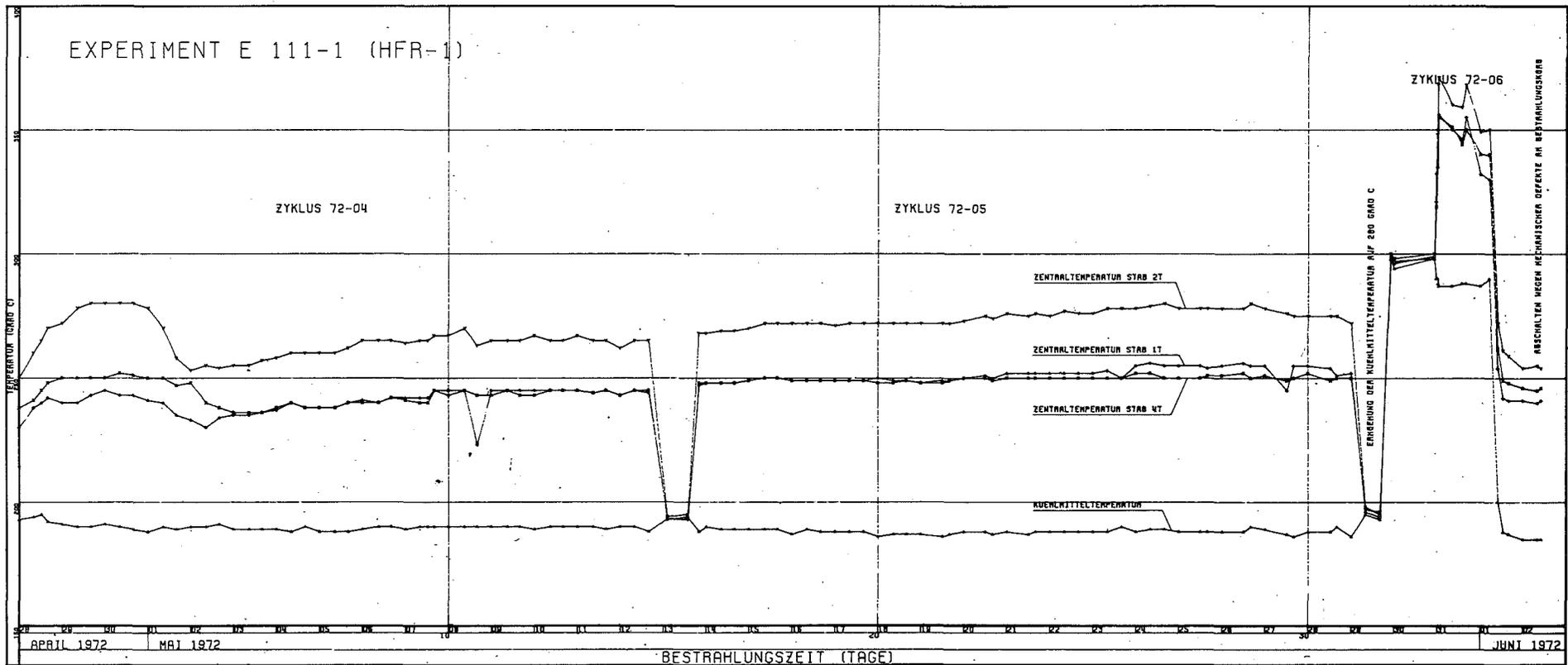


Abb. 3.21: Temperaturverlauf an den Meßstellen des Experiments HFR-1

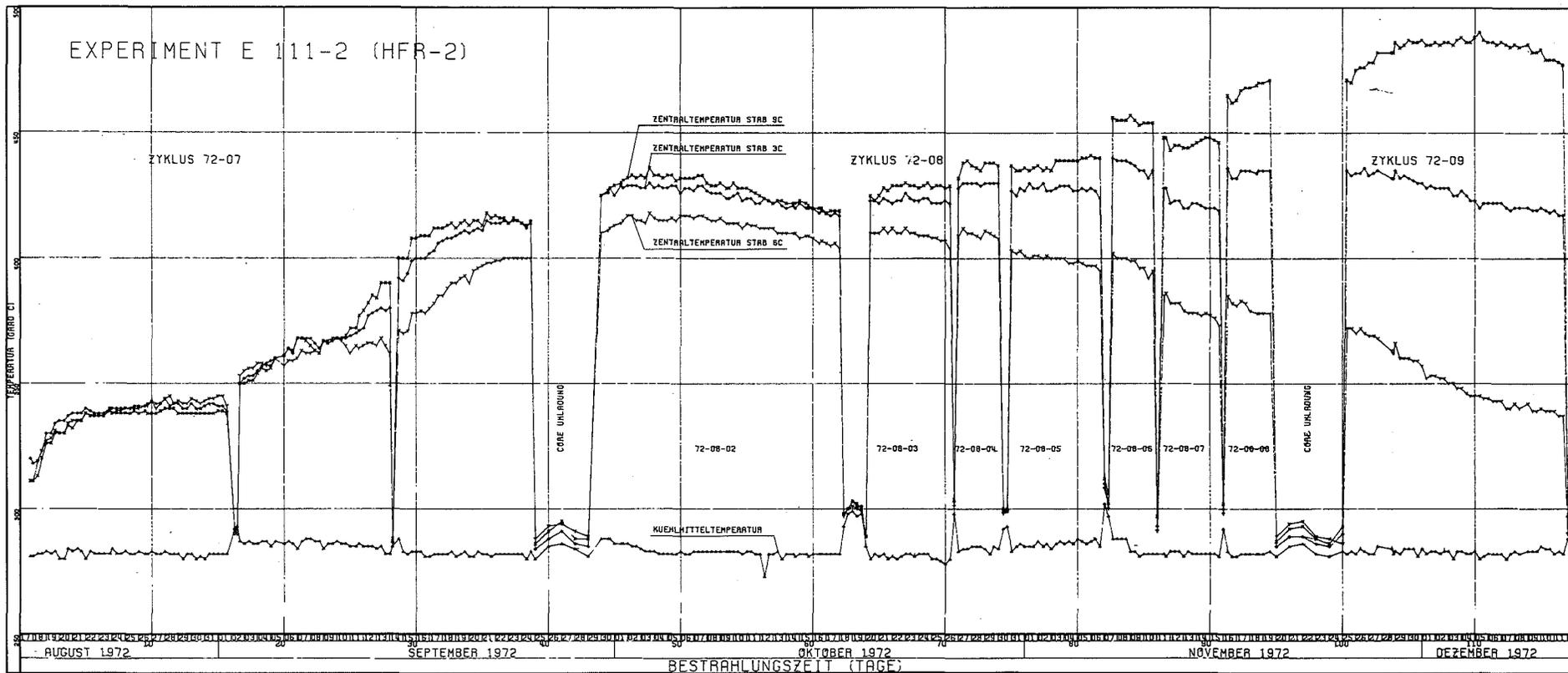


Abb. 3.22: Temperaturverlauf an den Meßstellen des Experiments HFR-2

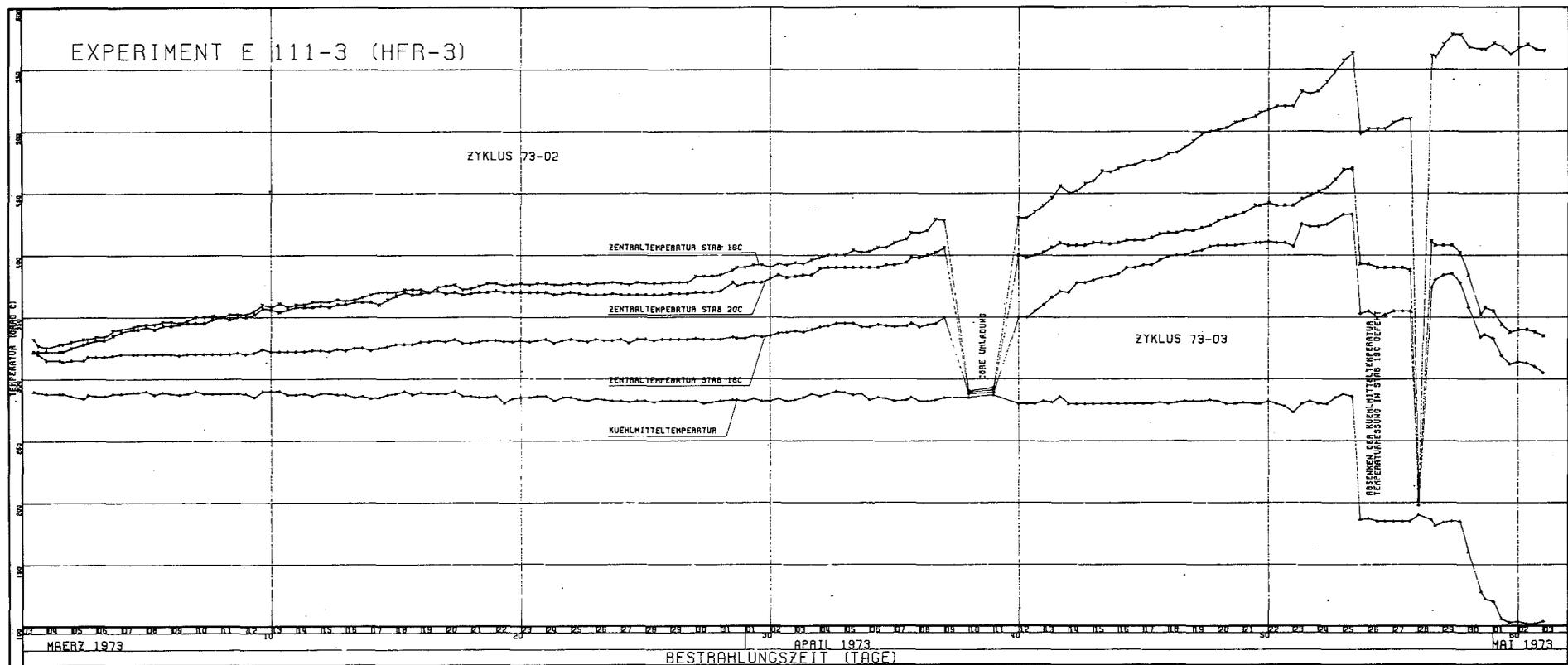


Abb. 3.23: Temperaturverlauf an den Meßstellen des Experiments HFR-3

Sowohl im BR-2 als auch HFR wurde während der gesamten Bestrahlungszeit der Kühlkreislauf durch Probennahme auf α -Aktivität bzw. Anstieg der - aus den Brennelementen des Reaktors stets geringfügig vorhandenen - Spaltproduktaktivität überwacht; im Falle von Hüllrohrschäden an den Bestrahlungsstäben, die - wie aus /36/ bekannt - am Aktivitätsanstieg im Kühlkreislauf frühzeitig erkennbar sind, wäre somit ein rechtzeitiges Entladen der Bestrahlungseinsätze möglich geworden. Derartige Zwischenfälle traten jedoch nicht ein, was die Richtigkeit des ausgewählten Konzepts sowie die Qualität der Stabfertigung bestätigte.

3.5 Transporte von unbestrahlten und bestrahlten Stäben

Die Transporte der unbestrahlten Stäbe wurden in eigener Regie durchgeführt. Gemäß den geltenden Beförderungsvorschriften für den Transport gefährlicher Güter auf der Schiene /57/ fällt Am-241 in die Stoffklasse IVb (radioaktive Stoffe) und muß hiernach, als Nuklid der Gruppe I, bei Überschreiten der Aktivitätsgrenze von 1 mCi in einer Typ-B-Verpackung transportiert werden, wobei hierfür gemäß /57/ (Rn 454, Ziffer 16) als obere Aktivitätsgrenze 20 Ci gelten. Der Transport erfolgte in einer Anordnung, die in Abb. 3.24 schematisch dargestellt ist. Für diese Anordnung mußte eine Bauartgenehmigung bei der Bundesanstalt für Materialforschung (BAM, Berlin) eingeholt werden, die nach erfolgreichem Abschluß der in /57/ (Rn 1641-1652) vorgeschriebenen Prüfungen erfolgte.

Die Transporte der bestrahlten Stäbe unterlagen als radioaktive Großquellen speziellen Auflagen und erforderten entsprechende Abschirmmaßnahmen zur Einhaltung der vorgeschriebenen Höchstdosisleistungen während des Transports und damit entsprechend dimensionierte Transportbehälter, so daß die Durchführung dieser Transporte als Auftrag an ein Transportunternehmen

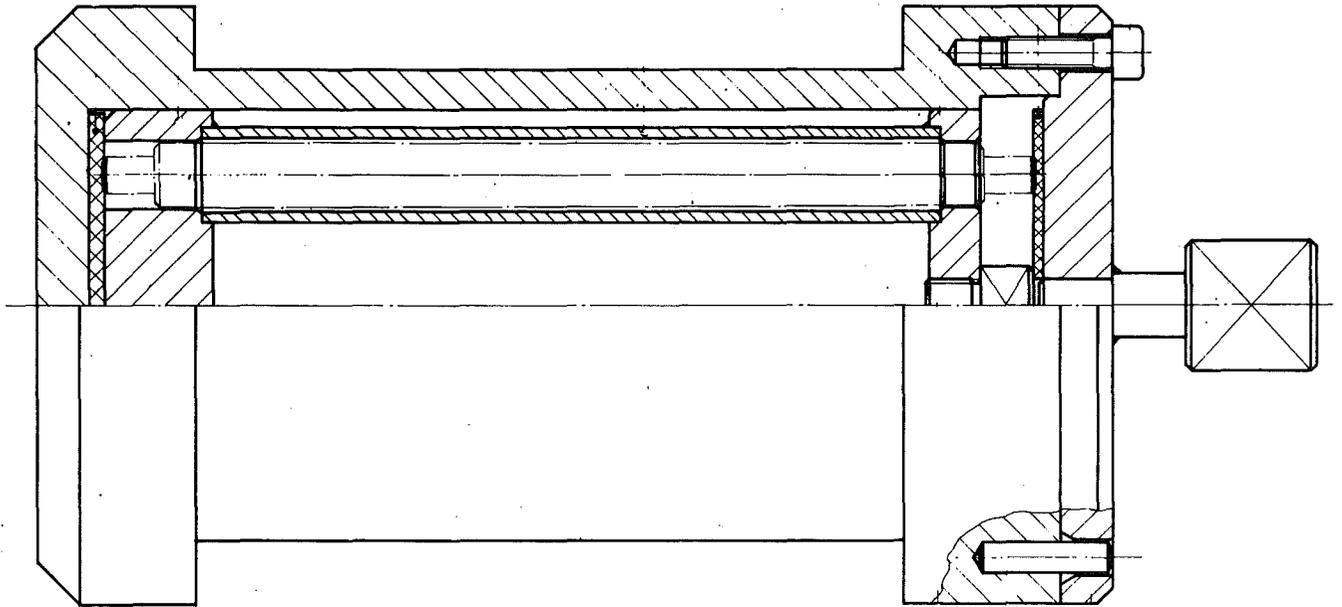


Abb. 3.24: Schematische Darstellung der Anordnung zum Transport der unbestrahlten Stäbe

vergeben wurde. Für den Rücktransport der bestrahlten Stäbe mußte sichergestellt sein, daß die in den Stäben entstehende Zerfallswärme von bis zu 1 kW so abgeführt wird, daß die Zentraltemperatur in den Stäben nicht über die während der Bestrahlung erreichten Zentraltemperatur anstieg. Die aus dem Reaktor entladene Bestrahlungseinsätze wurden daher zunächst in eine mit Wasser gefüllte Druckkapsel geladen, die dann ihrerseits wegen ihrer guten mechanischen Passung gegenüber dem Beladeraum des Transportbehälters eine ausreichende Wärmeabfuhr ermöglichte (vgl. Abb. 3.25).

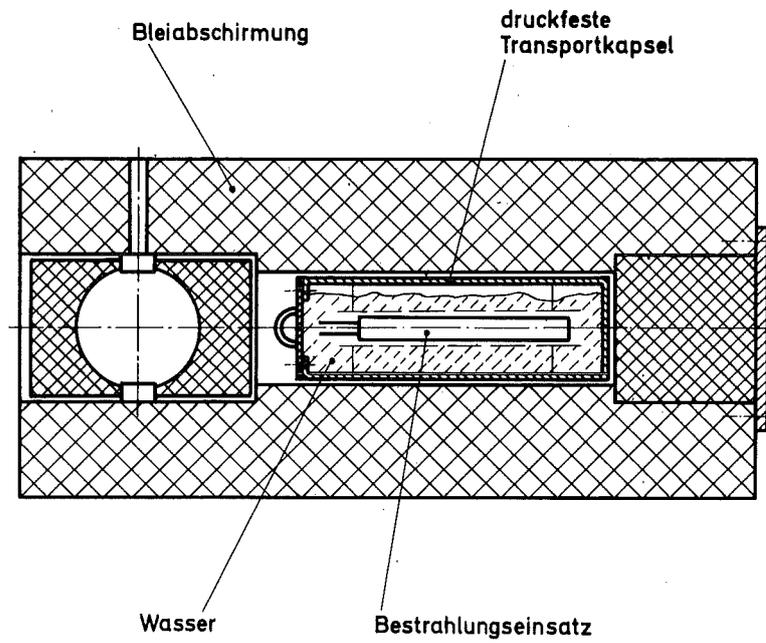


Abb. 3.25: Schematische Darstellung der Anordnung zum Transport der bestrahlten Stäbe

4. Nachbestrahlungsuntersuchungen

Der Nachweis der Eignung des gewählten Konzepts konnte nur durch störungsfreien Ablauf der Bestrahlungsexperimente erbracht werden und ferner durch den nach Ablauf der Bestrahlungen zu erbringenden Beweis, daß die Stäbe während der Bestrahlungszeiten keine die Sicherheit gefährdenden Veränderungen erfahren haben. Der im wesentlichen störungsfreie Ablauf der Bestrahlungen wurde bereits in Kapitel 3.4 beschrieben; im folgenden werden die Ergebnisse der auf die Bestrahlungen folgenden zerstörungsfreien als auch zerstörenden Nachuntersuchungen aufgezeigt.

Mit Hilfe der Nachbestrahlungsuntersuchungen sollten Daten gesammelt werden, die die unmittelbaren Auswirkungen der Bestrahlungen auf die Bestrahlungsstäbe deutlich machen.

Für diese Untersuchungen wurden einzelne ausgewählte Bestrahlungsstäbe aus jedem Experiment dem folgenden schrittweisen Nachbestrahlungs-Untersuchungsprogramm unterzogen:

- a) Visuelle Kontrolle mit photographischer Dokumentation
- b) Dimensionskontrolle an den Stäben
- c) Bestimmung der Wärmeentwicklung und Oberflächentemperatur
- d) Gamma-Scanning
- e) γ - und n-Dosisleistungsmessungen
- f) Bestimmung der freien Gase (He, Xe, Kr)
- g) Dimensionkontrolle an den Pellets
- h) Metallographie
- i) α - Autoradiographie
- j) Bestimmung der gebundenen Gase (He, Xe, Kr)
- k) Langzeitverhalten der Pellets

Die folgende Darstellung greift für die einzelnen Punkte beispielhaft nur jeweils Untersuchungsergebnisse eines einzelnen Bestrahlungsexperimentes heraus, es sei denn, signifikante Unterschiede zwischen den einzelnen Bestrahlungsexperimenten wären feststellbar gewesen oder die Gegenüberstellung aller ermittelten Daten ist ohne wesentlichen Mehraufwand an Platz möglich.

4.1. Visuelle Kontrolle der Bestrahlungsstäbe

Die bestrahlten Stäbe konnten nach dem Entfernen des Bestrahlungskorbes in den Heißen Zellen in Augenschein genommen werden. Außer der oberflächlichen Oxidation des Hüllmaterials, einem von der Brennelementbestrahlung her bekannten Vorgang /59/, konnten keine Veränderungen - wie z.B. Durchbiegung, Ausbeulung, Risse usw. - festgestellt werden. Abb. 4.1 zeigt als Beispiel zwei bestrahlte Stäbe aus dem Experiment HFR-3.

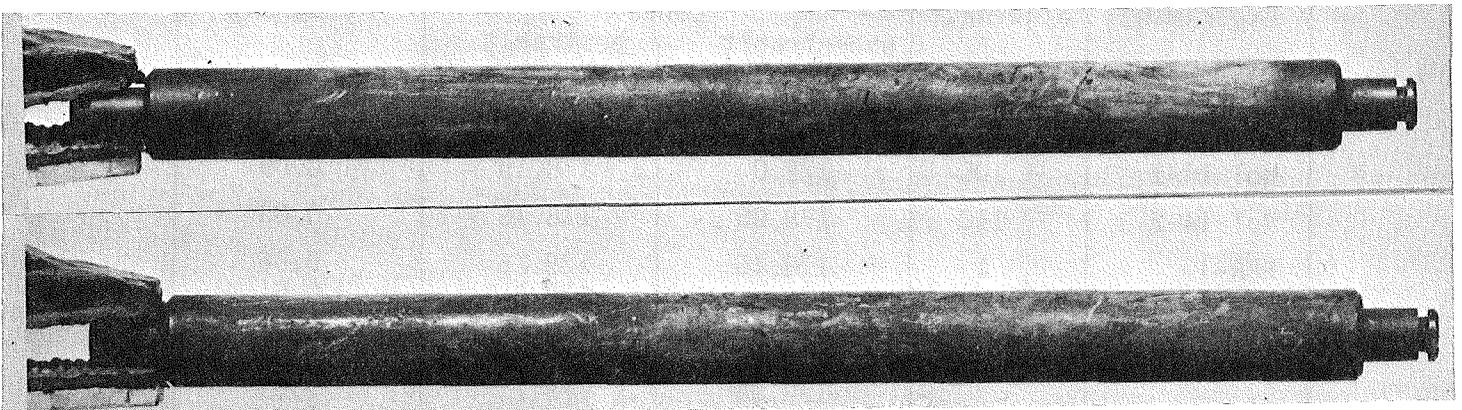


Abb. 4.1: AmO₂-Bestrahlungsstäbe nach dem Zerlegen des Bestrahlungseinsatzes, Experiment HFR-3, Stäbe 15C,17C

4.2. Dimensionskontrolle

In den Heißen Zellen wurde die Gesamtlänge der Stäbe auf einem Meßtisch ermittelt, der eine Meßgenauigkeit von ± 0.05 mm erlaubte. Die bestrahlten Stäbe waren generell um 0.05 bis 0.15 mm länger als im unbestrahlten Zustand. Dies ist jedoch im wesentlichen auf die nicht reproduzierbaren Kühlungsbedingungen zurückzuführen, denen die Stäbe während der Messung ausgesetzt waren. Die bestrahlten Stäbe waren während der Messung wesentlich heißer (vgl. Kap. 4.3) als im unbestrahlten Zustand; die Größenordnung der gemessenen Längenausdehnung ergibt sich aus dieser Temperaturerhöhung. Darüberhinausgehende, nur noch kleinere Abweichungen sind vermutlich, soweit sie nicht ohnehin im Rahmen der erzielbaren Meßgenauigkeit liegen, auf unterschiedliche Meßtechniken vor und nach der Bestrahlung zurückführbar.

Tab. 4.1 zeigt in Gegenüberstellung die erhaltenen Ergebnisse vor und nach der Bestrahlung.

Tab. 4.1: Ergebnisse der Längenmessung an bestrahlten und unbestrahlten Stäben

Experiment	Stab-Nr.	Länge		Änderung (%)
		unbestrahlt (mm ³)	bestrahlt (mm ³)	
MoI 14-1	10C	178.0	178.15	0.09
MoI 14-2	11C	178.05	178.15	0.03
HFR-1	1	178.15	178.25	0.06
	4	178.0	178.0	0.0
	5	178.0	178.0	0.0
	6	178.05	178.0	0.03
	7	178.05	178.2	0.09
	1T	178.0	178.0	0.0
	2T	178.0	178.0	0.0
	4T	178.15	178.3	0.09
HFR-2	3C	178.45	178.61	0.1
	9C	178.40	178.55	0.09

Ferner wurden die Stäbe, in einer Meßbank eingespannt, auf radiale Durchmesseränderungen hin vermessen. Die Technik hierfür ist im Heiß-Zellen-Betrieb aus der Brennelementfertigung erprobt /61/ und erlaubt die Feststellung von lokalen Auswölbungen sowie von axialer Durchbiegung der Stäbe. Die Messung verläuft automatisch, die erzielbare Meßgenauigkeit liegt bezogen auf den Radius bei unter $100\mu\text{m}$. Da die Fertigungstoleranz der Hüllrohre bereits bei $\pm 0.1\text{ mm}$ lag, war die gesamte Meßgenauigkeit in bezug auf bestrahlungsbedingte Veränderungen letztlich durch die Toleranzvorgabe der Hüllrohre selbst bestimmt. Bei dem hier verwendeten Meßverfahren gleitet ein elektro-mechanischer (induktiver) Wegaufnehmer als Meßkopf längs einer Mantellinie des Stabes mit konstanter Geschwindigkeit. Durch Drehen des Stabes wird aus der Bahn des Meßkopfes eine wendelförmige Linie auf dem Mantel des Stabes, die als Meßlinie aufgezeichnet wird. Dieses Verfahren gestattet es, bei geringem Zeitaufwand, ein Höchstmaß an Informationen über den Zustand der Staboberfläche zu erhalten. Das erhaltene Meßsignal wurde unmittelbar analog durch einen Schreiber registriert.

Im allgemeinen oszilliert das Schreiberdiagramm als Folge der nie absolut genauen Kreisgeometrie des Rohrquerschnitts. Verläuft die Mittelsymmetrische dieser Oszillationen jedoch parallel zur Schreiber-Nulllinie - zentrales Einspannen des Prüflings vorausgesetzt - , dann bedeutet dies, daß der Stab nicht durchgebogen ist. Andererseits kann gerade aus der Abweichung dieser Mittelsymmetrischen die Durchbiegung des Stabes ermittelt werden. Die Amplitude der Oszillationen wiederum ist ein Maß für die Ovalität des Prüflings. Abb. 4.2 zeigt eine Auswahl der mit dieser Methode erhaltenen Meßergebnisse.

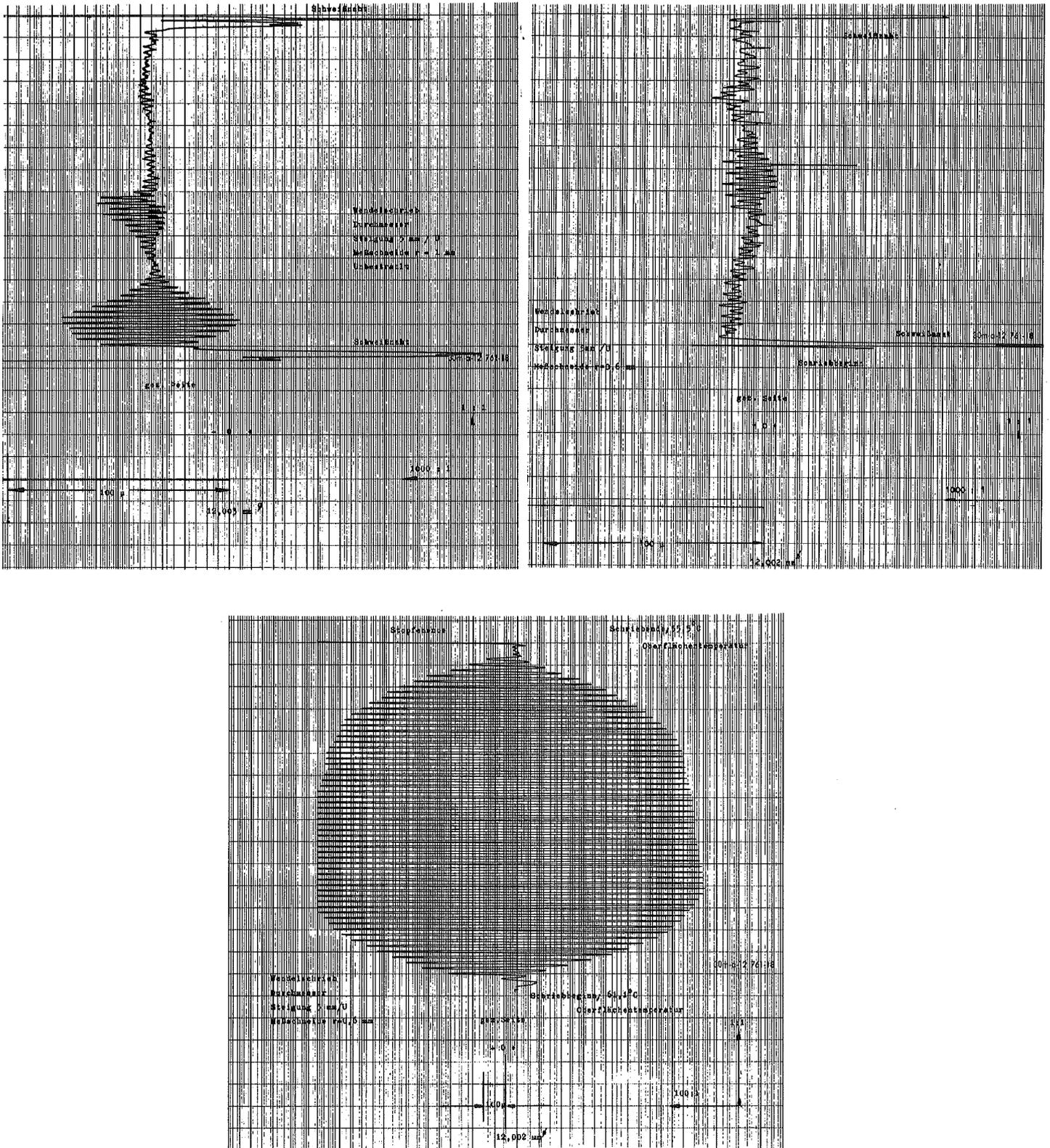


Abb. 4.2: Wendelschrieb an bestrahlten Stäben zur Feststellung von axialen und radialen Verformungen

4.3. Bestimmung von Wärmeentwicklung und Oberflächentemperatur

Cm-242 läßt sich wegen seiner spezifischen Wärmeentwicklung von ca. 120 W/g bereits in sehr geringen Mengen in entsprechend empfindlichen Kalorimetern nachweisen. Diese Methode sollte insbesondere als Ersatz für die sehr arbeitsaufwendige und immer mit Materialverlusten verbundene chemische Analyse getestet werden. Tab. 4.2 zeigt die Ergebnisse der Messungen an den Bestrahlungsstäben.

Tab. 4.2: Ergebnisse der kalorimetrischen Messung der Wärmeentwicklung, korrigiert auf Bestrahlungsende

Experiment	Stab-Nr.	Wärmeleistung gemessen (W)	Cm-242 (mg)	Am-241 (mg)	Konversions-Rate gemessen	Konversions-Rate berechnet	Abweichung (%)
HFR-2	1C	7.04	58.7	1950	0.030	0.04	-25.0
	2C	7.30	60.8	1950	0.031	0.04	-22.5
	3C	23.41	195.1	4360	0.045	0.06	-25.0
	4C	12.70	105.8	1950	0.054	0.05	8.0
	6C	22.95	191.3	4360	0.044	0.06	-26.7
	8C	12.74	106.2	1950	0.054	0.05	8.0
	9C	22.40	186.7	4360	0.043	0.06	-28.3
HFR-3	12C	14.90	124.2	1950	0.064	0.07	- 8.6
	13C	15.84	132.0	1950	0.068	0.07	- 2.9
	14C	16.25	135.4	1950	0.069	0.07	- 1.4
	15C	36.86	307.2	6270	0.049	0.06	-18.3
	16C	41.67	347.3	6270	0.055	0.06	- 8.3
	17C	41.30	344.2	6270	0.055	0.06	- 8.3
	18C	7.33	61.1	1220	0.050	0.05	0.0
	19C	8.14	67.8	1220	0.056	0.05	-12.0
	20C	8.01	66.8	1220	0.055	0.05	-10.0

Zusätzlich wurde der Anstieg der Oberflächentemperatur der Stäbe ermittelt, der dann eintrat, wenn die Stäbe aus ihrer mit Wasser gekühlten Lagerposition entnommen wurden; damit sollten Erkenntnisse gewonnen werden, inwieweit bestrahlte AmO₂-Stäbe in Heißen Zellen, in denen auch Apparaturen und Prozeßaus-rüstungen aus Plastikmaterialien (PVC, PÄ) benutzt werden, gefahrlos gehandhabt werden können, bzw. wie rasch ein Temperaturanstieg bis zu einem kritischen Niveau erfolgt. Die Messung erfolgte mit Thermoelementen geringer Wärmekapazität,

wobei die Stäbe, an einem Ende mit dem Manipulator eingespannt, frei in die Zellenatmosphäre gehalten wurden. Abb. 4.3 zeigt den charakteristischen, durch den Luftwechsel in der Zelle bedingten Temperaturanstieg an der Staboberfläche. Tab. 4.3 gibt einen Überblick über die an verschiedenen Stäben gemessenen Temperaturen.

Es zeigt sich, daß die Oberflächentemperaturen bereits nach 10 - 20 min nach Entnahme aus der gekühlten Lagerposition einen Wert erreichen, der im Heiß-Zellen-Betrieb Vorsichtsmaßnahmen angebracht erscheinen läßt.

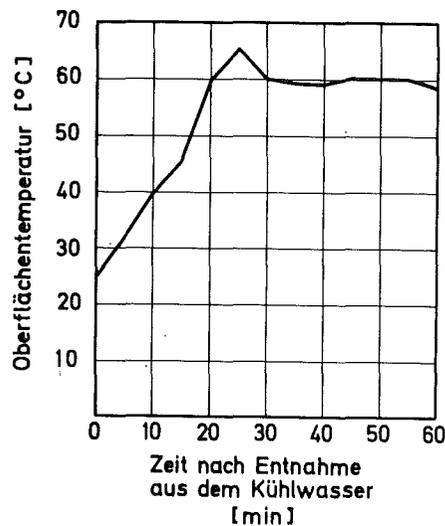


Abb. 4.3: Anstieg der Oberflächentemperatur des Bestrahlungsstabes nach Entnahme aus der wassergekühlten Lagerposition

Tab. 4.3: Gemessene Oberflächentemperaturen an den Bestrahlungsstäben, zeitabhängig

Experiment	Stab Nr.	Zeit nach Entnahme aus dem Kühlwasser (min)	gemessene Temperaturen		
			Pellet außen gez. Seite (°C)	Meßstelle Pellet Mitte (°C)	Pellet außen (°C)
HFR-1	1	60	45	42.5	50
	5	70	57.7	58.8	54.4
	6	80	78	85.5	74.2
	4	85	57.4	60	55.1
	4T	90	79.2	94	78.3
	1T	100	79.2	85.9	75.9
	7	105	82.9	73.3	72.7
	2T	110	83.8	84	80
HFR-2	1C	60	81.2	108.3	100,1
	2C	60	89.1	105.3	90.1
	3C	60	163.9	195.2	172.9
	4C	60	123.0	134.3	128.0
	6C	60	152.5	191.4	161.0
	8C	60	105.4	138.4	116.9
	9C	60	177.9	205.6	160.3

4.4. Gamma - Scanning

Das Gamma-Scanning ist eine Untersuchungsmethode, die mit relativ bescheidenem Aufwand an Gerät und Arbeitszeit eine Reihe wertvoller Informationen über den Prüfling liefert. Das Prinzip beruht auf der Messung der Spaltprodukt- γ -Strahlung eines bestrahlten Prüflings entlang seiner Längsachse. In der Praxis verläuft diese Messung in der Weise, daß der Prüfling kontinuierlich oder in kleinen Schritten an einem Spaltkollimator vorbeigezogen wird. Jenseits des Kollimatorspaltes befindet sich ein γ -Detektor mit Impulshöhenanalysator. Somit kann die γ -Intensität als Funktion der Prüflings-Längskoordinate bzw. auch das γ -Spektrum an irgendeinem vorgegebenem Punkt der Stabachse aufgezeichnet werden. Die Güte dieser Messungen hängt unter anderem sehr stark von den Dimensionen des Kollimatorspaltes ab, der bei den hier durchgeführten Messungen die Maße 0.5 x 20 x 700 mm hatte.

Die Abb. 4.4 zeigt das Diagramm des γ -scan für einen Prüfling. Dem Diagramm kann unmittelbar die innere Struktur des Prüflings, bis zu einem gewissen Grade auch der mechanische Zustand der Pellets, entnommen werden. Ferner gibt die Höhe des Meßsignals die Höhe des relativen n-Flußniveaus während der Bestrahlung wieder. Am oberen und unteren Stabende zeigt sich deutlich die Überhöhung des γ -Profils aufgrund der eingelegten Co-Flußmonitore. Die Abb. 4.5 bzw. 4.6 zeigen die an den in Abb. 4.4 mit A bzw. B markierten Stellen des Prüflings aufgenommenen γ -Spektren.

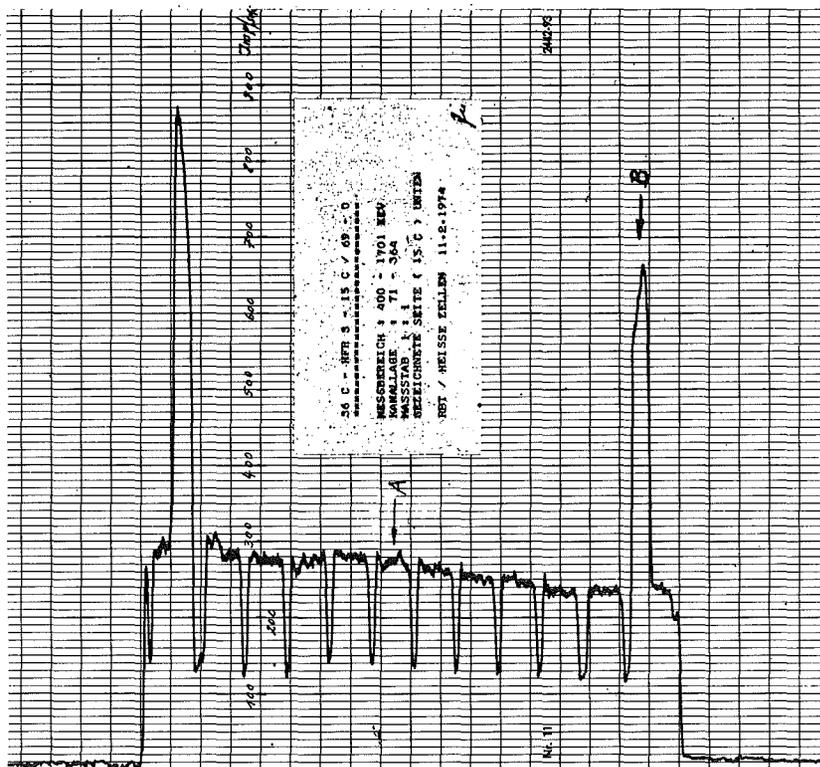


Abb. 4.4: γ -scan an AmO_2 -Bestrahlungsstab

HFR-2, STAB 8C, POSITION A

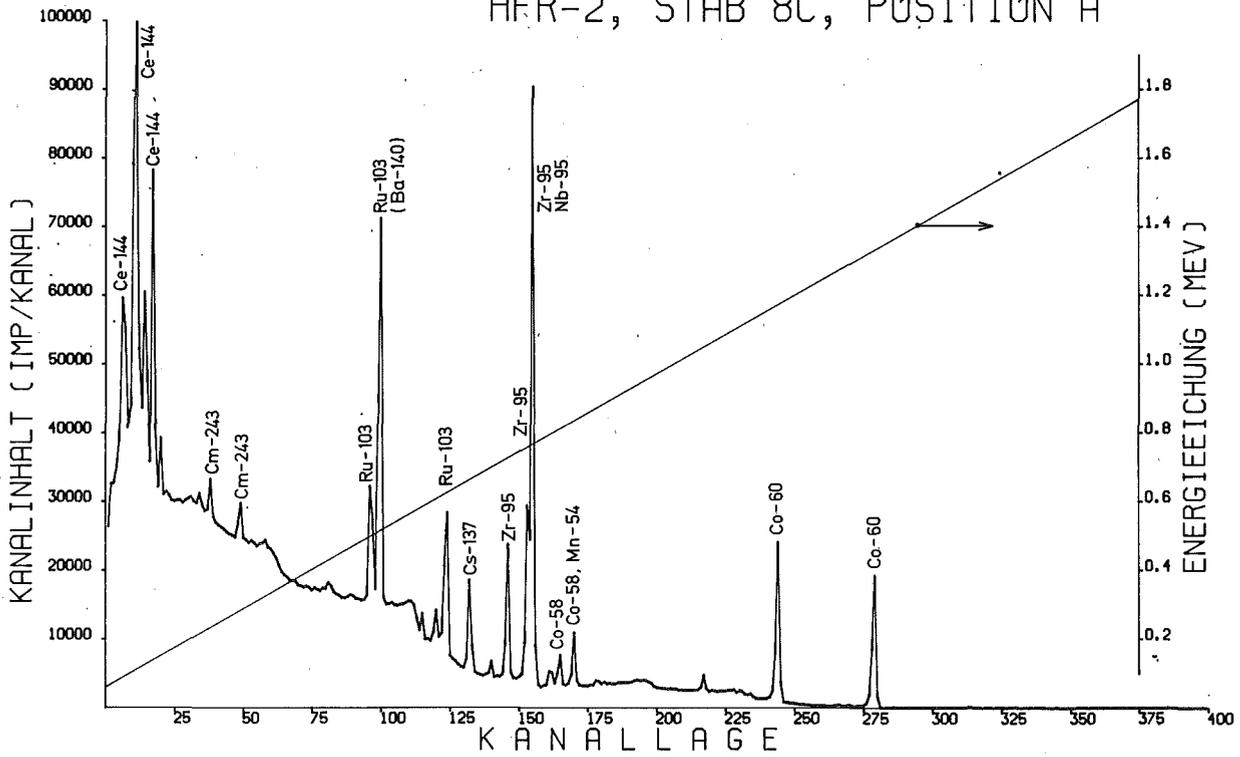


Abb. 4.5: γ -Spektrum am AmO_2 -Bestrahlungsstab, Messung in Punkt A nach Abb. 4.4

HFR-2, STAB 8C, POSITION B

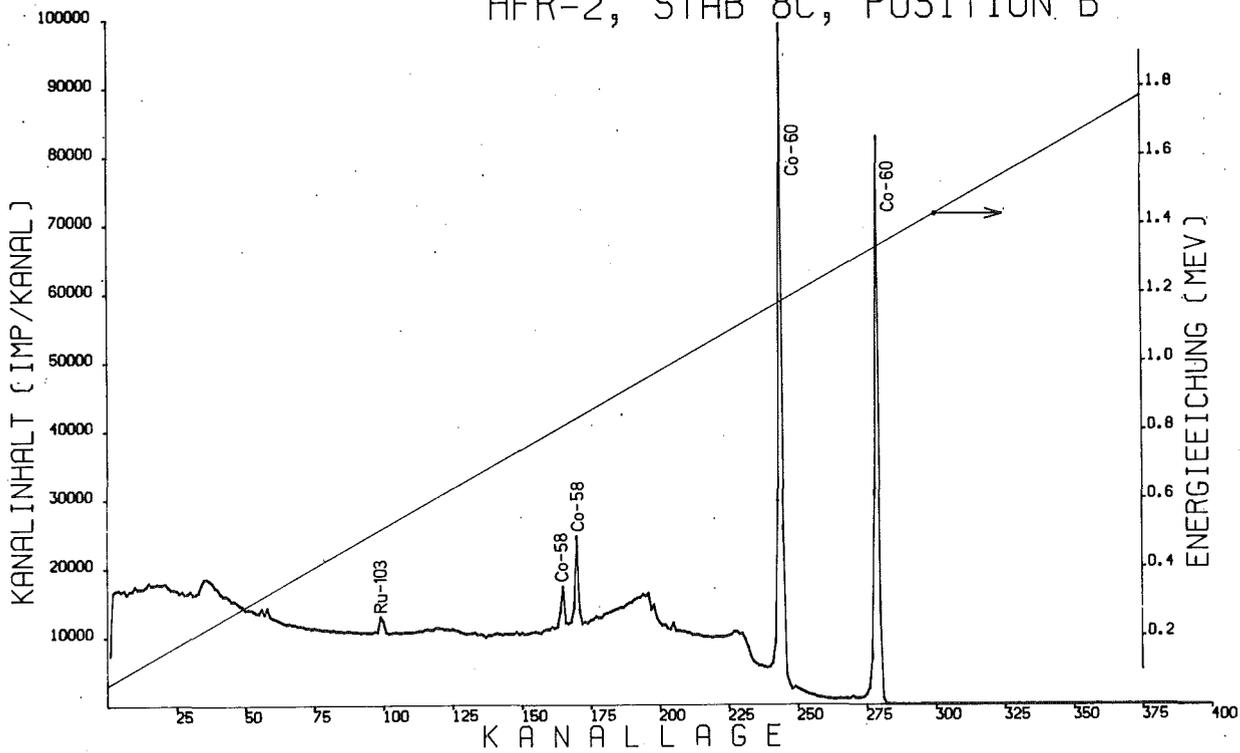


Abb. 4.6: γ -Spektrum am AmO_2 -Bestrahlungsstab, Messung in Punkt B nach Abb. 4.4

4.5. γ - und n-Dosisleistungsmessungen

Die chemische Aufarbeitung bestrahlter AmO_2 -Stäbe erfordert abgeschirmte Arbeitsplätze für die hierfür erforderlichen Prozeßschritte. Es sollte über die erforderlichen Abschirmmaßnahmen gegenüber γ -Strahlung und n-Emission ein Überblick gewonnen werden. Die Messung erfolgte mit einfachen Strahlenschutzmeßgeräten durch vorhandene Durchführungen in den Wänden der Heißen Zellen, die mit dem in Tab. 4.4 jeweils genannten, in seiner Dicke variablen, Abschirmmaterial verschlossen wurden. Es handelt sich hierbei nicht um Präzisionsmessungen, die wegen der besonderen Arbeitsplatzsituation in Heißen Zellen nicht möglich sind. Jedoch zeigt sich, daß für Arbeiten mit bestrahltem AmO_2 in der Größenordnung einiger Gramm eine Abschirmung von 15 cm Blei kombiniert mit 10 cm Polyäthylen einen ausreichenden Schutz für das Bedienungspersonal darstellt.

Tab. 4.4: Ergebnisse der γ - und n-Dosisleistungsmessungen

Abstand (cm)	Abschirmdicke ⁺ (cm)	γ -Dosisleistung (mrem/h)	n-Dosisleistung	
			thermisch (μ rem/h)	schnell (μ rem/h)
85	5	100	80	1500
90	10	6	48	900
95	15	1	16	750
100	20	< 1	4	< 750

+ = Abschirmmaterial: Blei für γ -Messung
Polyäthylen für n-Messung
Stab mit 2g Am-241 und ca. 140mg Cm-242

4.6. Untersuchungen an den bestrahlten Pellets

Bevor die Stäbe zur Entnahme der Pellets geöffnet wurden, wurden die Prüflinge punktiert, um das während der Bestrahlung in das freie Stabvolumen freigesetzte Gas zu analysieren. Die Beschreibung dieses Schrittes wird hier zunächst übersprungen, um den Ablauf dieser Analysen dann gemeinsam mit den noch darauf folgenden Analysen des im Pellet gebundenen Gases darzustellen.

Die Untersuchung der einzelnen Pellets gehörte mit zu den wichtigsten Arbeiten im Nachbestrahlungs-Untersuchungsprogramm. Mit Hilfe dieser Untersuchungen sollte festgestellt werden, ob während der Bestrahlung Veränderungen an den Pellets eingetreten sind, die eine Überprüfung des Stabfertigungskonzeptes generell oder evtl. nur einzelner Fertigungsschritte erforderlich machen würde. Es kann vorweggenommen werden, daß derartige Veränderungen nicht nachweisbar waren. Die Schwierigkeiten bei der Entnahme der Pellets aus den Stäben des Experimentes HFR-1 sind ausschließlich darauf zurückzuführen, daß das Strukturmaterial des Bestrahlungseinsatzes - alle Teile waren aus Aluminium gefertigt - unter den Temperatur- und Säurebedingungen der Bestrahlungs-Looposition (280°C , pH 6.5) unerwartet rasch korrodierte und durch Volumenzunahme Druck auf die Stäbe ausübte, die dadurch einen leicht ovalen Querschnitt annahmen (vgl. Abb.4.2, S. 108). Für die späteren Bestrahlungsexperimente wurde der Bestrahlungseinsatz deshalb ganz aus Zircaloy-4 bzw. Edelstahl gefertigt, so daß derartige Phänomene nicht mehr auftreten konnten.

Im Falle des Experiments HFR-1 mußten die Stäbe zur Entnahme der Pellets längs einer Mantellinie aufgesägt werden (Abb. 4.7). Bei allen anderen Experimenten konnten die Pellets nach Abschneiden der Endkappen ohne Schwierigkeiten aus den Hüllrohren gedrückt werden. Leichtere Beschädigungen an der

Mantelfläche der Pellets sind dabei auf den scharfkantigen Innenrand der Hüllrohre nach dem Aufschneiden zurückzuführen (vgl. Abb. 4.8).

Nach der Entnahme wurde die Geometrie der Pellets stichprobenweise überprüft. Die Ergebnisse sind in Tab. 4.5 zusammengestellt.

Tab. 4.5: Dimensionskontrolle an einigen bestrahlten AmO₂-Pellets

Experiment	Stab Nr.	Pellet Nr.	Pelletdurchmesser		Änderung (%)
			bestrahlt (mm)	unbestrahlt (mm)	
HFR-1	2T	8	10.22	9.87	3.6
	4T	4	9.99	9.87	1.2
HFR-2	3C	9	10.06	9.87	1.9
	6C	9	10.02	9.86	1.6
	9C	9	9.76	9.85	-0.9
HFR-3	18C	9	9.86	9.86	0.0
	19C	1	9.94	9.86	0.8
	19C	9	9.52	9.85	-0.3
	20C	1	9.85	9.85	0.0
	20C	9	10.02	9.86	1.62

Signifikante Änderungen in den Dimensionen der Pellets sind nicht feststellbar. Die Abweichungen liegen im Rahmen der in den Heißen Zellen erzielbaren Meßgenauigkeit, die sich als Summe aus dem rein meßtechnischen Fehler (Messung mit Mikrometerschraube) sowie der sekundär durch die Entnahme der Pellets entstandenen Rauigkeit der Oberfläche ergibt.

Die Veränderung der inneren Struktur der Bestrahlungspellets als mögliches Ergebnis der abgelaufenen Bestrahlung kann mit Hilfe der Metallographie, wie sie als Methode für die Herstellung von Metall-Keramik-Schliffen /59/ üblich ist, sichtbar gemacht werden. Die AmO₂-Proben werden durch Eingießen in eine

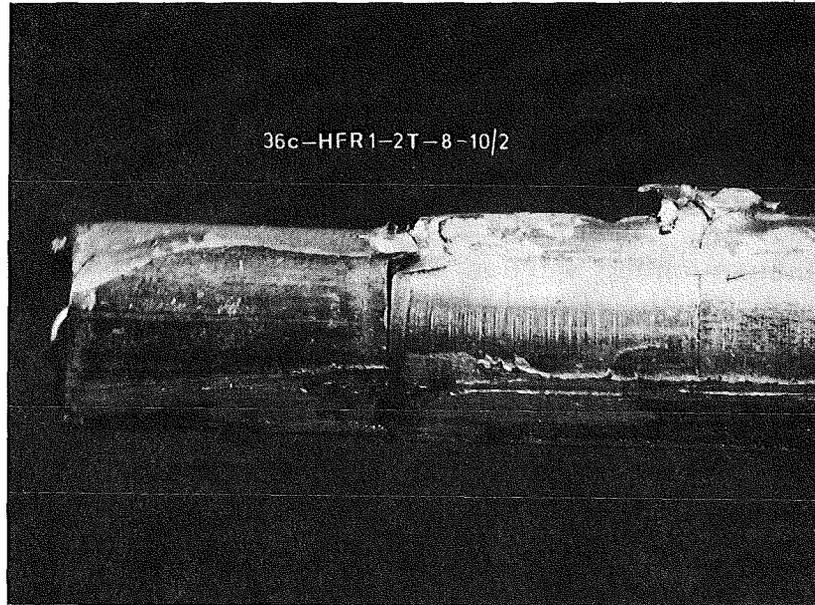


Abb. 4.7: Pellets aus dem Experiment HFR-1

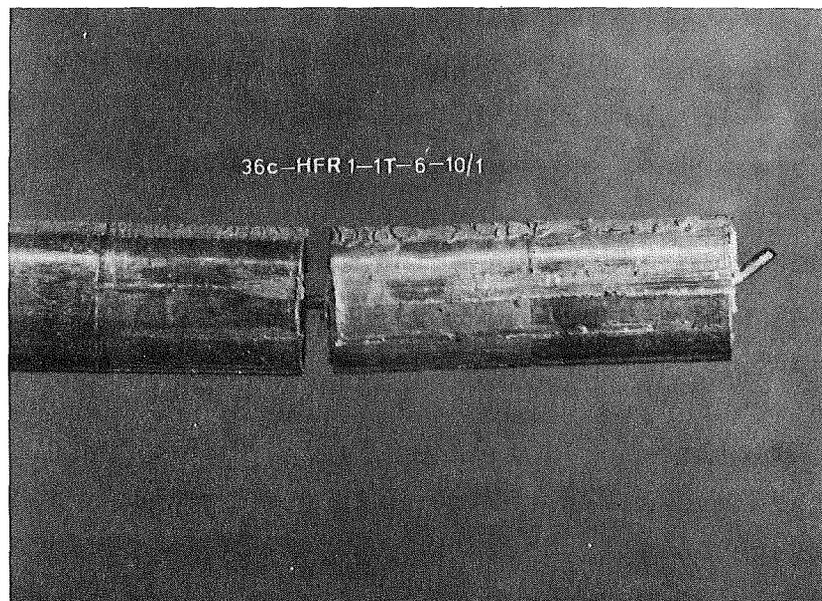


Abb. 4.8: Nach der Bestrahlung entnommene unbeschädigte Pellets

Epoxy-Harzträgermasse mechanisch stabilisiert, anschließend geschliffen, poliert und, wenn erforderlich, geätzt. Eine Beurteilung und Auswertung der Schliffe wird am Metall-Mikroskop vorgenommen, an dem auch die Möglichkeit zur photographischen Dokumentation besteht.

Zur Untersuchung wurden die Prüflinge in Längsrichtung bzw. Querrichtung zerschnitten, um somit mögliche Veränderungen in radialer als auch axialer Richtung (in beiden Richtungen besteht während der Bestrahlung ein Temperaturgradient) ggfs. feststellen zu können. Zusätzlich zu den so möglichen optischen Kontrollen des Pelletgefüges wurden durch Auflegen der Prüflinge auf eine entsprechend empfindliche Filmschicht α -Autoradiographien angefertigt, die es erlauben auch ggfs. aufgetretene Inhomogenitäten der Aktivitätsflächenkonzentration durch Schwärzung sichtbar zu machen. Diese α -Autoradiographien können dann später unter dem Mikroskop photographisch vergrößert werden. Die Darstellung der Ergebnisse (Abb. 4.9 bis 4.16) erfolgt hier am Beispiel des Experiments HFR-1; hier kann gleichzeitig deutlich gemacht werden, daß durch die metallographischen Aufnahmen auch mechanische Geometrieänderungen - in diesem Fall, wie oben beschrieben, durch äußere Krafteinwirkung entstanden - nachgewiesen werden können.

Die metallographischen Aufnahmen der Pellets wurden noch ergänzt durch solche von den Durchführungsstellen der Thermo-elemente durch den Stopfen. Diese Stellen waren aus fertigungstechnischen Gründen nicht geschweißt, sondern mit einem Hochtemperaturlot auf Chrom-Nickel-Basis bei 1100°C im Vakuum gelötet worden. Es sollte hier der Nachweis erbracht werden, daß diese Lötung, deren Haltbarkeit im unbestrahlten Zustand nachgewiesen war, auch nach Ende der Bestrahlungen keine Veränderungen aufwies. Die Abb. 4.17 bis 4.21 zeigen einige Details der mikroskopischen Aufnahmen im Bereich der Lötstelle.

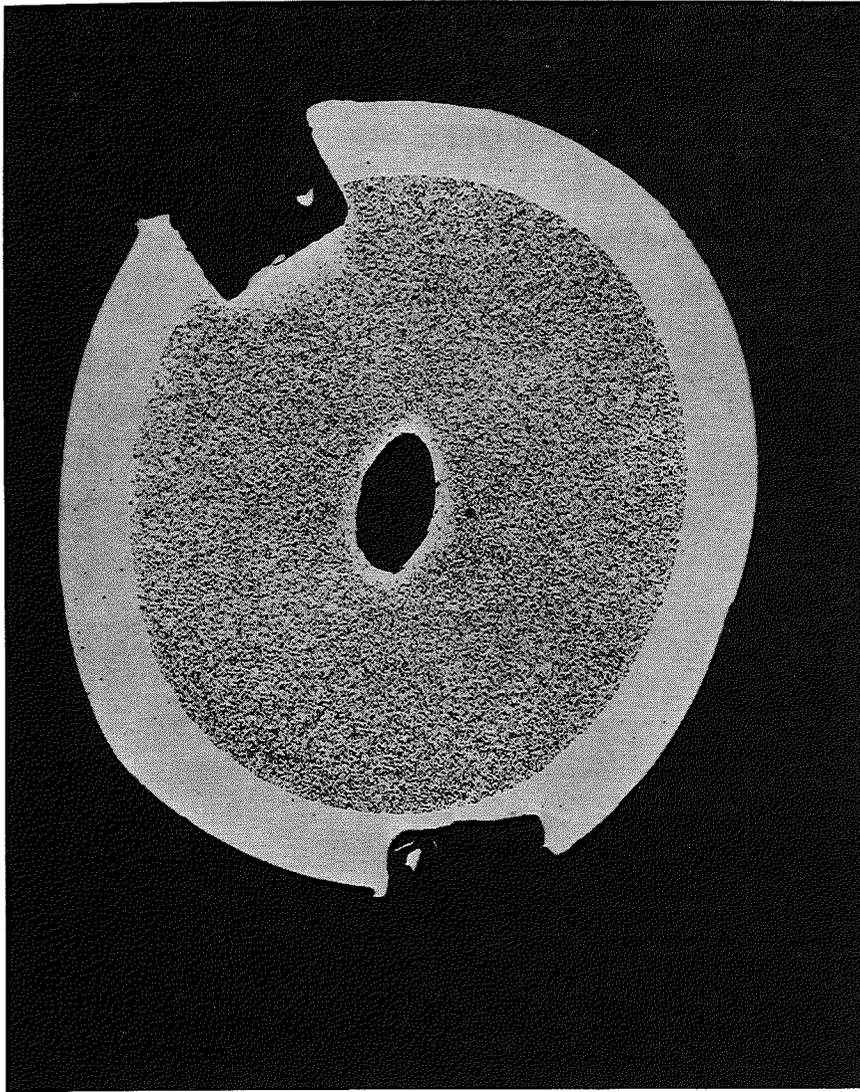


Abb. 4.9: Querschliff durch Stab 4T, Pellet 6,
aus Experiment HFR-1,
~ 10-fache Vergrößerung

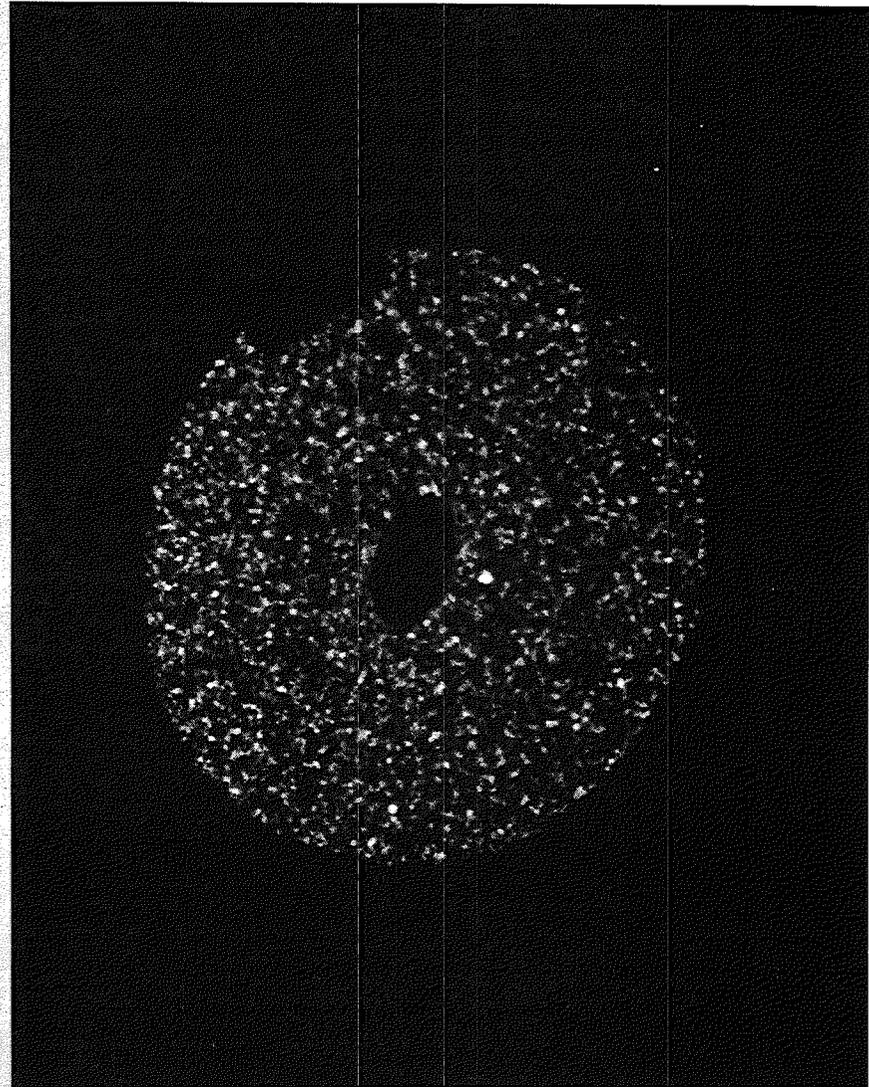


Abb. 4.10: α -Autoradiographie des Querschliffs
nach Abb. 4.9

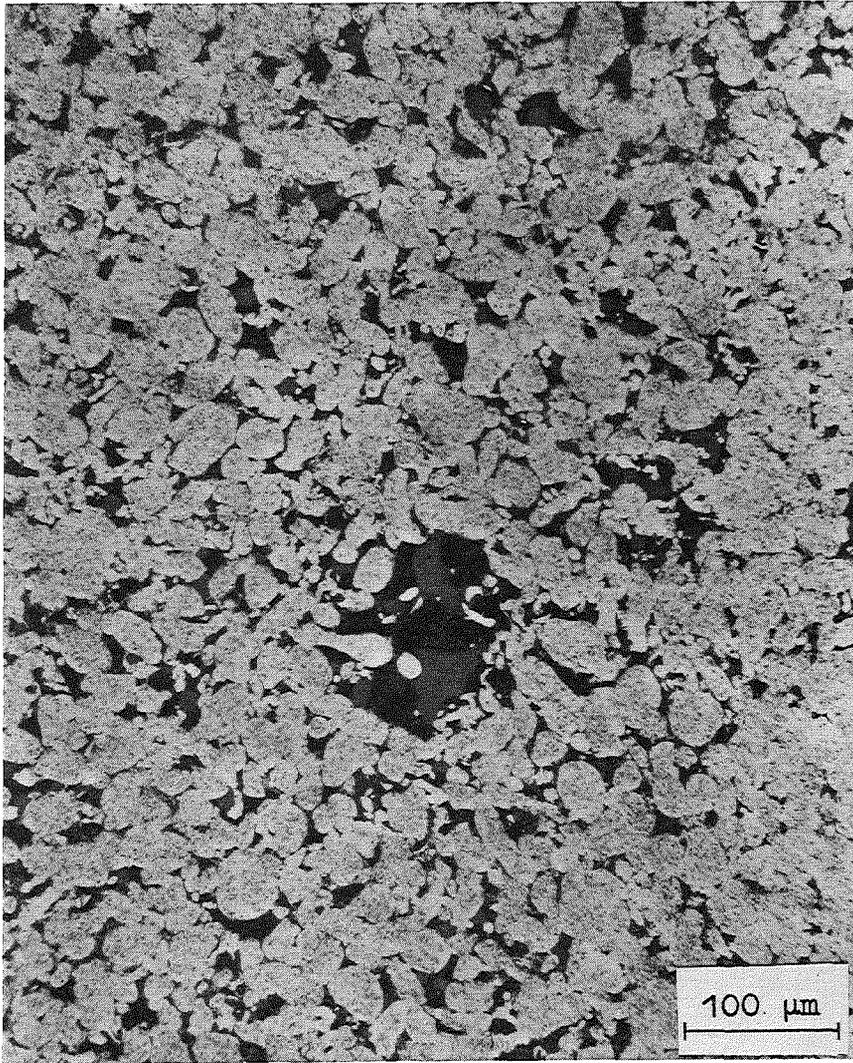


Abb. 4.11: Schliffbild des Pelletgefüges aus
Stab 4T, Pellet 6, Experiment HFR-1,
~ 200-fache Vergrößerung

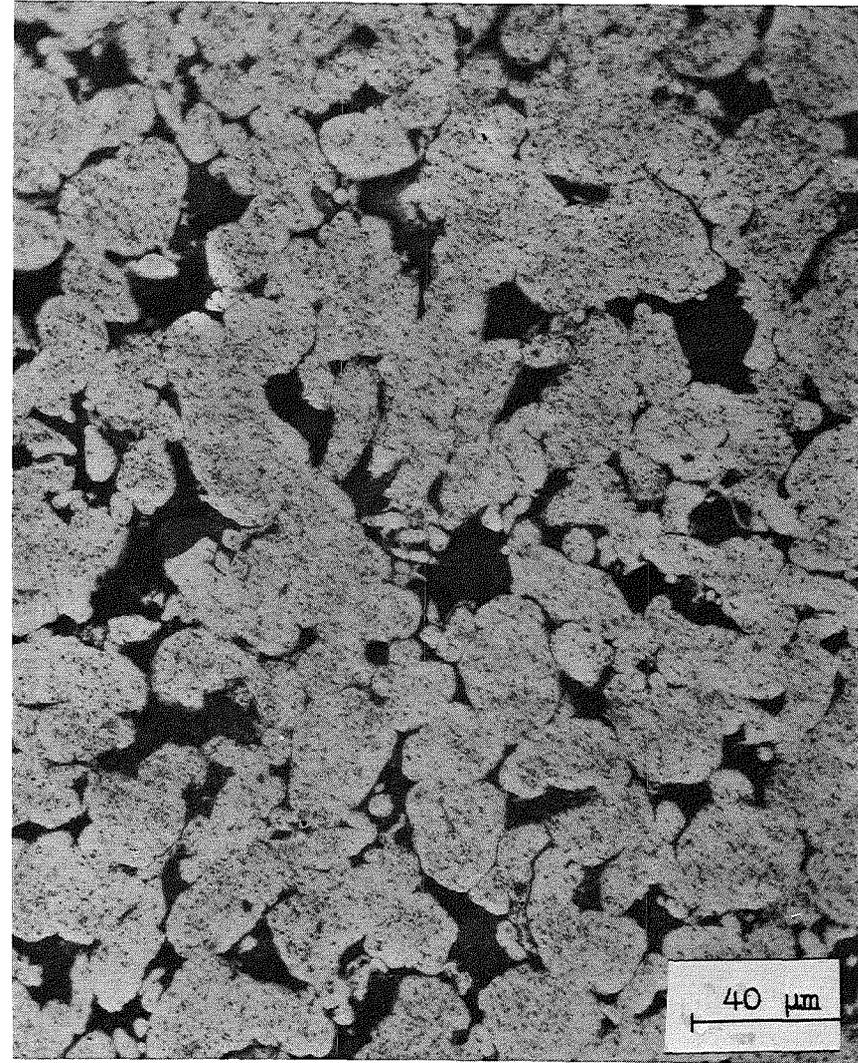


Abb. 4.12: Detail nach Abb. 4.11,
~ 500-fache Vergrößerung

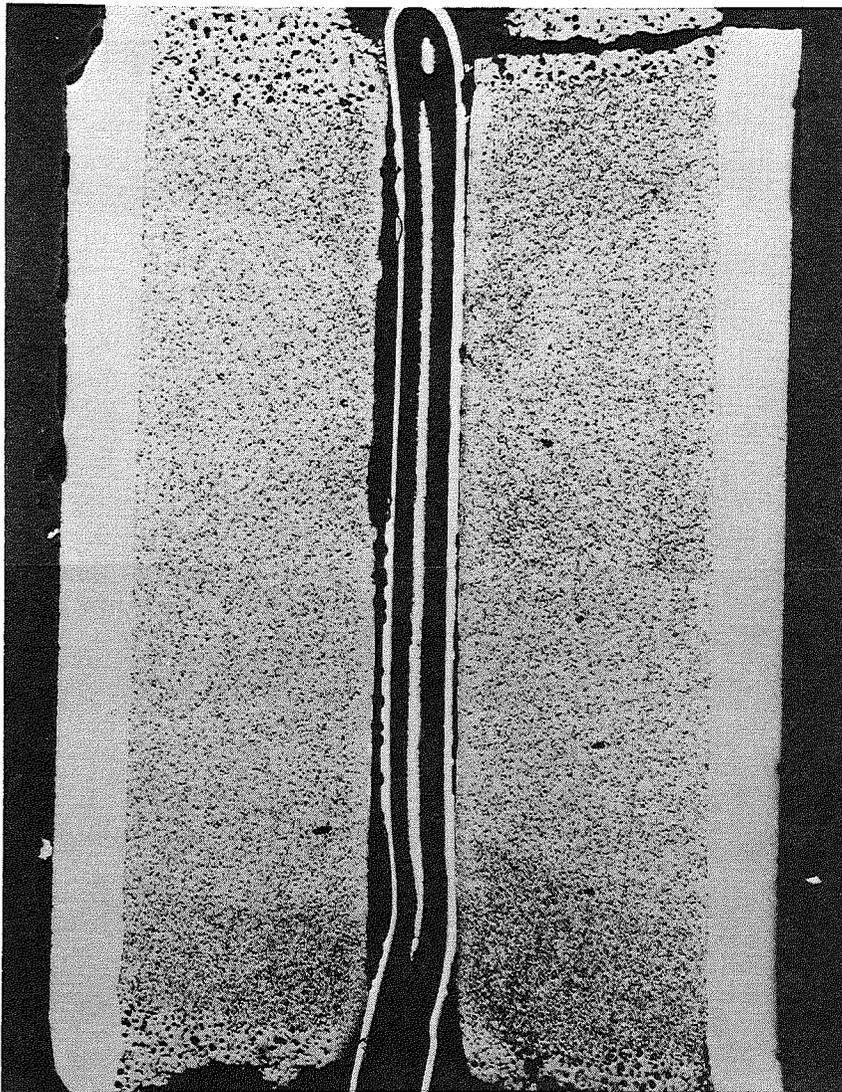


Abb. 4.13: Längsschliff aus Stab 4T, Pellet 5,
Experiment HFR-1,
~ 10-fache Vergrößerung

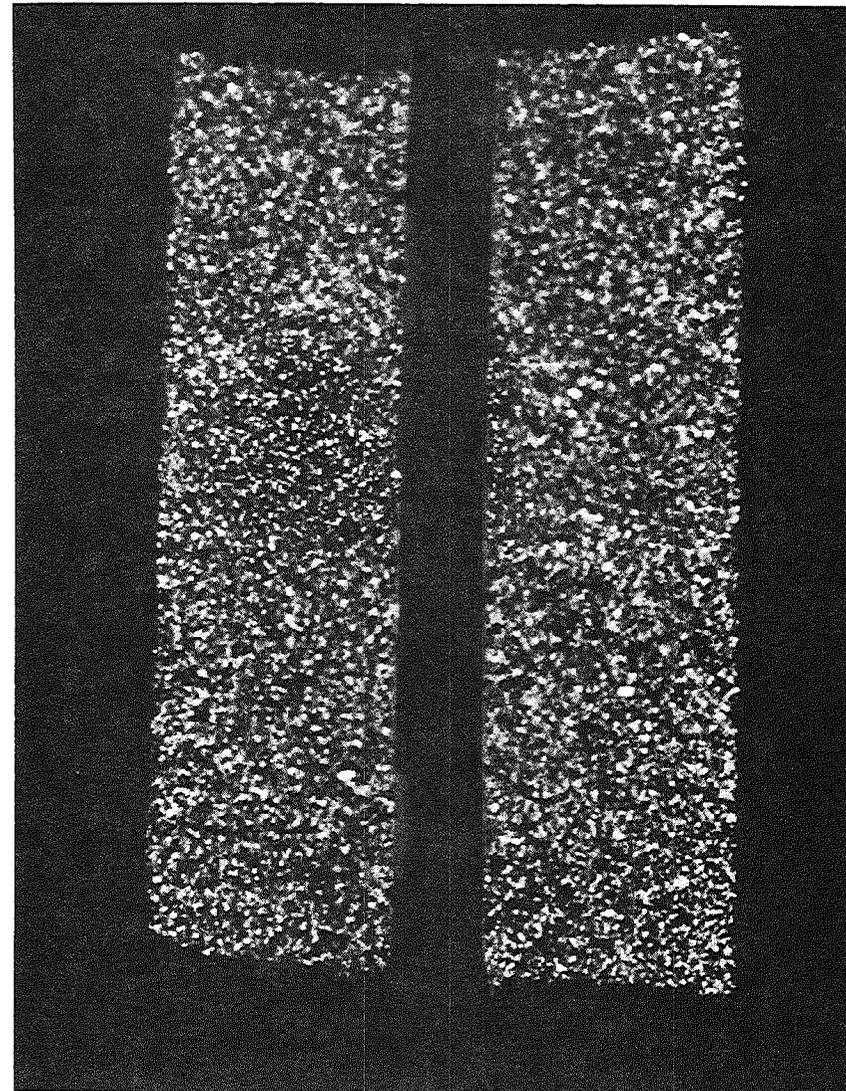


Abb. 4.14: α -Autoradiographie des Längsschliffs
nach Abb. 4.13

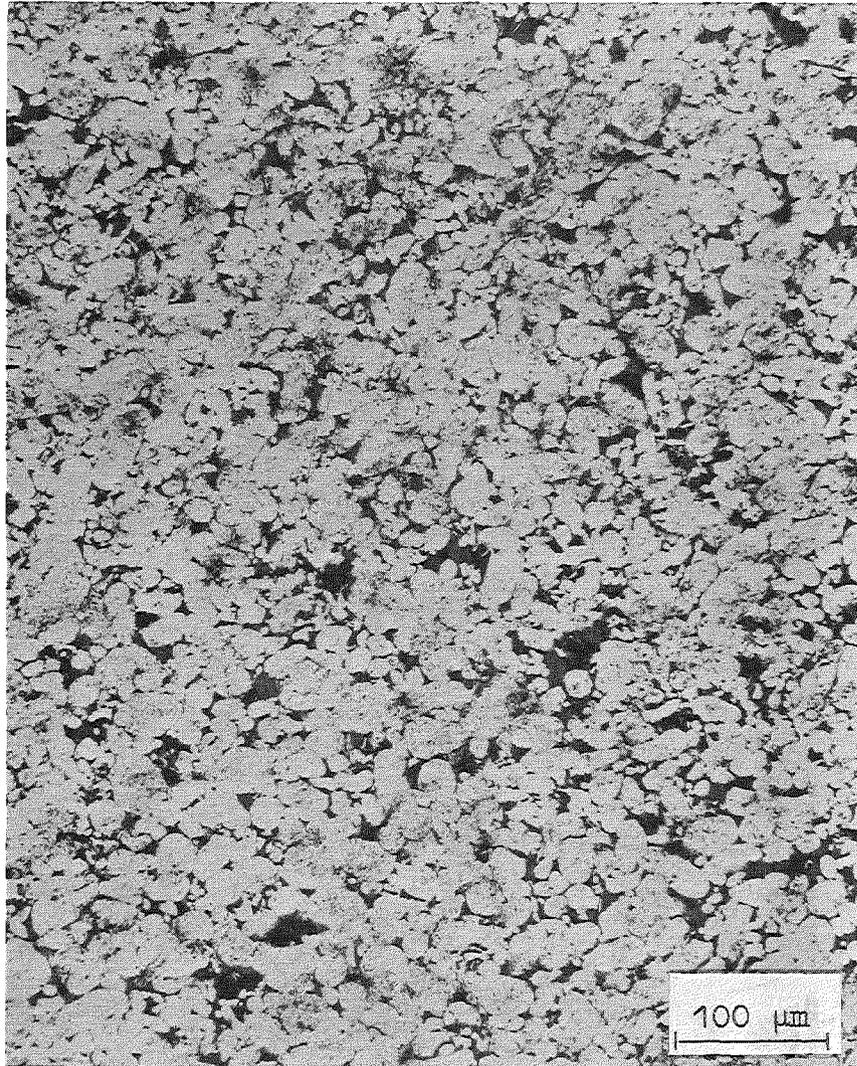


Abb. 4.15: Schliffbild des Pelletgefüges aus
Stab 4T, Pellet 5, Experiment HFR-1,
~ 200-fache Vergrößerung

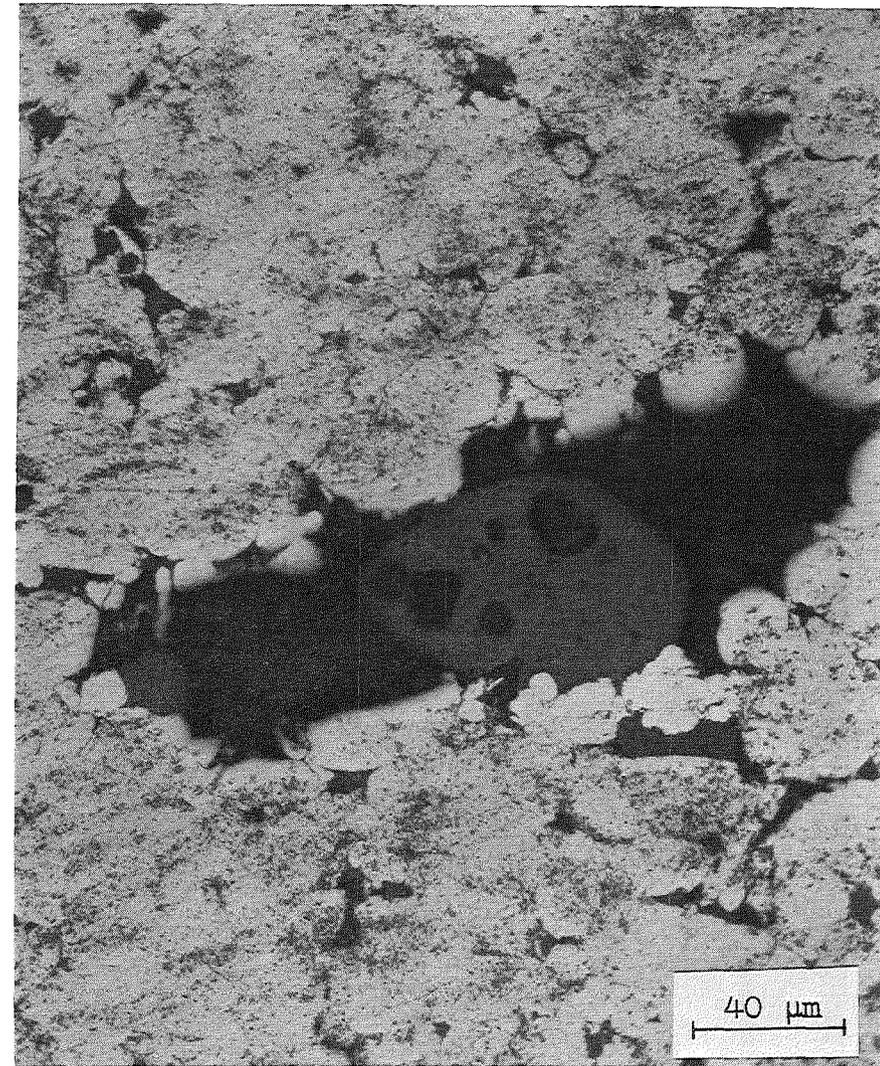


Abb. 4.16: Detail nach Abb. 4.15,
~ 500-fache Vergrößerung

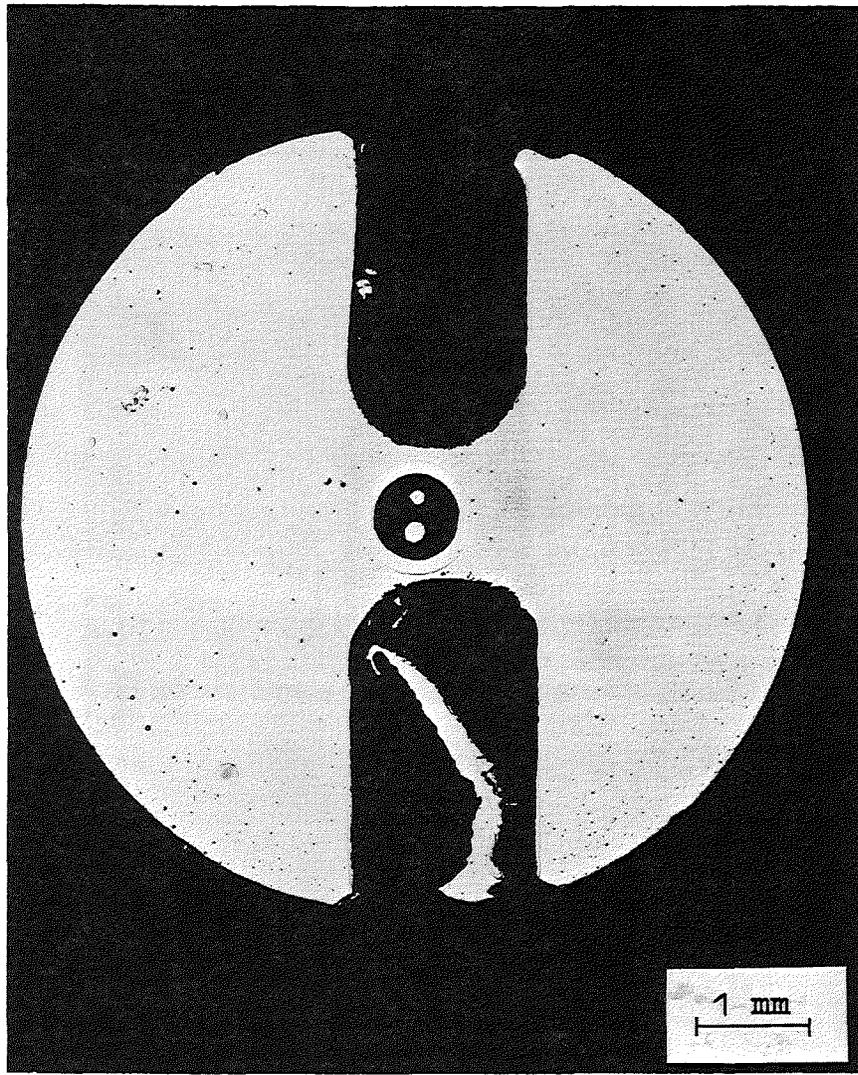


Abb. 4.17: Querschliff durch Stopfen des Stabes 4T,
Thermoelementdurchführung,
~ 15-fache Vergrößerung

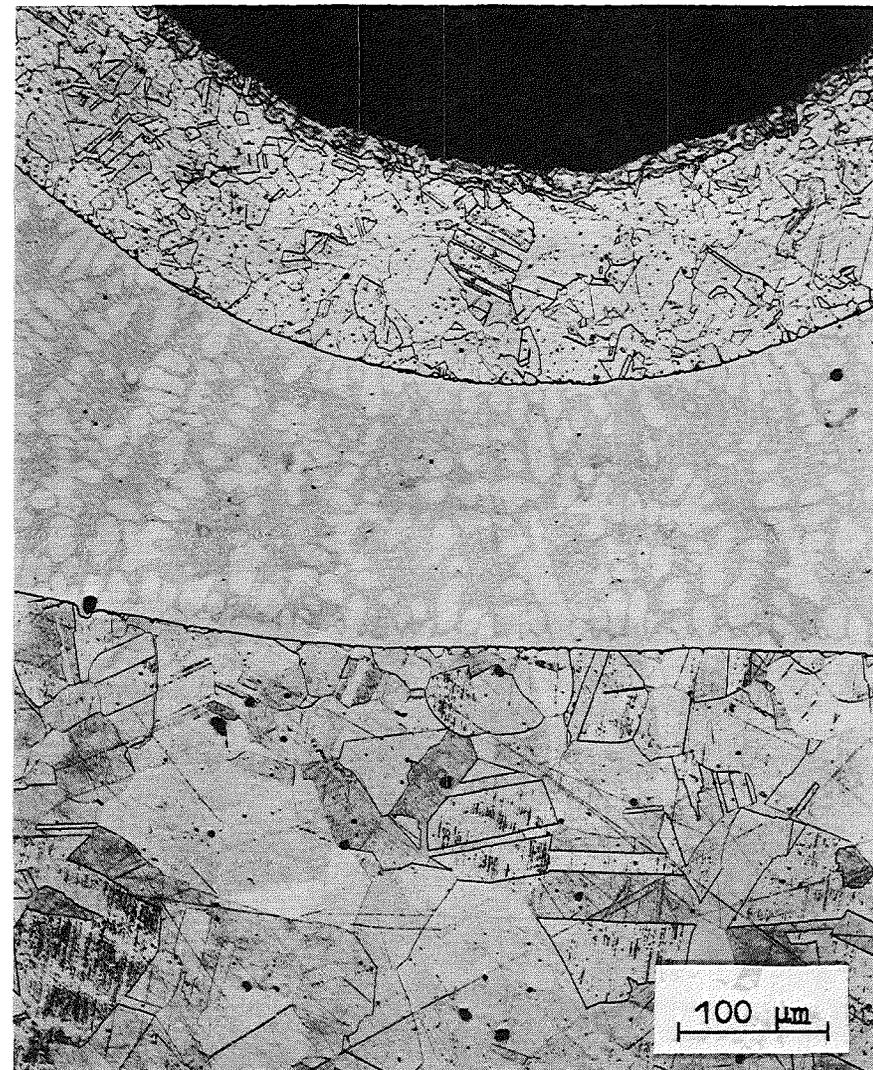


Abb. 4.18: Detail nach Abb. 4.17,
~ 200-fache Vergrößerung

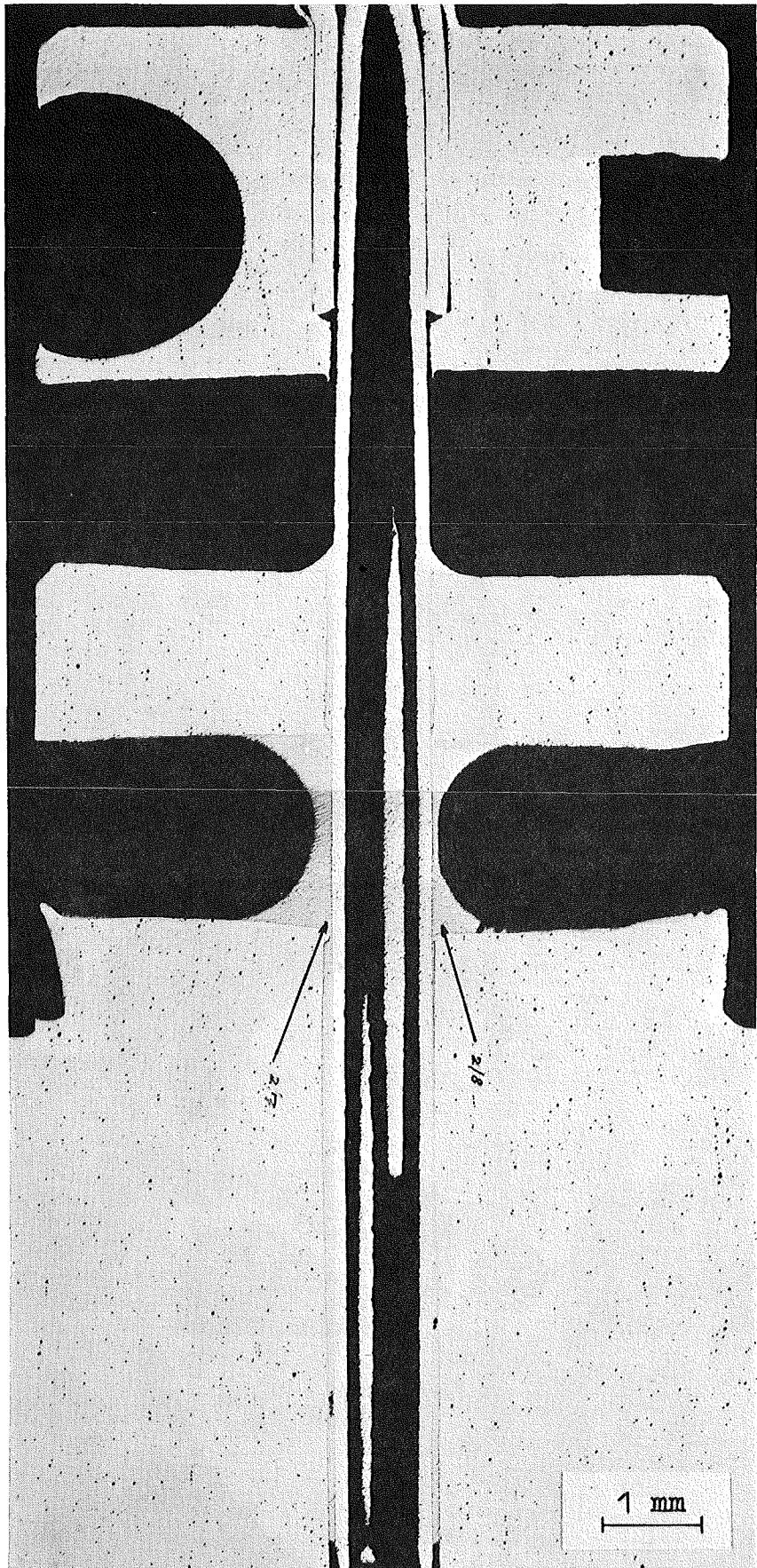


Abb. 4.19: Längsschliff durch Stopfen des Stabes 2T, Thermoelement-
durchführung, ~ 15 -fache Vergrößerung



Abb. 4.20: Detail nach Abb. 4.19,
~ 200-fache Vergrößerung



Abb. 4.21: Detail nach Abb. 4.19,
~ 500-fache Vergrößerung

4.7. Bestimmung der durch Bestrahlung erzeugten Gasmengen

Das experimentelle Untersuchungsprogramm zur Feststellung der erzeugten Gasmengen in den bestrahlten Prüflingen erfolgte zur Bestimmung

- der freien Spaltgas- und Heliummenge V_F
- des freien Volumens innerhalb der Hülle V_O
- der im Pellet gebundenen Spaltgas- und Heliummenge V_G

Zu diesem Zweck wird der Prüfling zuerst an der Stirnseite des oberen Stopfens angebohrt und das freie Spaltgas und Helium unter Stickstoff-Spülung abgezogen. Die Zusammensetzung des Gases wird gaschromatographisch ermittelt, wobei die Menge an Xe, Kr und He quantitativ bestimmt wird. Anschließend erfolgt eine manometrische Messung des freien Volumens (Hohlräume, offene Poren) innerhalb der Prüflingshülle.

Für die weitere Bestimmung des im Pellet gebundenen Gasanteils - nämlich des in geschlossenen Poren des Cermet-Gefüges sowie innerhalb des Gittergefüges der Kornstruktur gebundenen und mit den übrigen Hohlräumen des Bestrahlungsstabes nicht in Verbindung stehenden Gasanteils - wird jeweils ein Pellet verwendet.

Im Bereich der Brennelement-Nachuntersuchungen ist es üblich, den gebundenen bzw. gelösten Gasanteil getrennt zu untersuchen und deshalb einzelne Brennstoffpellets zunächst in einer gasdichten Kugelmühle mechanisch zu zerkleinern /61/. Dies war hier nicht möglich, da das Aluminium in der Kugelmühle zu stark schmierte und das Pellet daher nicht mehr pulverisierbar war. Die Pellets wurden deshalb in NaOH und HNO_3 aufgelöst. Dabei wird der im Pellet gebundene und gelöste Gasanteil freigesetzt und anschließend bestimmt. Nachdem sich bald herausstellte, daß das Auflösen des Oxid-Anteils in HNO_3 keine weitere meßbare

Gaszunahme brachte, wurde schließlich auf das Lösen in HNO_3 verzichtet.

Die Tab. 4.6 gibt die gemessenen Werte an freiem Gas sowie den daraus resultierenden Betriebsdruck bei einer hier angenommenen Betriebstemperatur von 280°C an. Die gemessenen Gasmengenangaben in mm^3 beziehen sich auf 20°C und 760 Torr.

In Tab. 4.7 sind die erhaltenen Werte für das im Pellet gebundene Helium angegeben. Andere Bestandteile konnten nicht nachgewiesen werden. Die Messungen wurden jeweils nur an einem Pellet durchgeführt, die Meßergebnisse wurden daher auf einen gesamten Bestrahlungsstab umgerechnet, mit den Werten aus Tab. 4.6 bilanziert und mit den theoretisch errechneten "Solldaten" verglichen.

In Anbetracht der vielen Unsicherheitsfaktoren, die sowohl in die Messung als auch in die Berechnung der entstandenen Gasmengen eingehen, stimmen beide Werte sehr gut, mit einer Fehlerbreite von ca. $\pm 25\%$ überein.

Als Bestätigung des Auslegungskonzepts der Bestrahlungsstäbe - und das ist das wesentliche Ergebnis dieser Untersuchungen - stellte sich heraus, daß nur etwa $1/5$ des in den Pellets erzeugten Gases in die freien Stabvolumina freigesetzt wird, der Rest wird - wie mit dem Stabkonzept angestrebt - in den Poren des Pellets zurückgehalten.

Tab. 4.6: Freie Gase und Betriebsdruck in den Prüflingen

Experiment	Stab Nr.:	Freies Gas (mm ³)			Freies Volumen (mm ³)	Betriebsdruck bei 250°C (atm)
		Kr	Xe	He		
Mo1 14-1.	10C	nb	nb	5292	1961	5.27
Mo1 14-2	11C	nb	nb	4785	1940	4.82
HFR-1	1	55.4	nb	14700	1891	15.23
	4	nb	nb	5000	1874	5.21
	6	52.8	nb	14500	1815	15.65
	7	30.9	nb	9000	1830	9.63
	1T	nb	nb	fm	1841	fm
	2T	nb	nb	1700	1820	1.82 ⁺
	4T	11.0	nb	7400	1831	7.90
HFR-2	1C	nb	nb	3800	1089	6.81
	3C	fm	fm	12900	933	26.99
	6C	24.0	43.0	15600	1069	28.61
	8C	nb	nb	5100	1007	9.89
	9C	25.0	52.0	13900	1216	22.44
HFR-3	13C	nb	nb	5360	1645	6.24
	15C	nb	58.0	5240	1555	6.65
	16C	nb	66.0	5310	1577	6.66

fm = Fehlmessung

nb = nicht bestimmbar (Nachweisgrenze: Kr = 10 mm³, Xe = 60 mm³)

+ = unsicherer Wert, He-Leckage möglich

Tab. 4.7: Gebundene Gase in den Prüflingen

Experiment	Stab Nr. / Am-Gehalt (g)	Gebundenes Gas (mm ³)	Freies Gas (mm ³)	Gas gesamt (mm ³)	Soll (mm ³)	Abweichung (%)
HFR-1	1T / 1.95	16300	fm	fm	15600	fm
	2T / 1.95	10500	1700 ⁺	12200 ⁺	15600	-21.8
	4T / 1.95	6850 ⁺	7400	14250	15600	- 8.7
HFR-2	1C / 1.95	23000	3800	26800	39000	-31.3
	3C / 4.36	65300	12900	78300	87200	-10.3
	6C / 4.36	75600	15600	91200	87200	4.6
	8C / 1.95	52800	5100	57900	46800	23.7
	9C / 4.36	95300	13900	109200	87200	25.2

fm = Fehlmessung

+ = unsicherer Wert, He-Leckage möglich

4.8. Langzeituntersuchungen an Pellets

Um feststellen zu können, inwieweit durch den durch α -Zerfall des Cm-242 bedingten fort dauernden inneren Druckaufbau durch Helium Gefügeänderungen bzw. Schäden an der geometrischen Integrität der Pellets auftreten können, wurden einige Pellets unmittelbar nach der Entnahme aus den Hüllrohren wiederum in Kapseln eingeschweißt und daraufhin über 0.5 bzw. 1 Jahr gelagert. Anschliessend erfolgte jeweils eine Analyse der Gasfüllung der Kapseln wie in Kap. 4.7 beschrieben. Eine mechanische Beschädigung der Pellets, die nach diesen Lagerzeiten einem Mehrfachen an innerem Gasdruck ausgesetzt waren, in Form von Rissen oder Sprüngen, konnte nicht festgestellt werden. In Tab. 4.8 sind die gemessenen Werte der Gasanalysen an diesen Pellets zusammengestellt. Diese Messungen sind ein gewisses Indiz dafür, daß durchaus auch Langzeitbestrahlungen von AmO_2 mit Bestrahlungszeiten von 1 Jahr und darüber und die daraus resultierenden Innendruckbelastungen mit der oben beschriebenen Technik möglich sein dürften, da sich die Gaserzeugung durch Heliumbildung dann bereits einem Gebiet der Sättigung nähert und der Beitrag durch Spaltgase gering bleibt.

Tab. 4.8: Gasanalysen an länger gelagerten Proben

Lagerzeit (a)	freies Gas (mm^3)		gebundenes Gas (mm^3)		Gas Soll (mm^3)		Abweichung (%)
	0.5	1	0.5	1	0.5	1	
HFR-1	nb	-	22800	-	20800	-	9.6
	-	nb	-	32600	-	33400	- 2.4
	-	nb	-	29100	-	33400	-12.8
HFR-2	-	50	-	38600	-	42200	- 8.5
	-	23	-	3700	-	42200	-12.5
HFR-3	301	-	29200	-	31200	-	- 6.4
	-	67	-	33000	-	34400	- 4.1
	-	10	-	29000	-	34400	-15.7

nb = nicht bestimmbar, Meßgrenze 10 mm^3

4.9. Diskussion der Nachbestrahlungsuntersuchungen

Während der Durchführung der Bestrahlungen waren einige kleinere "Pannen", wie z.B. Temperaturexkursionen, Korrosion von Strukturmaterialien der Bestrahlungseinsätze, vorgekommen, die z.T. den vorzeitigen Abbruch der Bestrahlungen aus Gründen der Vorsicht geboten sein ließen. Aufgrund der Nachbestrahlungsuntersuchungen an den bestrahlten Prüflingen kann festgestellt werden, daß in keinem Fall auch nur geringe Anzeichen dafür deutlich geworden wären, daß z.B. für die an den Meßstellen aufgetretenen Temperaturexkursionen irgendetwas Auslegungsmängel an den Bestrahlungsstäben oder ein Fertigungsfehler verantwortlich gewesen wäre. Das Nachuntersuchungsprogramm hat keine Gründe geliefert, Änderungen an der Auslegung oder am Fertigungsverfahren aus Gründen der sicheren Durchführbarkeit solcher Bestrahlungen vorzunehmen. Eher im Gegenteil gibt es Anzeichen dafür, daß durchaus höhere Belastungen in Form von längeren Bestrahlungszeiten möglich sein dürften.

Einschränkend muß an dieser Stelle jedoch daraufhingewiesen werden, daß es sich bisher nur um wenige prototypische Bestrahlungen gehandelt hat, die noch keinerlei statistische Zuverlässigkeitsaussage zulassen. Dieser statistische Beweis der Dauerhaftigkeit der Bestrahlungsstäbe kann letztlich nur empirisch durch eine Vielzahl von Bestrahlungen gleichen Typs bei ständig gleichbleibender Kontrolle von sowohl Fertigung als auch Bestrahlungsergebnis erbracht werden.

5. Ausblick auf Durchführungsmöglichkeiten von Bestrahlungen in Leistungsreaktoren

Die rasche Korrosion der Al-Strukturteile des Bestrahlungseinsatzes beim Experiment HFR-1 hat gezeigt, daß unter den in Leistungsreaktoren üblichen Bedingungen der Kühlung (Kühlmitteltemperatur $> 280^{\circ}\text{C}$, $\text{pH} \sim 6$) keine Aluminium-Teile verwendet werden dürfen. Die Strukturteile wurden daher durch Teile aus Edelstahl bzw. Zircaloy-4 ersetzt. Andererseits bestand das Innere der Bestrahlungsstäbe weiterhin im wesentlichen aus Aluminium. Dies würde aber im Falle des Auftretens von Hüllrohrschäden ein Auslaugen des Stabinneren sehr begünstigen. In Hinblick auf die zukünftig auch mögliche Einsetzbarkeit der Stäbe in Leistungsreaktoren, wurde daher erwogen, das Matrixmaterial Aluminium durch ein unlösliches Material mit ähnlich guten Herstellbarkeits-Eigenschaften zu ersetzen, wobei, zur Vermeidung zu hoher n-Flußdepression auf ebenfalls niedrigen Neutronenabsorptionsquerschnitt geachtet werden mußte. Die Wahl fiel hierbei auf Kohlenstoff, der im Reaktorbau von den frühesten Anfängen her verwendet wird. Aus dem Bereich der Brennelementfertigung für Hochtemperaturreaktoren gibt es heute bereits mit Kunstharzbindemitteln versetzte Kohlenstoffpulver, die sich hervorragend zu Pellets pressen lassen. Durch ein anschließendes Temperaturprogramm werden die Bindemittel thermisch unter Schutzgasatmosphäre oder im Vakuum zersetzt und teilweise in Kohlenstoff übergeführt; Restbestandteile verflüchtigen sich gasförmig. Gleichzeitig ergibt sich - einem Sintervorgang ähnlich - eine hohe Festigkeit des Preßlings.

Für die im Rahmen dieser Arbeit nur orientierend durchgeführten Vorversuche konnte in kleiner Charge auf eine Graphitmischung der Firma NUKEM, Hanau, zurückgegriffen werden, die diese für die Herstellung der kugelförmigen Brennelemente des AVR/Jülich verwendet.

Im Experiment HFR-4 wurden 3 Versuchskapseln mit jeweils 3 Pellets mit Kohlenstoff als Matrixmaterial mitbestrahlt. Die Kapseln waren gemäß Abb. 5.1 gefertigt und entsprachen in ihrem wesentlichen Aufbau den bisher verwendeten Bestrahlungsstäben, wurden jedoch in ihrer Hüllrohrlänge verkürzt, da nur 3 statt bisher 10 Pellets eingeladen wurden. Der Am-Gehalt je Pellet entsprach mit 627 mg der gleichen Volumenkonzentration wie bei den früher benutzten AmO_2/Al -Pellets mit 25 Gew.% AmO_2 (vgl. Tab. 3.3, S. 62/63). Der Herstellungsprozeß der Pellets konnte völlig analog zu dem früher mit AmO_2/Al -Pellets praktizierten durchgeführt werden, vereinfachte sich sogar insofern, als der Preßvorgang kein Gleitmittel für die Schmierung der Matrize mehr benötigte. Die Gleiteigenschaften des Kohlenstoffpulvers selbst sind so gut, daß aus der Matrize hochglänzende Pellets ausgestoßen werden können. Die Abb. 5.2 zeigt Röntgendurchstrahlungsaufnahmen von den fertiggestellten AmO_2/C -Bestrahlungskapseln.

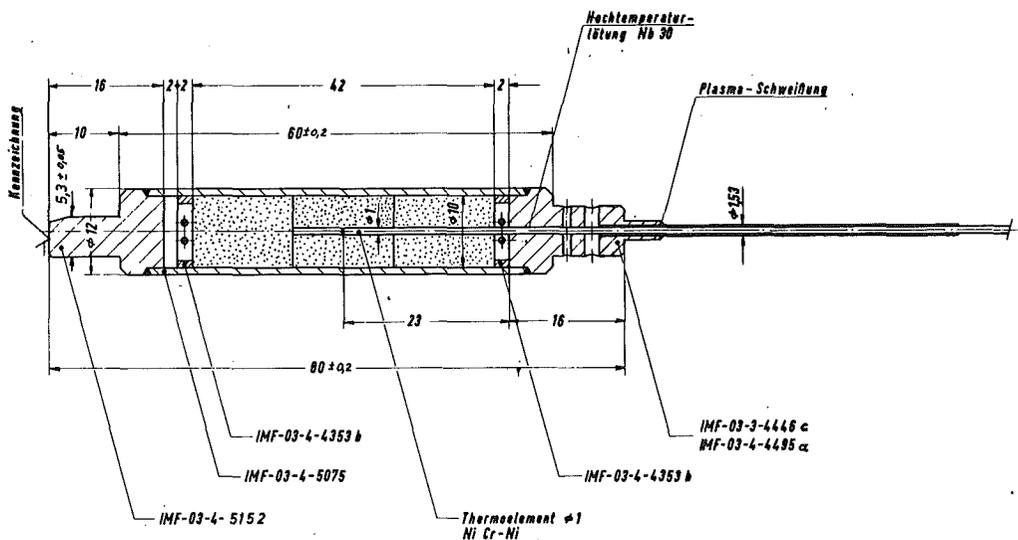


Abb. 5.1: Bestrahlungsstab für AmO_2/C -Pellets

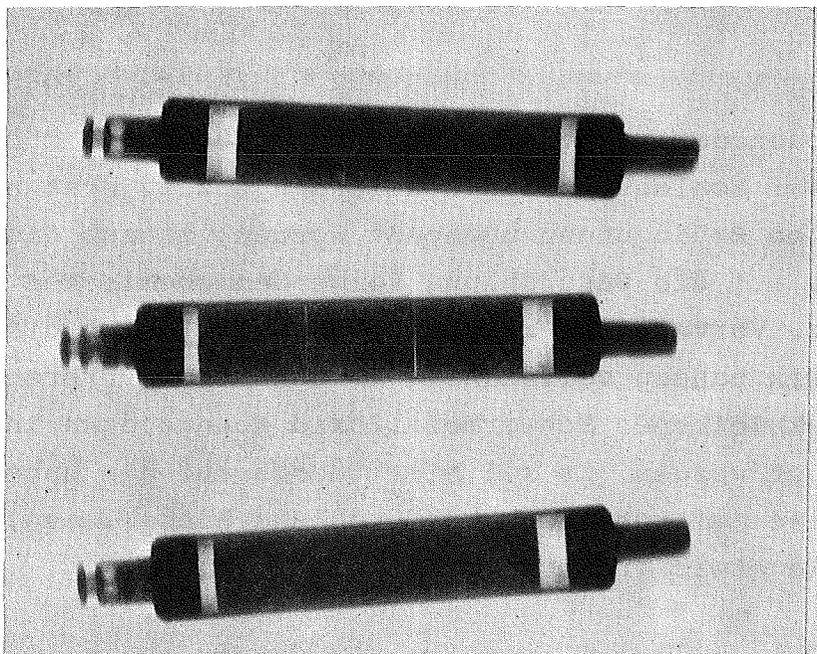


Abb. 5.2: Röntgendurchstrahlungsaufnahmen von Bestrahlungsstäben mit AmO_2/C -Pellets

Aus der homogenen Grauschattierung im Pelletbereich der Aufnahmen der Abb. 5.2 wird deutlich, daß es keine Schwierigkeiten bereitete, eine ähnlich gute Homogenität der Pellet-Mischung zu erzielen wie mit Aluminium-Matrix (vgl. Abb. 3.15, S. 83).

Die Bestrahlung verlief - abgesehen von einer abermaligen Exkursion der Zentraltemperaturmessung, die aber durch dieselben Mechanismen, wie oben beschrieben, erklärbar ist - ohne Störungen. Bei Entnahme der Pellets in den Heißen Zellen konnten keine Veränderungen festgestellt werden.

Diese ersten Experimente mit Pellets auf Kohlenstoff-Basis als Matrixmaterial hatten nur orientierenden Charakter. Sie zeigten jedoch, daß wesentliche Unterschiede im Bestrahlungsverhalten nicht zu erwarten sind. Vorteilhaft zu bewerten ist die einfachere Herstellbarkeit der Pellets sowie die höhere

Betriebssicherheit wahren der Bestrahlung, falls Hullrohrschaden auftreten sollten, was nie restlos ausschliebar sein wird.

Die Methoden der Nachbestrahlungsuntersuchungen muten fur Pellets auf Kohlenstoffbasis allerdings z.T. erst noch an die veranderten Bedingungen angepat werden, ebenso die Eingangsstufe des auf die Bestrahlung folgenden chemischen Trennungsprozesses. Vorversuche zeigten jedoch, da sich die Kohlenstoffmatrix nahezu vollstandig im Luftstrom verbrennen lat, das zuruckbleibende Schwermetalloxid konnte dann in heier HNO_3 gelost werden. Es sei hier jedoch auf die dabei moglicherweise auftretenden Abgasprobleme hingewiesen, wenn dieser Prozess in etwas groerem Mastab betrieben wird.

6. Diskussion

In der hier vorliegenden Arbeit wurde zunächst durch theoretische Betrachtung das langfristige Schadenspotential der Actinidenfraktion im abgebrannten Brennstoff von Leichtwasserreaktor (LWR) und Schnellem Brutreaktor (SBR) einander gegenübergestellt. Durch Analyse der nuklidspezifischen Einzelbeiträge konnte hierbei gezeigt werden, daß ein wesentlicher Beitrag zum langfristigen Schadenspotential auf das Am-241 bzw. dessen durch radioaktiven Zerfall entstehende Tochternuklide zurückzuführen ist; gerade dieses Nuklid ist aber heute bereits im nuklearen Brennstoffzyklus, nämlich als Abfallprodukt bei der Herstellung Pu-haltiger Brennelemente, in Mengen verfügbar, die experimentelle Untersuchungen zum Problemfeld der Actinidenrezyklierung im größeren Labormaßstab zulassen. In jüngerer Zeit war mehrfach diskutiert worden, ob durch eine Rückführung der bei der Kernenergieerzeugung entstehenden Actiniden in die Reaktoren und wegen der damit verbundenen Überführung der langlebigen α -Strahler in kürzerlebige β/γ -Strahler (Spaltprodukte) das Langfristproblem der Lagerung radioaktiver Abfälle in ein Problem von einigen wenigen hundert Jahren Dauer überführt werden könne.

Für experimentelle Untersuchungen zu diesem Problemfeld kann heute nur auf Am-241 zurückgegriffen werden, das aber - wie gezeigt wurde - sowohl als Referenznuklid geeignet ist, als auch zukünftig in ausreichender Menge zur Verfügung stehen wird.

Durch theoretische Überlegungen konnte gezeigt werden, daß sich durch Abtrennung des Am-241 und dessen anschließende mehrfache Rezyklierung - als eine unter mehreren Fallstudien - das Schadenspotential von Am-haltigen Abfallösungen, wie sie heute bei der Herstellung Pu-haltiger Brennelemente anfallen, um etwa 2 Größenordnungen reduzieren läßt, wobei alle bei den notwendigen Manipulationen anfallenden Teilabfallmengen berücksichtigt wurden.

Im weiteren Verlauf der vorliegenden Arbeit wurde der Schwerpunkt auf die Erarbeitung der experimentellen Voraussetzungen zur Rückführung von Actinidennukliden in Reaktoren gelegt.

Aufbauend auf dem der Literatur entnehmbaren Stand der Technik, der in der vorliegenden Arbeit nochmals kurz zusammengestellt wurde, wurde ein Konzept für die Herstellung und Bestrahlung von Stäben mit AmO_2 -Füllung entwickelt. Dieses wurde in seinen wesentlichen Randbedingungen - im Gegensatz zu bisher durchgeführten Experimenten - so gestaltet, daß bei einer evtl. späteren Fortführung dieser Arbeit, sowohl der Übergang von einer labormäßigen zu einer technischen Herstellung der Bestrahlungsstäbe als auch nach Art der verwendeten Materialien und Dimensionierung der Stäbe ein späterer Übergang von Forschungsreaktoren auf Leistungsreaktoren für die Durchführung der Bestrahlungen ermöglicht würde.

Gerade die Möglichkeit der Bestrahlung von Stäben mit Actinidenfüllung in Leistungsreaktoren wurde in der Vergangenheit bei der Diskussion der Rezyklierung von Actiniden in Reaktoren immer wieder in Frage gestellt. Aus diesem Grunde wurden für die in dieser Arbeit durchgeführten Experimente im wesentlichen Leistungsreaktor-Bedingungen simuliert, d.h. die Druck- und Temperaturverhältnisse des Kühlmittels entsprachen während der Bestrahlung den Verhältnissen im Primärkreislauf eines Leistungsreaktors.

Es konnte hiermit erstmals gezeigt werden, daß - selbst mit Stäben, die das Am-Oxid in einer Aluminium-Matrix eingebettet enthalten - Bestrahlungen mit technisch sinnvollem Gehalt an Americium pro Stablänge, nämlich bis ca. 0,5 g/cm, durchgeführt werden können, ohne daß ein Aufschmelzen und damit eine Zerstörung der mechanischen Integrität der Matrix befürchtet werden muß. Dennoch wird aus Gründen der höheren Korrosionsbeständigkeit des Matrixmaterials gegenüber dem Kühlmedium (als Vorsichtsmaßnahme für den Fall eintretender Hüllrohrschäden) bei einer evtl. Fortführung dieser Arbeit eine Umstellung auf Kohlenstoff-Matrix, unter Beibehaltung

aller anderen Parameter, empfohlen. In ersten orientierenden Versuchen konnte die prinzipielle Eignung von Kohlenstoff als Matrix-Material bereits in dieser Arbeit untersucht werden.

Insgesamt wurden in dieser Arbeit ca. 115 g AmO_2 bestrahlt. Dabei wurde zwischenzeitlich eine α -Aktivität von über 20 000 Ci in Form von Cm-242 erzeugt und hantiert. Die Ergebnisse der Nachbestrahlungsuntersuchungen ergaben keine Hinweise darauf, daß aus Gründen der sicheren Durchführbarkeit der Bestrahlungen Änderungen an der Auslegung oder am Fertigungsverfahren vorgenommen werden müßten. Es gibt vielmehr einige Anzeichen dafür - z. Bsp. nur geringe Freisetzung von Gasen in die freien Stabvolumina -, daß durchaus höhere Belastungen in Form von längeren Bestrahlungszeiten, als in dieser Arbeit vorgesehen, möglich sein dürften.

Es muß an dieser Stelle jedoch daraufhingewiesen werden, daß aus Zeit- und Kostengründen in dieser Arbeit nur einige wenige prototypische Bestrahlungsexperimente durchgeführt werden konnten; aus dem insgesamt positiven Verlauf der Bestrahlungen läßt sich daher noch keine statistische Zuverlässigkeitsaussage ableiten. Ähnlich einschränkend müssen die Ergebnisse der Nachbestrahlungsuntersuchungen gewertet werden, da hier die Untersuchungsmethoden zum Teil mit einer erheblichen methodischen Fehlerbreite verbunden sind und somit eine höhere Meßgenauigkeit letztlich nur durch eine Vielzahl von Meßergebnissen erzielbar wäre.

Insofern muß die vorliegende Arbeit noch einschränkend in dem Sinn gesehen werden, daß mit dem vorgeschlagenen Konzept zwar der richtige Weg eingeschlagen wurde, in Details jedoch die statistische Beweisführung für die Dauerhaftigkeit der Bestrahlungsstäbe noch aussteht. Dieser Beweis kann - wie aus der Entwicklung nuklearer Brennelemente bekannt - nur empirisch durch eine Vielzahl von Bestrahlungen gleichen Typs bei ständig gleichbleibender Kontrolle von sowohl Fertigung und Bestrahlungsbedingungen als auch des Bestrahlungsergebnisses erbracht werden.

Der Lösung des Problems der Reduktion des Schadenspotential von α -Strahlern durch Rückführung in Reaktoren konnte mit dieser Arbeit ein kleiner Baustein hinzugefügt werden. Eine Weiterführung dieser Arbeiten erscheint wegen der o.g. Gründe für den zu treibenden Aufwand jedoch erst dann zweckmäßig, wenn es auch in den, in dieser Arbeit nicht untersuchten, Punkten, z. Bsp.

- der Verbesserung der Ausbeute für die Abtrennung von Actiniden aus Actiniden/Spaltproduktmischungen
- der Konditionierbarkeit der bei solcher Abtrennung entstehenden Sekundärabfälle

gelingen sollte, die Realisierbarkeit experimentell etwas deutlicher zu machen.

Daneben muß jedoch auch noch die - nicht experimentell lösbare - Frage nach der möglicherweise eintretenden Veränderung des Gesamtrisikos der nuklearen Energieerzeugung beantwortet werden. Aufgrund der Erhöhung der Gesamtzahl der notwendigen Hantierungsschritte mit radioaktivem Material, kann evtl. die Erniedrigung des Einzelrisikos der Abfallendbeseitigung, die in dieser Arbeit aufgezeigt wurde, wieder aufgehoben oder gar ins Negative verkehrt werden. Diese Frage bedarf einer sehr sorgfältigen Klärung, da heute bereits Beispiele im nukleartechnischen Bereich aufzeigbar sind, in denen durch Optimierung an Teilaspekten das Gesamtsystem ständig komplexer wurde.

Abschließend sei auch noch die Frage nach der Höhe der entstehenden Kosten angesprochen. Auch wenn hier nicht die These vertreten werden soll, daß eine möglicherweise erreichbare Erniedrigung des Gesamtrisikos nicht ihren Preis wert sein dürfe, muß doch sichergestellt sein, daß sich der entstehende Aufwand in vernünftiger Relation zu den Stromgenehmigungskosten bewegt. Es ist einleuchtend, daß aus den für die Durchführung der Prototypbestrahlungen dieser Arbeit notwendigen Aufwendungen eine Extrapolation auf technische Größenordnungen nicht

möglich ist. Hierfür sind detaillierte Untersuchungen über Personal- und Kostenstrukturen der benötigten Anlagen und ferner neben der Kenntnis der zu verwendenden Bestrahlungstechnologie auch genaue Kenntnisse über die technische Ausstattung der benötigten Anlagen erforderlich.

Bezüglich des Gesamtsystems Abfallendbeseitigung sollte daher die vorliegende Arbeit in diesem durchaus selbstkritischen Licht gesehen werden.

7. Literatur

- /1/ R. Gasteiger, G. Höhle, Behandlung radioaktiver Abfälle aus Wiederaufarbeitungsanlagen, Atomwirtschaft 20, S.350 (Juli/August 1975)

- /2/ Erste Verordnung über den Schutz vor Schäden radioaktiver Stoffe (Erste Strahlenschutzverordnung) vom 15.Okt.1965, Bundesgesetzblatt Teil I, S.1661, §21, Absatz 1, Punkt 2 (1965)

- /3/ Verordnung über den Schutz vor Schäden durch ionisierende Strahlen (Strahlenschutzverordnung - StrlSchV) vom 13.Okt.1976, Bundesgesetzblatt Teil I, S.2915, §28, Absatz 1, Punkt 2 (1976)

- /4/ H.C. Claiborne, Neutron-Induced Transmutation of High-Level Radioactive Waste, ORNL-TM-3964 (1972)

- /5/ M.V. Gregory, M. Steinberg, A Nuclear Transformation System for Disposal of Long-Lived Fission Product Waste in an expanding Nuclear Power Economy, BNL-11915 (1967)

- /6/ M.Steinberg, G.Wotzak, B. Manowitz, Neutron Burning of Long-Lived Fission Products for Waste Disposal, BNL-8558 (1958)

- /7/ W.-J. Schmidt-Küster, Das Entsorgungssystem im nuklearen Brennstoffkreislauf, Atomwirtschaft 19, S.340 - 45 (Juli 1974)

- /8/ W.-J. Schmidt-Küster, M. Popp, 20 Jahre Kernenergieentwicklung in der Bundesrepublik Deutschland, Atomwirtschaft 20, S.22 (Januar 1975)

- /9/ W.-J. Schmidt-Küster, Internationale Strukturen des nuklearen Brennstoffkreislaufs, Atomwirtschaft 20, S.285 (Juni 1975)

- /10/ P. Zühlke, Wiederaufarbeitung an der Schwelle zur wirtschaftlichen Nutzung, Atomwirtschaft 19, S.350 (Juli 1974)

- /11/ M. Hagen, R.P. Randl, Behandlung und Beseitigung radioaktiver Abfälle in staatlicher Sicht, Atomwirtschaft 21, S.338 (Juli 1976)

- /12/ M. Hagen, Die Rolle des Bundes und der Forschungszentren bei der Entsorgung der Kerntechnik, Symp. d. DATF "Entsorgung der Kerntechnik", Mainz, 19./20. Januar 1976

- /13/ W. Seelmann-Eggebert, G. Pfennig, H. Münzel, Nuklidkarte, 4.Auflage, Gersbach & Sohn (1974)

- /14/ K. Hnilica, H.P. Holley, K. Lahner, H. Schmale, Economic Alternatives for the Long-Term Use of Plutonium produced in Light Water Reactors, Nucl. Technol. 31, S.56 (Oct 1976)

- /15/ R. Bachmann, Stand und Entwicklung der Kernkraftwerke (KKW) sowie die Verteilung auf KKW-Typen, Systemstudie "Radioaktive Abfälle in der BRD", Bericht SRA-1, NUKEM GmbH, Hanau (August 1974)

- /16/ USAEC, Nuclear Power 1973-2000, WASH-1139 (1972)

- /17/ U. Braatz, C. Colhoun, Der Markt für Kernbrennstoffe, Jahrbuch der Atomwirtschaft 1974, S.A31-A42, Handelsblattverlag, Düsseldorf (1975)

- /18/ Energieprogramm der Bundesregierung, Bundestagsdrucksache 7/1057, 7. Wahlperiode, 3.10.1973

- /19/ Bundesminister für Wirtschaft, Erste Fortschreibung des Energieprogramms der Bundesregierung (1974)

- /20/ R. Schröder, J. Wagner, Überlegungen zur Einführung schneller Brutreaktoren im DeBeNeLux-Bereich, KFK-Ext. 25/75-1 (1975)

- /21/ R. Gasteiger, Abbrandrechnungen für LWR-Brennstoff als Datenbasis zur Auslegung von Wiederaufarbeitungsanlagen, KFK-2373 (1976) S. 2 und 3

- /22/ K. Kuhn, K. Koch, Beschreibung einer Anlage für die Konversion von Plutoniumnitrat, Kerntechnik 15 Nr.6 (1973), S. 257 - 63

- /23/ W. Häfele, A.S. Manne, Strategies for a Transition from Fossil to Nuclear Fuels, Research Report des IIASA, Laxenburg, Österreich, RR-74-7 (June 1974)

- /24/ Report of the ICRP Committee II on Permissible Dose for Internal Radiation, Health Physics 3 (1959)

- /25/ H.C. Claiborne, Effect of Actinide Removal on the Long-Term Hazard of High-Level Waste, ORNL-TM-4724 (1975)

- /26/ Code of Federal Regulations, Title 10, Part 20, Col.2 US Government Printing Office (1965)

- /27/ H.O. Haug, Anfall, Beseitigung und relative Toxizität langlebiger Spaltprodukte und Actiniden in den radioaktiven Abfällen der Kernbrennstoffzyklen, KFK-2022 (1975)

- /28/ F. Gera, D.G. Jacobs, Hazard Potentials of Radioactive Waste, Proc. Int. Symp. in Radioecology Applied to the Protection of Man and his Environment, Rom (Sept. 1971)

- /29/ Anonym, Siting of Fuel Reprocessing Plants and Waste Management Facilities, ORNL-4451 (1971)
- /30/ P.M. McGrath, Radioactive Waste Management - Potentials and Hazards from a Risk Point of View, KFK-1992 (1974)
- /31/ Persönl. Mitteilung, ALKEM GmbH, Hanau
- /32/ R. Gasteiger, Vergleich der Ausgangsmaterialien - Np-237, Am-241 - für die Herstellung von Pu-238, (1973), unveröffentlicht
- /33/ R. Gasteiger, Problematik der Kreislaufunterstützungs- und -ersatzsysteme mit nuklearer Energieversorgung, (1973), unveröffentlicht
- /34/ H.-J. Born, G.Höhlein u.a., Anlage zur vollständigen Aufarbeitung von Actiniden-Targets im Multicuriebereich, Kerntechnik 12, S. 75 - 80 (1970)
- /35/ S. Specht, Herstellung und Säulenchromatographische Isolierung von "biomedical grade" Plutonium-238, Dissertation, TU-München (1971)
- /36/ M. Coquerelle, Résultats des examens post-irradiation effectués sur une capsule d'aluminium accidentée, (1969), unveröffentlicht
- /37/ Semi-annual report of the department of chemistry, CEA-N-1148, Übersetzung ANL-Trans 801 Sections 10 u.12 (1970)
- /38/ J.D. Sease, Fabrication and preirradiation data of HFIR target elements for Savannah River irradiations, ORNL-TM-1095 (1965)

- /39/ J.D. Sease, D.M. Hewette, Fabrication and preirradiation data for HFIR prototype target rods, ORNL-TM-811 (1964)
- /40/ V.C.A. Vaughen, W.T. McDuffee u.a., The preparation of multigram quantities of Cm-242 for SNAP-11, Nucl. Appl., Vol. 6 (1969)
- /41/ W.Hebel, Bestrahlung von Americium-241 (1971), unveröffentlicht
- /42/ J.E. Cunningham, Severe Radiation Damage to Aluminium Alloys, ORNL-TM-2138 (1968)
- /43/ J.G. Cohner et al., A Compendium of Properties and Characteristics for Selected Materials, BMI-1900 (1968)
- /44/ R.E. Myrick, R.L. Folger, Fabrication of Targets for Neutron Irradiation of Neptunium Dioxide, I & EC Process Design and Develop., Vol. 3, No. 4 (1964), S. 309 - 13
- /45/ W.C. Thurber, A.L. Lotts, Development of Procedures and Equipment for Fabrication of the High-Flux Isotope Reactor Target Rods, 10th Hot Lab Proc., ANS (Nov 1962)
- /46/ Anonym, Chem. Techn. Div. Annual Progress Report for Period End. May 31, ORNL-4272 (1968), S. 113
- /47/ R. Gasteiger, ACTINID - Ein Programmsystem zur Darstellung der Konversionsraten bei der Bestrahlung von Actiniden in thermischen Reaktoren, (1974), unveröffentlicht
- /48/ C.H. Westcott, Effective Cross Section Values for Well-Moderated Thermal Reactor Spectra, CRRP-960 (1960)

- /49/ J.A. Smith, C.J. Banick, R.L. Folger, H.P. Holcomb, I.B. Richter, Reactor Cross Sections for Pu-242 through Cf-252, Neutron Cross Sections and Technology, NBS Special Pub. No. 299 (1968) S. 1285
- /50/ R.L. Folger et al., Foil Measurement of Integral Cross Sections of Higher Mass Actinides, Neutron Cross Sections and Technology, NBS Special Pub. No. 299 (1968) S.1279
- /51/ S. Pearlstein, Cross Sections for Transuranium Element Production, BNL-982 (1966)
- /52/ A. Prince, Thermal Neutron Cross Sections and Resonance Integrals for Transuranium Isotopes, BNL-12353 (1968)
- /53/ B. Hinckelmann, Evaluation of Neutron Nuclear Data for Several Actinides in the Range from Thermal to 10 MeV, 2nd Int. Conf. on Nuclear Data for Reactors, Paper CN 26/15 (1970)
- /54/ E.J. Hennelly, The Heavy Actinide Cross Section Story, DP-MS-70-77 (1971)
- /55/ M.C. Thompson, M.L. Hyder, R.J. Reuland, Thermal Neutron Cross Sections And Resonance Integrals for Cm-244 through Cm-248, J. inorg. nucl. Chem., Vol. 33 (1971), S.1553-60
- /56/ R. Gasteiger, G. Höhle, W. Weinländer, Bestimmung des Zerfallsverhältnisses β^- /EC des Am-242, Radiochimica Acta, Vol.11, Nr. 3/4 (Juni 1969)
- /57/ Anlage C zur Eisenbahnverordnung (EVO) über den Transport gefährlicher Güter, Bundesgesetzblatt Teil II, S. 942 ff. (1967)

- /58/ R. Gasteiger, Pu-Rezyklierung in Leichtwasserreaktoren: Abbrandrechnungen zur Auslegung von Wiederaufarbeitungsanlagen und Rückwirkungen auf den Uran-Bedarf, KFK-2417 (1977)
- /59/ D. Geithoff, D. Freund, K. Kummerer, Auslegung, Bestrahlung und Nachuntersuchung der UO_2 -Brennstabprüflinge in der FR 2 - Kapsel-Versuchsgruppe 3, KFK-1239 (Aug. 1971)
- /60/ R. Gasteiger, Zur Bemessungsgrundlage der Regeldeckungssumme gemäß Entwurf der neuen Deckungsvorsorgeverordnung vom September 1975, (1976), unveröffentlicht
- /61/ H. Beißwenger, H. Blank et al., Die Entwicklung von Brennelementen schneller Brutreaktoren, KFK-700 (Dez. 1967)
- /62/ M. Lalovic, Sensitivitätsanalyse zum Programmsystem ORIGEN, (1976), unveröffentlicht
- /63/ M.J. Bell, ORIGEN - The ORNL Isotope Generation and Depletion Code, ORNL-4628 (1973)