

Januar 1970 KFK 1178

Institut für Heiße Chemie

Die Wiederaufarbeitung von Kernbrennstoffen in der BRD

F. Baumgärtner, E. Merz



GESELLSCHAFT FUR KERNFORSCHUNG M.B.H.

KARLSRUHE

ATKE 15-3 (19-22) 1970

# Die Wiederaufarbeitung von Kernbrennstoffen in der BRD<sup>1</sup>

# I. Wiederaufarbeitung von Uran-Plutonium-Brennstoffen

Von F. Baumgärtner Kernforschungszentrum Karlsruhe

## Zusammenfassung

In der BRD trat 1969 eine Anlage zur Wiederaufarbeitung von Uran-Plutonium-Brennstoffen mit 40 Tonnen Jahresdurchsatz in das Stadium der Betriebsaufnahme ein und liefert vier deutschen Privatunternehmen entsprechende Betriebserfahrungen.

Die Anlage ist auch zukünftigen Aufgaben angemessen, wie ein Vergleich mit den projektierten Großanlagen der achtziger Jahre in den USA zeigt.

Entwicklungsarbeiten für zukünftige Uran-Plutonium-Brennstofftypen, darunter die des schnellen Brüters, werden in einem gemeinsamen Rahmen vom Kernforschungszentrum Karlsruhe und Betreibergesellschaft GWK geplant und durchgeführt. Als bisheriges Ergebnis dieser fruchtbaren Zusammenarbeit werden fortgeschrittene Techniken wie Schnellextraktion und Neptunium-Gewinnung von Anfang an ein Bestandteil der Anlage sein.

#### Abstract

# Nuclear fuel reprocessing in the Federal Republic of Germany

I. Reprocessing of uranium-plutonium-fuels

In the Federal Republic of Germany, a plant for the reprocessing of uranium-plutonium fuel with an annual throughput of 40 tons is going in operation in 1969 and will providing operating experience to four German private enterprises.

The plant design includes provisions for future requirements, as a comparison shows with the large scale facilities planned for the eighties in the United States.

Development work on future types of uranium-plutonium fuel including that of the fast breeder is planned and executed within a common framework by the Karlsruhe Nuclear Research Center and by the operating company, GWK. One result of this fruitful cooperation so far has been the incorporation of advanced techniques, such as fast extraction and neptunium recovery in the plant from the outset.

### **EURATOM KEYWORDS**

FUEL ELEMENTS GERMANY URANIUM PLUTONIUM PUREX PROCESS NEPTUNIUM

Die Wiederaufarbeitung von Kernbrennstoffen hat in der Bundesrepublik zwei Schwerpunkte. Der eine Schwerpunkt liegt im Kernforschungszentrum Karlsruhe, der andere in der Kernforschungsanlage Jülich. In Jülich werden die Probleme der Thorium-Hochtemperatur-Reaktoren bearbeitet, in Karlsruhe die Probleme der Uran-Plutonium-Brennstoffe und besonders die des Schnellen Brut-Reaktors.

Damit entspricht diese Arbeitsteilung den verschiedenen Reaktortypen, die in Karlsruhe und Jülich verfolgt werden. Andererseits laufen die chemischen und verfahrenstechnischen Entwicklungen in Karlsruhe und Jülich nicht unabhängig voneinander ab. Gegenseitige Delegierte in den Arbeitsausschüssen sorgen für den Informationsaustausch, und eine übergeordnete Koordinierung erfolgt durch den Arbeitskreis Wiederaufarbeitung der Deutschen Atomkommission.

Auf Grund der gegebenen Arbeitsteilung besteht dieser Bericht über die Situation der Wiederaufarbeitung in der BRD aus zwei Teilen. Der erste Teil soll die Uran-Plutonium-Brenn-

stoffe, der zweite Teil die Uran-Thorium-Brennstoffe behandeln.

Die erste Initiative für eine technische Wiederaufarbeitung kam in der Bundesrepublik bemerkenswerter Weise von privater Seite.

Die Farbwerke Hoechst legten 1960 dem damaligen Bundesministerium für Atomkernenergie und Wasserwirtschaft die Projektstudie einer Anlage mit 25 Tonnen Jahresdurchsatz vor, die auf werkseigenem Gelände errichtet werden sollte. Als Verfahren wurde damals eine reine Lösungsmittelextraktion nach dem sogenannten Purex-Verfahren vorgeschlagen.

Nach diesem Entwurf gingen vier Jahre ins Land, Ende 1964 entschied sich dann das Ministerium für eine bundeseigene Anlage mit 40 Tonnen Jahresdurchsatz.

Alle am Betrieb einer Wiederaufarbeitungsanlage interessierten Industrieunternehmen der Bundesrepublik sollten dadurch Gelegenheit erhalten im Rahmen einer Betreibergesellschaft Erfahrungen auf dem Gebiet der Wiederaufarbeitung von Kernbrennstoffen zu sammeln. Vier Firmen, nämlich die Farbwerke Hoechst, die Nukem Nuklearchemie und Metallurgie, die Gelsenberg-AG und die Farbenfabriken Bayer sind heute unter dem Namen »Gesellschaft zur Wiederaufarbeitung von Kernbrennstoffen«, kurz GWK genannt, Partner in der Betriebsgesellschaft.

1967 begann unter der Federführung der Gesellschaft für Kernforschung/Versuchsanlagen nach den Plänen der Ingenieur-Gemeinschaft Kernverfahrenstechnik (IGK) der Bau der Anlage, die unter dem Namen »Wiederaufarbeitungsanlage Karlsruhe«, abgekürzt WAK, bekannt geworden ist. Die GWK war dabei in allen technischen Fragen der Errichtung der Anlage von Anfang an beteiligt. 1969 wurde von der GWK der Probebetrieb der WAK aufgenommen.

Der nach anfänglicher Auffassung konservative Entschluß der Bundesrepublik, als Verfahrensgrundlage den Purex-Prozeß zu wählen und damit dem Industrievorschlag zu folgen, ist in der Vergangenheit auf manche Kritik gestoßen. Letzter Hintergrund dieser Kritik war wohl der Umstand, daß zur selben Zeit als die WAK geplant worden ist, die Firma General Electric in USA ein sog. fortschrittliches Wiederaufarbeitungsverfahren vorgeschlagen hat. Dieses Verfahren trägt den Namen Aqua-Fluor und sollte in besonderem Maße die Fluorierung als Prozeßgrundlage benützen. Es hat damals auch nicht an Versuchen der Firma General Electric gefehlt, sowohl im zuständigen Ministerium der Bundesrepublik als auch bei der deutschen Industrie zu erreichen, daß dieses Aqua-Fluor-Verfahren in der Bundesrepublik eingeführt wird. Dabei ist in Rechnung zu stellen, daß General Electric als ehemaliger Betreiber der Hanford-Anlagen in USA zu den erfahrensten Firmen auf dem Gebiet der Wiederaufarbeitung zu zählen ist. In diesem Rahmen gesehen, wird das vorsichtige und zögernde Verhalten in unserem Bundesministerium verständlich, als die Vertreter der deutschen chemischen Industrie bei ihrem Vorschlag blieben, nur den reinen Purex-Prozeß anzuwenden.

<sup>&</sup>lt;sup>1</sup> Vorgelegt bei der Reaktortagung 1969 des Deutschen Atomforums e.V., Frankfurt (Main), 15. bis 16. April 1969.

| Land       | Bezeichnung<br>Ort                               | Zyklusfolge<br>Prozeßmedium                         | Eigentümer<br>Betreiber                 | Kapazität                | Inbetriebnahme   |
|------------|--|---|---|--------------------------|------------------|
|            | SRP<br>Savannah<br>River                         | PU TBP AA PU TBP SIG U                              | USAEC<br><br>Union Carbide              | 9 t/d ?                  | 1954             |
| USA        | Purex 200 E<br>Hanford                           | Pu  | USAEC<br>———<br>Batelle                 | 10 t/d ?                 | 1956             |
|            | ICCP<br>Jdaho-Falls                              | U-235 TBP Hex Hex U-235                             | USAEC<br><br>Phillips                   | 1,2t/d                   | 1953             |
|            | West Valley Plant<br>New York                    | Pu TBP AA Pu TBP SiG -> U                           | Aktiengesellsch.  Nuclear Fuel  Service | 1 t/d                    | 1966             |
|            | Midwest Fuel<br>Recovery Plant<br>Jllinois       | Pu   Pu   NP   NP   TBP   AA     F <sub>2</sub>   U | General<br>Elektric<br>"                | 1 t/d                    | 1970 <b>/</b> 71 |
|            | Barnwell Nuclear<br>Fuel Plant<br>South Carolina | Pu TBP TBP Pu TBP SiG U                             | Allied Chemical<br>Corporation          | 5t/d                     | 1974             |
|            | ARCO<br>Plant<br>South Carolina                  | <u>Pu</u> <u>TBP</u> Pu                             | Atlantic<br>Richfield Comp.             | 5t/d                     | 1974             |
| England    | Windscale II                                     | Pu TBP AA Pu TBP TBP U                              | UKAEA                                   | ≽ 5 t/d                  | 1964             |
| Frankreich | UP 1<br>Marcoule                                 | Pu  | CEA                                     | 1-2 t/d                  | 1958             |
|            | UP 2<br>La Hague                                 | Pu TBP TBP U  | CEA "                                   | 3-4 t/d                  | 1966             |
| Belgien    | Eurochemic<br>Mol                                | PU TBP A A PU  TBP SiG - U                          | OECD<br>——<br>Eurochemic                | 0,4 t/d                  | 1966             |
| Italien    | EUREX<br>Saluggia                                | U-235 TCA TCA U-235                                 | CNEN<br>CNEN                            | 3-6 MTR -<br>Elemente /d |                  |
| Indien     | Trombay  | Pu TBP A A Pu TBP TBP TBP TBP TBP                   | IAEC<br>IAEC                            | 0,25 t/d                 | 1965             |
| Japan      | Tokai Mura                                       | Pu TBP Pu TBP U                                     | Jap Atomic<br>Fuel Co.                  | 0,7-1t/d                 |                  |
| BRD        | WAK<br>Karlsruhe                                 | Pu  | BMwF<br>GWK                             | 175 kg/d/                | 1970             |

Fig. 1: Die in Betrieb oder in der Planung befindlichen technischen (und halbtechnischen) Wiederaufarbeitungsanlagen. TBP = Tributylphosphat, AA = Anionenaustauscher, SiG = Silikagel, Hex = Hexone, TLA = Trilaurylamin, TCA = Tricaprylamin. ☐ umfaßt einen Arbeitszyklus der mit Uran und/oder Plutonium in wäßriger Lösung beginnt und wieder in wäßriger Lösung endet

Fig. 1: Reprocessing plants and pilot plants in operation or in planning. TBP = Tributylphosphate, AA = Anion exchanger, SiG = Silica gel, Hex = Hexone, TLA = Trilaurylamine, TCA = Tricaprylamine. ☐ indicates a process cycle for which begins and also ends with the uranium and/or plutonium in aqueous solution.

Inzwischen sind sieben Jahre vergangen und es haben sich einige richtungsweisende Vorgänge abgespielt, - richtungsweisend zumindest für die nächsten 15 bis 20 Jahre, - die heute eine wohl objektive Beurteilung der damaligen, sogenannten konservativen Entscheidung zulassen. Der Aqua-Fluor-Prozeß von General Electric ist inzwischen in das endgültige Stadium der Verwirklichung getreten. In Fig. 1 ist die Anlage unter der offiziellen Bezeichnung: Midwest Fuel Recovery Plant-Illinois zu finden. Die daneben stehende Schemazeichnung soll die Folge der einzelnen Prozeßschritte darstellen.

Bemerkenswert ist, daß im detaillierten Prozeßschema des Agua-Fluor Verfahrens im ersten hochaktiven Trennungsgang wieder ein reiner Purex-Zyklus angewendet wird. Dann folgt im Prozeßablauf die Abtrennung von Plutonium und Neptunium durch Ionenaustauscher und zuletzt, nachdem das Uran nur noch allein und weitgehend frei von Spaltprodukten vorliegt, folgt eine Fluorierung.

Das zweite wesentliche Ereignis ist das Bekanntwerden der amerikanischen Pläne für die kommenden Großanlagen mit 1500 Tonnen Jahresdurchsatz, d. h. 5t/d. Die geplanten Anlagen der Firmen Allied Chemical und Atlantic Richfield sind in Fig. 1 unter der Bezeichnung Barnwell Nuclear Fuel Plant und ARCO Plant schematisch dargestellt. Das wesentliche Merkmal dieser neuen Anlagen ist die vollständige Rückkehr zum reinen Purex-Prozeß<sup>2</sup>. Nicht einmal der Ionenaustausch soll mehr verwendet werden. Anlaß dazu sind wohl Kapazitätsgründe.

Die einmal umstrittene Entscheidung um das Prozeß-Schema der WAK hat also heute schon ihre Rechtfertigung gefunden und die damalige Auffassung bei der deutschen Industrie hat sich bestätigt. Die primäre Aufgabe der WAK soll ja sein, den interessierten Industrieunternehmen der Bundesrepublik eine wirklichkeitsnahe Betriebserfahrung an einer Wiederaufarbeitungsanlage zu liefern, die den Bedürfnissen der achtziger Jahre entspricht. Mit der amerikanischen Entscheidung für den reinen Purex-Prozeß bei den nächsten Großanlagen der achtziger Jahre dürfte die Frage der langfristigen Nützlichkeit der WAK jetzt nicht mehr umstritten sein.

Im Rahmen einer langfristigen Planung - sie reicht im Augenblick bis 1975 - werden in einem gemeinsamen Entwicklungsprogramm zwischen Kernforschungszentrum und GWK die Wege vorbereitet für die Wiederaufarbeitung zukünftiger Uran-Plutonium-Brennstoffe nach dem Purex-Verfahren, und es werden Aufgaben behandelt zur wirtschaftlichen und technischen Verbesserung des Verfahrens an sich. Das gemeinsame Entwicklungsprogramm der Industrie und des Zentrums läßt sich im wesentlichen in folgende Überschriften gliedern:

- 1. Anpassung des Purex-Verfahrens an Brennstoffe mit noch höheren Abbränden und noch höherer Leistungsdichte.
- 2. Entwicklung von Extraktionsverfahren für hohe Plutonium-Konzentrationen; diese Aufgabe gilt besonders dem Brüter-Brennstoff.
- 3. Gewinnung von Neptunium und Transplutonium-Elementen aus abgebrannten Kernbrennstoffen.
- 4. Verarbeitung der flüssigen und gasförmigen radioaktiven Abfälle der Wiederaufarbeitung, besonders der hochradioaktiven.
- 5. Prozeß-Instrumentierung und Automation und
- 6. Spaltstoffflußkontrolle.

Im folgenden sollen aus diesem Entwicklungsprogramm nur einige Punkte herausgegriffen werden, die einen Überblick geben können über die noch vorhandenen Möglichkeiten und über die Grenzen der Wiederaufarbeitung von Uran-Plutonium-Brennstoffen nach dem Purex-Verfahren.

In Fig. 2 ist die Abhängigkeit des erforderlichen Gesamt-Dekontaminationsfaktors von Abbrand und spezifischer Leistung bei 2 verschiedenen Abklingzeiten dargestellt. Es läßt sich daraus ersehen, daß der chemisch erforderliche Dekontaminationsfaktor viel stärker von der Abklingzeit als von Abbrand und spezifischer Leistung beeinflußt werden kann. (Nicht im selben Maße durch die Abklingzeit zu kompensieren ist die erforderliche γ-Abschirmung.) Aus Gründen, auf die wir noch zurückkommen, werden Abklingzeiten von weniger als hundert Tagen in Zukunft aber kaum in Frage kommen. Wir können uns deshalb bei der Betrachtung auf die untere Kurvenschar beschränken.

Ein Purex-Prozeß mit drei Extraktionszyklen kann im allgemeinen einen Dekontaminationsfaktor von 2 bis 4·107 erreichen. Der Wert von 2 · 10<sup>7</sup> liegt bereits am oberen Ende der Ordinate. Bei einer Verdoppelung der augenblicklichen Brennstoffdaten, also bei Abbränden von etwa 40 MWd/kg und spezifischen Leistungen von 40 kW/kg liegen wir noch beträchtlich unterhalb des chemischen Dekontaminationsvermögens des Purex-Prozesses.

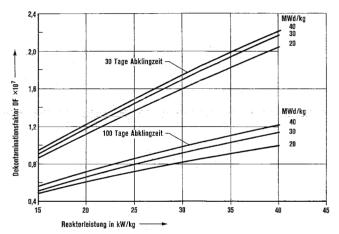


Fig. 2: Notwendiger Dekontaminationsfaktor für Uran und Plutonium gegenüber Uran (0,67 · 10<sup>-3</sup> Ci/kg) in Abhängigkeit von Reaktorleistung und Abbrand für 30 und 100 Tage Abklingzeit. Berechnet auf Grund der Aktivitätsangaben von Blomeke und Todd

Fig. 2: Required decontamination factors for Uranium and Plutonium with respect to natural Uranium (0,67 · 10-8 Ci/kg) as a function of reactor power and burnup, for 30 and 100 days cooling time

Diese Aussage gilt allerdings nur mit Einschränkung, nämlich dann, wenn ein reines Purex-Medium vorliegt und keine störenden Komplexbildner für Spaltprodukte vorhanden sind, die beispielsweise durch Radiolyse entstehen.

Es ist deshalb notwendig für die Zukunft, die Radiolyse des Lösungsmittels soweit als möglich zu unterdrücken. Zur Lösung dieses Problems der Radiolyse gibt es einen apparativen Weg, nämlich die Verkürzung der Kontaktzeit von Spaltproduktlösung und Extraktionsmittel mittels Schnellextraktoren.

Im Kernforschungszentrum lief während der letzten vier Jahre eine entsprechende Apparateentwicklung. Im gemeinsamen Entwicklungsprogramm mit der GWK wurden im vergangenen Jahr die Schnellextraktoren in die WAK-Ausstattung aufgenommen. Sie werden bereits mit Inbetriebnahme der Anlage in einem dritten Uran-Zyklus zur technischen Erprobung kommen.

<sup>&</sup>lt;sup>2</sup> Anmerk. z. Zeitpunkt der Korrektur: Inzwischen sind von der US-Atomkommission auch die im Argonne National Laboratory durchgeführten Entwicklungen zur Wiederaufarbeitung nach dem Fluorierungsverfahren weitgehend eingestellt worden.

Erwähnenswert ist in diesem Zusammenhang, daß auch die große Barnwell Nuclear Fuel Plant im ersten Zyklus mit einem ähnlichen Schnellextraktortyp ausgestattet werden soll. Die unter Punkt 2 genannte Entwicklung von Extraktionsverfahren für hohe Plutoniumkonzentrationen gilt konkret dem Brüter-Brennstoff, der einen Plutoniumgehalt von ca. 15% haben wird. Ein wesentlicher Teil der chemischen Laborarbeiten im Kernforschungszentrum war in der Vergangenheit diesem Problem gewidmet. Heute liegen ausgearbeitete Extraktionsschemas vor, die es gestatten, auch Brennelemente mit sehr hohem Plutoniumgehalt einwandfrei nach dem Purex-Verfahren aufzuarbeiten.

Weiterhin soll noch auf die Gewinnung von Neptunium eingegangen werden. In allen privaten Wiederaufarbeitungsanlagen ist in letzter Zeit die Isolierung des Neptuniums als Vorprodukt für das Batterienuklid Plutonium 238 in Betracht gezogen worden. Auch im gemeinsamen Entwicklungsprogramm Industrie und Kernforschungszentrum ist dieses Problem aufgegriffen worden. Die labormäßigen Vorarbeiten und technischen Planungen zur Neptunium-Isolierung in der WAK sind soweit gediehen, daß, ähnlich wie bei den Schnell-Extraktoren, mit der Inbetriebnahme der WAK auch der eingeplante Neptunium-Gewinnungszyklus zur Funktion kommen kann. Dabei wird das Neptunium aus den konzentrierten wäßrigen Raffingten des zweiten Uran- und Plutonium-Zyklus abgetrennt werden. Es ist damit zu rechnen, daß mit der Nominalkapazität von 40 t eine Ausbeute von 2 bis 3 kg Neptunium erreicht wird.

Als problematisch für die Wiederaufarbeitung in der Zukunft wird gelegentlich die Abgabe von Aktivität an die Umgebung angesehen. Die folgenden Abbildungen sollen die Situation erläutern. In Tab. 1 ist die pro Tag anfallende Krypton-85-Aktivität bei thermischem und Brüter-Brennstoff und bei verschiedenem Abbrand angegeben. Die Gegenüberstellung mit dem maximal zulässigen Tagesausstoß zeigt, daß auch bei einer Entwicklung zu sehr viel höheren Abbränden als bisher die anfallende Krypton-Aktivität keine sehr engen Grenzen setzen wird.

Tab. 1: Kr-85-Bildung

Table 1: Kr-85-formation

| Abbrand<br>MWd | Thermischer<br>Reaktor<br>Ci | Schneller<br>Brüter<br>Ci | Max. zuläss.<br>Ausstoß pro Tag<br>durch 80 m<br>Kamin |
|----------------|------------------------------|---------------------------|--|
| 20 000         | 9 000                        | 2300                      | 260 000 Ci/d   |
| 30 000         | 13 500                       | 3500                      | bzw.   |
| 40 000         | 18 000                       | 4600                      | 3 Ci/s   |

Stärker ist das anfallende Tritium zu berücksichtigen (Tab. 2). Die sehr niedrig liegende, maximal zulässige Tritium-Menge im Abwasser wird es bei zukünftigen Großanlagen nicht mehr erlauben, das bisher als schwach aktiv betrachtete, destillierte Prozeßabwasser in flüssiger Form nach außen abzugeben. Wollte man die Tritium-Aktivität auf das zulässige Maß verdünnen, dann wäre in den meisten Fällen ein unrealistisch großes Verdünnungsvolumen notwendig.

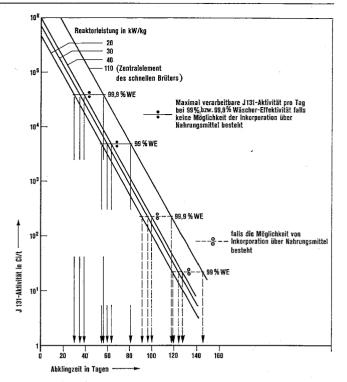


Fig. 3: Notwendige Abklingzeiten bei verschiedenen Reaktorleistungen und Jod-Wäscher-Effektivitäten

Fig. 3: Required cooling times for different values of reactor power and of iodine scrubber efficiency

Für eine rationelle Beseitigung bietet sich aber die gasförmige Abgabe an. Die meteorologischen Verhältnisse sind dabei allerdings zu berücksichtigen. In der schon wiederholt zitierten Barnwell-Anlage soll in diesem Fall ebenfalls der Weg über den Abgaskamin eingeschlagen werden.

Die meisten Einschränkungen wird aber das Jod 131 mit sich bringen (Fig. 3). Jedoch ist das Jodproblem glücklicherweise ein temporäres Problem. Durch die verhältnismäßig kurze Halbwertszeit ist für die Jod-131-Aktivität weniger der Abbrand als die spezifische Leistung maßgebend. Nach heutiger Vorstellung werden die Zentralelemente des Schnellen Brüters einmal den ungünstigsten Fall darstellen. Sie sind auf dem Diagramm mit einer spezifischen Leistung von 110 kW/kg zum Zeitpunkt der Brennstabentnahme eingetragen.

Die im Dauerbetrieb erreichbare Effektivität eines Jodwäschers dürfte bei etwa 98 bis 99 % liegen. Die Erfahrung zeigt, daß diese Wirksamkeit nicht beliebig weiter gesteigert werden kann.

Für die Beurteilung der Zukunft wollen wir deshalb diese pessimistischen – oder man kann auch sagen realistischen – 99 % beibehalten. Bei 99 % Wäschereffektivität werden aber auch zukünftige Brennstofftypen mit sehr viel höherer spezifischer Leistung zu verarbeiten sein, wenn 140 bis 160 Tage Abklingzeit eingehalten werden. (Eingegangen am 23. 6. 1969)

Tab. 2: Tritium-Bildung

Table 2: Tritium-formation

| Abbrand   | Thermischer<br>Reaktor | Schneller<br>Reaktor | Max. zulässiger<br>gasförmiger<br>Ausstoß pro Tag<br>durch 80 m<br>Kamin | Max. zulässige<br>Konzentration<br>im Abwasser | Notwendiges<br>Verdünnungsvolumen im Abwasse<br>m <sup>s</sup> |  |
|-----------|------------------------|----------------------|--|--|--|--|
|           |                        |                      |  |  | Thermischer<br>Reaktor   | Schneller<br>Reaktor                   |
| 20 MWd/kg | 260 Ci/to              | 650 Ci/to            | 1 1  |  | 86 500   | 217 000                                |
| 30 MWd/kg | 390 Ci/to              | 970 Ci/to            | 19 000 Ci/d  | . 3 · 10 <sup>-3</sup> Ci/m <sup>3</sup>       | 130 000  | 325 000                                |
| 40 MWd/kg | 520 Ci/kg              | 1300 Ci/to           | ]  |  | 173 000  | 435 000                                |
|           |                        |                      |  |  | anfall ei  | Abwasser-<br>ner 1 to/d-<br>ca. 150 m³ |

ATKE 15-4 (23-25) 1970

# Die Wiederaufarbeitung von Kernbrennstoffen in der BRD<sup>1</sup>

# II. Wiederaufarbeitung von Uran-Thorium-Brennstoffen

Von E. Merz Kernforschungsanlage Jülich GmbH, Institut für Chemische Technologie

### Zusammenfassung

Für die Aufarbeitung thoriumhaltiger Brennelemente besitzen nach dem augenblicklichen Stand der Erkenntnisse wäßrige Prozesse die größten Erfolgschancen. Von drei aussichtsreichen Varianten, die gegenwärtig gegeneinander verglichen werden, wird sich mit Sicherheit in dem gesteckten Zeitraum ein technisch und wirtschaftlich tragbarer Prozeß realisieren lassen. Auf lange Sicht könnte die Fluoridverflüchtigung an die Stelle wäßriger Verfahren treten.

#### Abstract

# Reprocessing of fuel elements in F.R.G. II. Reprocessing of uran-thorium fuel elements

According to the present state of knowledge aqueous processes have the greatest chance to be successful in the reprocessing of thorium-containing fuel elements. One of the three promising possibilities which are compared at present, will be technical and economical realizable within the limited time. At long date the fluoride volatility could replace the aqueous processes.

#### **EURATOM KEYWORDS**

REPROCESSING FUEL ELEMENTS GERMANY URANIUM THORIUM SOLVENT EXTRACTION FLUORIDE VOLATILITY PROCESS ECONOMICS

## Allgemeine Betrachtungen

Die chemische Aufarbeitung bestrahlter Kernbrennstoffe ist ein Teilschritt des Brennstoffkreislaufs und infolgedessen mit der jeweiligen Reaktorkonzeption eng verknüpft.

Die Kernforschungsanlage Jülich (KFA) befaßt sich im Rahmen des deutschen Atomprogramms in enger Zusammenarbeit mit Industriefirmen mit der Entwicklung fortgeschrittener Leistungsreaktoren auf der Basis des Thorium-Uran-Kreislaufs. Die Einbeziehung dieser Reaktorkonzeption in das langfristige Energieprogramm ergibt sich aus der Erkenntnis, daß zur Sicherstellung der nuklearen Brennstoffversorgung auch die Brutstoffreserven des Thoriums herangezogen werden müssen. Drei verschiedene Reaktorkonzepte werden gegenwärtig für eine Anwendung im Th-U-Zyklus in Betracht gezogen:

- der gasgekühlte graphitmoderierte Thorium-Hochtemperatur-Reaktor (THTR) als der zur Zeit wichtigste und technisch am weitesten fortgeschrittene Vertreter,
- 2. der schwerwassermoderierte Thoriumreaktor,
- 3. der Thorium-Salzschmelzenbrüter, dessen Entwicklung allerdings noch am Anfang steht.

Für diese drei Typen müssen geeignete Aufarbeitungsverfahren entwickelt werden, wobei in den verschiedenen Prozeßschritten häufig verwandte oder zum Teil identische Probleme bestehen. Für den THTR und den Schwerwasserthoriumreaktor gibt es eine Unterscheidung nur im ersten Prozeßschritt, dem sog. Head-End. Für Salzschmelzenreaktoren erübrigt sich jedes Head-End, da Brenn- und Brutstoff bereits in gelöster Form in der Salzschmelze vorliegen.

Drei Hauptmerkmale sind kennzeichnend für die Aufarbeitung thoriumhaltiger Brennelemente:

- 1. Bei Thoriumreaktoren ist der Stand der Entwicklung von Wiederaufarbeitungsverfahren noch wesentlich hinter demjenigen bei Uranreaktoren zurück. Das Interesse für den Thorium-Uran-Kreislauf hat erst vor etwa 10 Jahren begonnen. Bis heute gibt es zur Aufarbeitung thoriumhaltiger Brennstoffe noch kein wirklich in technischem Maßstab erprobtes Verfahren, wohingegen im U-Pu-Zyklus sich bereits seit etlichen Jahren großtechnische Anlagen erfolgreich in Betrieb befinden.
- 2. Im Th-Brutzyklus hat das als Zwischenglied auftretende <sup>233</sup>Pa eine relativ lange Halbwertszeit im Vergleich zum <sup>239</sup>Np im U-Pu-Kreislauf. Das bedeutet, daß man hier entweder relativ lange Abkühlungszeiten in Kauf nehmen, oder aber einen Prozeß verfügbar haben muß, der eine gleichzeitige Protaktinium-Abtrennung gewährleistet. Die erste Alternative bedingt ein großes Brennstoffinventar, während die zweite ein Verfahren verlangt, das neben der Reinisolation von Uran und Thorium auch das dritte Nuklid der Kette, das <sup>233</sup>Pa, in reiner Form abzuscheiden in der Lage ist. Ein aussichtsreiches Verfahren dafür befindet sich in der Entwicklung.
- 3. Die für die verschiedenen THTR's konzipierten Brenn- und Brutelemente benötigen zu deren Aufarbeitung spezielle Head-End-Prozesse. Es ist eine Eigenart dieser Elemente, daß ein erheblicher Anteil des Moderatorgraphits in die Wiederaufarbeitung mit eingeht. Ein weiteres Problem ergibt sich durch die Verwendung von beschichteten Partikeln (coated particles) als Kernbrennstoffträger, deren Beschichtungen aus Pyrokohlenstoff oder Siliziumcarbid chemisch äußerst widerstandsfähig sind.

Beim Schwerwasser-Thoriumreaktor entfällt dieses Problem, da hier konventionelle Elemente mit Metallumhüllungen verwendet werden. Zweckmäßigerweise setzt man hier als Head-End das gut bewährte Abscher- und Auslaugeverfahren (Shear-Leach- bzw. Chop-Leach-Prozeß) ein.

Der Salzschmelzen-Thoriumbrüter verbietet eine Aufarbeitung auf der Basis wäßriger Verfahren; hier kommen prinzipiell nur bisher technisch noch kaum erprobte nichtwäßrige Hochtemperaturprozesse, vor allem die Fluorierung, in Betracht.

## Stand der Technik

Zur Aufarbeitung thoriumhaltiger Kernbrennstoffe verfügt man bisher nur über einige halbtechnische Erfahrungen mit Hilfe der Tributylphosphat-(TBP-)Solventextraktion. Schon bei der Ausarbeitung des Purex-Prozesses für den U-Pu-Zyklus untersuchte man das Verhalten von Thorium bei einer TBP-Extraktion, und die Bemühungen führten schließlich zum sog. Thorex-Prozeß, der im Prinzip ganz analog dem Purex-Verfahren arbeitet. Es ist bis heute die einzige Methode, die wenigstens im halbtechnischen Maßstab ihre Leistungsfähigkeit bewiesen hat.

Einige vorläufige Untersuchungen im Ausland befaßten sich auch mit einer Aufarbeitung durch Fluoridverflüchtigung. Man hat die Versuche aber schon bald wieder eingestellt, da es nicht gelang, das in der Thorium-Matrix enthaltene

<sup>&</sup>lt;sup>1</sup> Vorgelegt bei der Reaktortagung 1969 des Deutschen Atomforums e.V., Frankfurt (Main), 15. bis 18. April 1969.

Uran quantitativ zu verflüchtigen. Pyrochemische Methoden wurden bislang so gut wie gar nicht eingesetzt. In den USA wurden in den letzten Jahren einige Überlegungen angestellt, einen pyrochemischen Salztransport-Trennungsprozeß einzusetzen. Eine experimentelle Erprobung des vorgeschlagenen Fließschemas hat bisher aber noch nicht stattgefunden. Die bereits 1955 von der Union Carbide im Auftrag der USAEC errichtete und betriebene halbtechnische Versuchsanlage nach dem Thorex-Prinzip war längere Zeit außer Betrieb und soll demnächst nach einer Verbesserung erneut in Versuchsbetrieb genommen werden. Ein kleines Versuchswerk ist in Rotondella in Süditalien nahezu betriebsbereit. Hier ist allerdings nur eine gemeinsame U + Th-Extraktion ohne Auftrennung der beiden Elemente vorgesehen. Auch eine Protaktinium-Isolation ist vorläufig nicht möglich. Außerdem fehlt dieser Anlage ein Head-End für graphithaltige Elemente. Die übrigen an der Thorium-Linie interessierten westlichen Länder planen, zur Bedienung ihrer Reaktoren ebenfalls das Thorex-Prinzip anzuwenden. Über die Aktivitäten in den Ostblockländern auf diesem Gebiet ist so gut wie nichts bekannt.

## Situation in der BRD

Im Jahre 1966 wurde vom Bundesministerium für wissenschaftliche Forschung ein speziell auf die Aufarbeitung thoriumhaltiger Kernbrennelemente ausgerichtetes Projekt ins Leben gerufen, das unter der Federführung der KFA ausführliche theoretische und experimentelle Untersuchungen zur Entwicklung wirtschaftlicher Aufarbeitungsverfahren zum Ziele hat. Neben der KFA gehören dieser Arbeitsgemeinschaft zur Zeit die Firmen Farbenfabriken Bayer AG, Farbwerke Hoechst AG, Fried. Krupp GmbH, Gelsenkirchener Bergwerks-AG, Kali-Chemie AG sowie die NUKEM GmbH an. Ein erster Projektabschnitt ging im Dezember 1968 zu Ende. Ein Anschlußprojekt hat eine Laufzeit bis 1972, das heißt, es geht konform mit dem 3. deutschen Atomprogramm. Dieser 2. Projektabschnitt soll mit der Vorlage ausreichender Unterlagen für den Bau geeigneter Pilotanlagen abgeschlossen werden, bzw. mit Vorschlägen, inwieweit etwa bestehende Anlagen (für U-Pu-Kreislauf) zur Aufarbeitung thoriumhaltiger Kernbrennstoffe einsetzbar sind.

Die KFA hofft, in Zusammenarbeit mit einigen Industriepartnern, bis 1973 in ihren Heißen Zellen eine kleine Versuchsanlage mit einer Tageskapazität von etwa 2 kg Schwermetall errichtet und in Versuchsbetrieb genommen zu haben. Das endgültige Fließschema dieser Anlage steht im Augenblick noch nicht fest, da gegenwärtig drei verschiedene Varianten technisch entwickelt und erprobt werden. Eine endgültige Entscheidung wird erst gegen Mitte bis Ende 1970 erforderlich, um dann in 1- bis 2jähriger Bauzeit die als technisch und wirtschaftlich beste Version bauen und in Betrieb nehmen zu können.

Eine Anlage dieser Kapazität reicht immerhin zur Aufarbeitung eines 100-MW-Thoriumreaktors aus. Je nach den Betriebserfahrungen mit dieser Anlage und der bis Anfang der siebziger Jahre sich abzeichnenden Entwicklung der Thoriumreaktor-Linie kann dann eine Entscheidung über den Bau einer größeren Wiederaufarbeitungsanlage speziell für thoriumhaltige Brennelemente oder über eine mögliche Integration in eine Großanlage (für U-Pu) getroffen werden.

Der erste Projektabschnitt (1966 bis 1968) war durch ein relativ breit angelegtes Forschungs- und Entwicklungsprogramm im Labormaßstab gekennzeichnet, aus dem zum Ende 1968 einige wenige erfolgversprechende Varianten herausgearbeitet wurden. Sie sollen nun mit allem Nachdruck in tech-

nische Dimensionen übersetzt und auf ihr technologisches und wirtschaftliches Potential geprüft werden.

In der Vergangenheit wurde gelegentlich von einigen Stellen das breite Spektrum des Projektprogramms kritisiert. Gerade die Vielseitigkeit der Untersuchungen sollte jedoch dazu verhelfen, die hoffentlich wirklich guten Methoden von den weniger aussichtsreichen auszuwählen.

Ursprünglich standen vor allem nicht-nasse Hochtemperaturmethoden im Vordergrund unserer Überlegungen, da damals insbesondere in den USA die Meinung vorherrschte, wäßrige Prozesse würden für die Zukunft keine großen Aussichten mehr besitzen. Vor allem die Fluoridverflüchtigung galt als das aussichtsreichste Zukunftsverfahren. Aber auch pyrochemische und pyrometallurgische Prozesse wurden allgemein stark propagiert. Demzufolge wurden auch in unserem Projekt diesen Verfahren zu Anfang große Beachtung geschenkt.

Im Laufe der Zeit ergab sich aufgrund der erarbeiteten Versuchsergebnisse eine immer stärkere Hinwendung zur wäßrigen extraktiven Aufarbeitung. Die vor allem bei der KFA durchgeführten orientierenden Studien der Anwendungsmöglichkeit einiger pyrochemischer und metallurgischer Methoden zur Aufarbeitung thoriumhaltiger Kernbrennstoffe führten zu wenig ermutigenden Resultaten. Sie zeigen ziemlich eindeutig, daß für die nahe und vermutlich auch noch für die fernere Zukunft wäßrige Extraktionsverfahren wirtschaftlich und technisch kaum zu überbieten sein dürften.

### Uberblick über das gegenwärtige Konzept

Das weitere Arbeitsprogramm des Projektes ist durch die drei Schwerpunkte Head-End-Verfahren für THTR-Brennelemente, Solventextraktion und Fluoridverflüchtigung gekennzeichnet. Aus den bisherigen Untersuchungen haben sich vier verschiedene Prozeßfließbilder herauskristallisiert. Eine Übersicht gibt die folgende schematische Darstellung.

| Prozeß-Тур  | Bearbeitet von                         | Prozeß-Stufen  |
|---|--|--|
| Technisch am<br>weitesten fort-   | NUKEM GmbH                             | Verbrennung ganzer HTGR-Brenn-<br>elemente in einem Schachtofen  |
| geschrittenes   | F. F. Bayer AG                         | Abgasbehandlung und Reinigung  |
| Verfahren<br>(Thorex und<br>Interim-23)   | F. W. Hoechst AG<br>KFA-Jülich<br>GmbH | Auflösung der Verbrennungsrückstände<br>im Thorex-Reagenz  |
|   | KFA-Jülich<br>GmbH                     | Isolierung von <sup>233</sup> Pa durch Adsorption  |
|   | F.W.HoechstAG                          | Wäßrige Solventextraktion mit TBP  |
|   | KFA-Jülich<br>GmbH                     | Mahlungs-Verbrennungs-Auslauge-<br>prozeß für SiC-beschichtete Partikeln   |
| KFA-TBP-23/25-<br>Prozeß  | KFA-Jülich<br>GmbH                     | Verbrennung der grob gemahlenen HTGR-Brennelemente im Wirbelschicht- ofen Auflösung der Oxidrückstände in einer  Pyrosulfatschmelze  Isolierung von <sup>238</sup> Pa durch Adsorption  Konzentrierung mit Thorium-Vor- abtrennung und Feed-Einstellung  Wäßriger Uran-Extraktionszyklus mit  TBP (später möglicherweise mit Aminen) |
|   | F. F. Bayer AG                         | Abgasbehandlung und Reinigung  |
| Kombinierte<br>trockene<br>Chlorierung<br>und wäßrige<br>Solvent-<br>Extraktion | KFA-Jülich<br>GmbH                     | Mechanisches Brechen und Mahlen der<br>HTGR-Brennelemente<br>Chlorierung in einem Wirbelbett-<br>reaktor mit Chlorid-Kondensation<br>Auflösung in Wasser und adsorptive<br>Protaktinium-Isolation  |
| (Chlorinex<br>Prozeß)   | Gelsenkirchener<br>Bergwerks-AG        | Solventextraktion mit TBP (Nitrat-<br>system) oder mit langkettigen<br>Aminen (Chloridsystem)  |
| Erweiterte<br>Head-End-<br>Alternative  | Fried. Krupp<br>GmbH                   | Hochtemperaturaufschluß von HTGR-<br>Brennelementen in einem Induktionsofer<br>bei 2700 bis 3000 °C<br>Chlorierung der erhaltenen Produkte<br>und Chlorid-Kondensation   |
| Aufarbeitung<br>durch   | F. F. Bayer AG                         | Salzschmelzen-Fluoridverflüchtigung<br>Feinreinigung an NaF-Betten   |
| Fluorierung   | Kali-Chemie AG                         | Feststoff-Fluoridverflüchtigung (Hydro-<br>fluorierung, Fluorierung, Pyrolyse)<br>Feinreinigung an NaF-Betten  |

### Head-End-Verfahren

Die graphithaltigen Brennelemente gasgekühlter Hochtemperaturreaktoren benötigen zu ihrer Aufarbeitung ein eigenes spezielles Auflöseverfahren (Head-End), das sich in der Art seiner Durchführung stark von den bisherigen, bereits erprobten, Methoden unterscheidet.

Ursprünglich dachte man daran, die gesamten Graphitelemente so fein aufzumahlen, daß auch die »Coated Particles« zerstört werden, um dann den Brenn- und Brutstoff samt den Spaltprodukten mit konzentrierter Salpetersäure herauszulösen (sog. Grind-Leach-Prozeß). Dieser Weg wird übrigens heute noch immer von einigen Stellen in Betracht gezogen. Nach den Ergebnissen unserer Untersuchungen ist diese Methode absolut unbrauchbar. Gründe sind: die hohen Uranverluste durch Adsorption und Einschlüsse am Graphit, Vorliegen eines schwierig lagerbaren hochradioaktiven Graphitschlammes sowie Bildung organischer Graphit- und Kohlenstoffverbindungen, die eine starke Störung des Extraktionsprozesses verursachen.

Große Hoffnungen setzten wir anfänglich auf chemische Desintegrationsverfahren. Graphit reagiert bekanntlich bei erhöhten Temperaturen mit einigen chemischen Substanzen wie Kalium, Caesium, FeCl<sub>3</sub> oder Brom unter Bildung sog. Graphiteinlagerungsverbindungen, wobei es infolge starker Gitteraufweitung zum Zerfall der Graphitmatrix kommt. Den gleichen Effekt erzielt man auch bei einem elektrolytischen Desintegrationsprozeß. Im Anschluß an die Desintegration kann dann durch eine geeignete Trennmethode (Windsichten, Flotation) der Kernbrennstoff von der Hauptmenge Graphit abgetrennt werden.

Prinzipiell funktionieren einige dieser Verfahren recht gut (Kalium, FeCl<sub>s</sub> und Elektrolyse). Leider ist die Handhabung des flüssigen Alkalimetalls mit erheblichen Gefahren verbunden. Die elektrolytische Desintegration ist zu langsam und technisch zu aufwendig. Die FeCl<sub>3</sub>-Anwendung scheiterte an der starken Korrosion der Werkstoffmaterialien. Da wir in der Verbrennung sowie der Chlorierung zwei erfolgversprechendere Head-End-Methoden verfügbar haben, wurden die Desintegrationsversuche – zum mindesten vorläufig – ganz eingestellt.

Als erste Wahl ist die Verbrennung des gesamten Kohlenstoffs in einem Schacht- bzw. Wirbelschichtofen anzusprechen, zumal die bisherigen Untersuchungen gezeigt haben, daß die etwas aufwendige Abgasreinigung, leichter als ursprünglich angenommen, durchzuführen ist. Beim Vorliegen SiCbeschichteter Partikeln kommt die Verbrennung an dieser Schicht zum Stillstand. Vor einem Auflösen in Säure muß man daher noch einen kombinierten Mahl-Verbrennungsschritt zwischenschalten.

Als zweite aussichtsreiche Methode hat sich die Chlorierung der Graphitelemente erwiesen. Zunächst werden die Brennelemente samt den »Coated Particles« entweder in einem Hochtemperaturverfahren bei 2700 bis 3000 °C aufgeschlossen oder mechanisch aufgemahlen, um dann in einem anschließenden Chlorierungsschritt bei 800 bis 1000 °C das gesamte Uran und Thorium sowie die meisten Spaltprodukte als Chloride zu verflüchtigen. Die kondensierten Chloride werden zweckmäßigerweise naßchemisch weiterverarbeitet. Der Graphitrückstand kann direkt gelagert oder aber verbrannt werden. Die Aufarbeitung SiC-beschichteter Partikeln bereitet hierbei keine besonderen Schwierigkeiten.

## Wäßrige Trenn- und Reinigungsverfahren

Neben dem Head-End ist die anschließende Solventextraktion als Trenn- und Reinigungsprozeß der zweite wichtige Teil eines Aufarbeitungsverfahrens. Die große Überlegenheit der Solventextraktion vor allen anderen Methoden unter Verwendung von Mischabsetzern oder gepulsten Kolonnen ist heute unbestreitbare Tatsache. Tributylphosphat als Extraktionsmittel ist allein schon wegen der fortgeschrittenen Entwicklung geeigneter Fließschemata an die erste Stelle zu setzen. Gewisse Erfolgsaussichten für eine technische Anwendung haben außerdem langkettige tertiäre Amine. Diese Systeme widerstehen höheren Strahlenbelastungen als Tributylphosphat. Sie dürften aber noch einige Entwicklungszeit beanspruchen, bevor ein technischer Einsatz möglich ist.

Vor dem eigentlichen Extraktionsschritt wird gegebenenfalls vorteilhafterweise das vorhandene <sup>233</sup>Pa auf adsorptivem Wege selektiv abgetrennt, indem man die Lösungen über eine mit Vycorglas oder Silicagel gefüllte Austauscherkolonne schickt.

## Fluorierung

Schließlich ist noch die Fluorierung als dritter Schwerpunkt des Arbeitsprogramms zu erwähnen. Sie stellt ein sog. trokkenes Verfahren dar, benötigt allerdings dieselbe Head-End-Stufe wie die wäßrige Solventextraktion. Nach unseren heutigen Erkenntnissen läßt sich mit einiger Sicherheit sagen, daß selbst für den Fall einer technisch zufriedenstellenden Realisierung der Fluoridverflüchtigung sensationelle wirtschaftliche Vorteile gegenüber den wäßrigen Methoden nicht zu erwarten sind. Gewisse prinzipielle Vorteile sind für die Zukunft nicht von der Hand zu weisen. Der Nutzen von Versuchen zur fluorierenden Aufarbeitung muß heute nicht nur im Hinblick auf eine zweckmäßige Wiederaufarbeitung gesehen werden, sondern vor allem auch im Lichte der Erfahrungssammlung der Gewinnung, Reinigung und Handhabung von UF<sub>6</sub> für die Isotopenanreicherung.

Die früheren Befürchtungen bezüglich der starken Störung der TBP-Extraktion durch Strahlenschädigung haben sich als nicht so gravierend herausgestellt, wie ursprünglich angenommen, vor allem für den Fall, daß eine Protaktinium-Vorabtrennung erfolgt. Auch die Vorteile der billigeren Abfallbehandlung und Lagerung sowie des geringeren Kritikalitätsrisikos bei der Fluorierung haben im Verlauf der letzten Zeit an Gewicht verloren.

(Eingegangen am 24. 6. 1969)

ATKE 15-5 (26-34) 1970

# Present status of the physical knowledge of the most important reactor nuclear data<sup>1</sup>

By J. J. Schmidt

Institut für Neutronenphysik und Reaktortechnik, Kernforschungszentrum Karlsruhe

#### Abstract

This report illustrates, that unfortunately there are still discrepancies in the most important microscopic data information for fissionable and fertile nuclei but also, that, in the cross section knowledge and in the physical understanding of the cross section behaviour, particularly in the fission of Pu 239, considerable progress has been achieved in the last time. In almost all cases the phase of pioneering measurements is passed and has gone over into a phase of careful decision measurements for clarification of discrepancies and of far more detailed comparisons of different measurements as was usual before. A series of such decision measurements is still underway. In this context it might be particularly permitted to remind the measurements of Pfletschinger and Käppeler at Karlsruhe and the comprehensive measurement program of Pönitz at Argonne for the fission cross sections. Furthermore the systematic testing of microscopic data used in reactor calculations by comparison with the results of integral experiments still increases in importance and substance. Finally, on the basis of the results so far achieved, of the extensive international efforts in measurement and evaluation of nuclear data and of the increasing comparisons with reactor experiments, one might dare the cautious prognosis, that for the most important fissionable and fertile materials about at the end of 1969 some of the mentioned discrepancies will have been clarified and, that about up to the end of 1970 at least for these materials which are most important for the calculation and prediction of the properties of fast power reactors, a reliable data basis will have been established.

### Zusammenfassung

# Aktueller Stand der physikalischen Kenntnis der wichtigsten Reaktorkerndaten

Dieser Bericht verdeutlicht, daß es zwar leider immer noch Diskrepanzen in den wichtigsten mikroskopischen Dateninformationen für Spalt- und Brutkerne gibt, daß aber in Querschnittskenntnis und im physikalischen Verständnis des Wirkungsquerschnittverhaltens, insbesondere bei der Spaltung von Pu 239, in der letzten Zeit erhebliche Fortschritte erzielt worden sind. Das Stadium der Erstmessungen ist in fast allen Fällen überschritten und ist in ein Stadium von sorgfältigen »Entscheidungs«-Messungen zur Aufhellung von Diskrepanzen und zu weitaus detaillierteren Vergleichen verschiedener Messungen als bisher üblich übergegangen. Eine Reihe solcher »Entscheidungs«-Messungen ist noch in Arbeit. Es sei in diesem Zusammenhang besonders auf die Messungen von Pfletschinger und Käppeler in Karlsruhe und das umfangreiche Meßprogramm von Pönitz in Argonne für die Spaltquerschnitte hingewiesen. Zudem nimmt die systematische Testung mikroskopischer, in Reaktorrechnungen verwandter Daten an den Ergebnissen integraler Experimente immer mehr an Bedeutung und Aussagekraft zu. Schließlich kann man auf Grund der bisher erreichten Resultate, der intensiven internationalen Bemühungen in Messung und Auswertung von Kerndaten und des zunehmenden Vergleichs mit Reaktorexperimenten die vorsichtige Prognose wagen, daß für die wichtigsten Spalt- und Brutmaterialien gegen Ende 1969 eine Reihe der besprochenen Diskrepanzen aufgeklärt und bis etwa Ende 1970 wenigstens für diese für die Berechnung und Vorhersage der Eigenschaften schneller Leistungsreaktoren wichtigsten Materialien eine zuverlässige Datenbasis geschaffen sein wird.

#### **EURATOM KEYWORDS**

MEASUREMENT CROSS SECTIONS ERRORS CAPTURE RESEARCH REACTORS PLUTONIUM 239 URANIUM 235 URANIUM 238 CALIFORNIUM 252 SPONTANEOUS FISSION STANDARDS

#### Introduction

Firstly a short account for the historical development. Around 1960 one can state a transition from almost exclusive research on thermal reactors to more and more reinforcing research and development of fast reactors. In the field of reactor nuclear data this year marks the transition from the rather narrow thermal energy region in the much more enlarged energy region of fast reactors, which actually ranges from thermal energies up to about 15 MeV. Since that time it is requested to compile the data for all neutron nuclear processes in fine energetic and angular detail in this energy range which covers more than 10 decades, for a large percentage of the naturally occurring as well as artificially produced elements and isotopes and to prepare them for application in reactor physics and technique.

The increasing demand of data, with the particular support of international committees like the EANDC (European American Nuclear Data Committee), led to an explosive increase of the number of experimental facilities like linear and Van de Graaff accelerators, it led to the measurement of neutron cross sections and other neutron nuclear data and consequently to a very rapidly increasing production of experimental data. In parallel one has to consider the rapid development of data processing and electronic computers, which in turn permitted and supported the development of more and more complex and detailed reactor calculational programs.

These developments primarily built up a difficult organisational problem: How could one make use of this plenty of measured microscopic data for reactor theory calculations and technical reactor design in a most general and simultaneously most rapid and effective way? In Karlsruhe this organisational problem in the last years was solved in the following way (Fig. 1). Meanwhile this kind of solution has

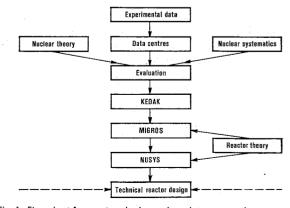


Fig. 1: Flow chart for reactor physics nuclear data preparation  $% \left( 1\right) =\left( 1\right) \left( 1\right) \left($ 

Fig. 1: Flußdiagramm für die Aufbereitung reaktorphysikalischer Kerndaten

<sup>&</sup>lt;sup>1</sup> Invited lecture given at the Reaktortagung 1969 of the Deutsches Atomforum e.V., Frankfurt (Main), 15.—18. April 1969.

This work was carried out within the framework of the association between the European Atomic Community (Euratom) and the Gesellschaft für Kernforschung (GfK), Karlsruhe, in the field of fast reactors.