

**KERNFORSCHUNGSZENTRUM
KARLSRUHE**

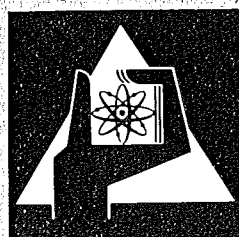
Februar 1974

KFK 1933

Institut für Material- und Festkörperforschung

**Materialien für Energieversorgungseinheiten
implantierbarer biomedizinischer Systeme**

S. Nazaré



**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

KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE

KFK 1933

Institut für Material- und Festkörperforschung

Materialien für Energieversorgungseinheiten implantierbarer bio-
medizinischer Systeme

von

S. Nazaré

Gesellschaft für Kernforschung m.b.H., K a r l s r u h e

Zusammenfassung

Dieser Bericht befaßt sich mit dem Kenntnisstand von Materialien für implantierbare Energiequellen biomedizinischer Systeme. Behandelt wird die Herstellung von Pu 238 aus AmO₂ bzw. NpO₂-Al-Cermets. Es werden ferner Auswahlkriterien für geeignete Brenn- und Hüllwerkstoffe für Energiequellen dargestellt. Die für die Sicherheit solcher Systeme erforderlichen Tests werden genannt. Eine Aufstellung der Materialdaten, die für die sichere Auslegung derartiger Energiequellen notwendig sind, schließt sich an.

Materials for implantable heat sources for circulatory assist-devices

Abstract

The report reviews the state-of the-art in the materials used in heat sources for circulatory assist devices. The topics dealt with include the preparation of Pu 238 by irradiation of NpO₂ or AmO₂-Al-cermets, considerations for the choice of fuel compounds and cladding materials for the heat sources, test parameters to determine the safety of such devices and presents a list of materials data that would assist in the design of such devices and enable an assessment of their safety.

1. Einleitung

Seit einigen Jahren wird intensiv an der Entwicklung von Radionuklidbatterien als langlebige Energieversorgungseinheiten für Kreislaufstütz- und Ersatzsysteme gearbeitet. Sehr weit fortgeschritten ist bereits die Entwicklung von Isotopenbatterien für Herzschrittmacher, die zur Zeit in mehreren Humanimplantationen erprobt werden. Weit schwieriger ist die Entwicklung von größeren Kreislaufersatzsystemen, die hohe Anforderungen an vorhandene Technologien und Werkstoffe stellen. Ziel dieses Berichtes ist es, den heutigen Stand der Kenntnis von Materialdaten und der Materialentwicklung zusammenfassend darzustellen.

2. Brennstoffe für Isotopenbatterien

Die wesentlichen Anforderungen, die ein idealer Brennstoff erfüllen sollte, sind [1]:

1. Hohe Halbwertszeit und Leistungsdichte
2. Hohe chemische und mechanische Stabilität
3. Gute Verträglichkeit mit dem Hüllmaterial
4. Herstellbarkeit in genügend großen Mengen bei niedrigen Kosten.

Keinesder in Frage kommenden Isotope (Tab. I) erfüllt alle diese Forderungen, so daß eine Auswahl primär durch die Einsatzbedingungen und Sicherheitsaspekte geschehen muß.

In der biomedizinischen Anwendung hat sich das ^{238}Pu weitgehend durchgesetzt. Dieses Isotop ist zwar ein reiner α -Strahler, kommt aber in der Praxis mit anderen Isotopen höheren Atomgewichtes (^{239}Pu , ^{240}Pu , ^{241}Pu , ^{242}Pu), insbesondere mit ^{236}Pu verunreinigt vor, das in seiner Zerfallskette Tochternuklide mit harter γ -Strahlung aufweist. Eine typische Zusammensetzung zeigt Tab. II.

Zur Herabsetzung der Strahlenbelastung des Trägers von Kreislaufstützsystemen ist es daher erforderlich, den anfänglichen ^{236}Pu -Gehalt in ^{238}Pu soweit wie möglich zu senken. Wie Abb. 1 zeigt, wird das ohnehin erhebliche Strahlungsgrundniveau bereits durch geringe ^{236}Pu -Verunreinigungen im Laufe der Verwendungszeit erheblich angehoben [3].

3. Herstellung von ^{238}Pu

Die Erzeugung von ^{238}Pu geschieht vorerst überwiegend durch die Bestrahlung von ^{237}Np -Targets nach der Aufbaukette der Transurane [3], die in Abb. 2 dargestellt ist. Als Targets werden NpO_2 -Al-Cermets (13-23 Gew.-% NpO_2) eingesetzt [4]. Die Ausgangspulver (Partikelgröße NpO_2 6-10 μm , Al: ca. 40 μm) werden mechanisch gemischt und kaltgepreßt (Preßdruck ca. 3,1 Mp/cm^2 , Dichte ca. 90 % TD). Als Umhüllung wird zum Teil ebenfalls Aluminium eingesetzt. Zur Verbesserung des Wärmeüberganges wird eine metallurgische Bindung zwischen Brennstoff und Hülle durch Heißpressen (Preßdruck 1,55 - 3,1 Mp/cm^2 , Temperatur 550 - 620°C) erzielt. Wegen der Gasfreisetzung (Spaltgas, Helium) sind in einigen Targetkonzepten poröse Cermets (20 - 30 % Porosität) vorgesehen.

Die Reinheit des ^{238}Pu hängt von den Bestrahlungsbedingungen ab und kann außerdem durch die Wahl von anderen Matrixmaterialien [5] (z.B. Magnesium, Zirkon, Kohlenstoff) beeinflusst werden. In Abb. 3 ist die Reinheit des ^{238}Pu , erzeugt in Al- bzw. Graphit-Matrix, vergleichend dargestellt. Obwohl auf diese Weise der ^{236}Pu -Anteil erheblich gesenkt werden kann, treten während der Aufbereitung große Schwierigkeiten auf. In Erprobung befindet sich deswegen ein Targetkonzept, bei dem ein ringförmiges NpO_2 -Al-Cermet (38 mm \varnothing , 25,4 mm lang, 1,5 mm hoch) mit einem leicht abtrennbaren Graphitkern eingesetzt wird. Die ringförmigen NpO_2 -Al-Cermets (33 Gew.-% NpO_2) werden durch Kaltpressen (mit 2 Gew.-% Carbowax als Gleit- und Bindemittel) und Sintern (630°C, 4 h) hergestellt [5].

Reines ^{238}Pu kann man auch durch Bestrahlung von ^{241}Am , nach der Aufbaukette [3] in Abb. 4 erzeugen. Nach einer Abkühlung der bestrahlten Proben über etwa 2 Jahre weist das Produkt folgende Zusammensetzung auf:

<u>Isotop</u>	<u>Anteil (Gew.%)</u>
238 Pu	75 - 80
239 Pu	7
240 Pu	2
241 Pu	0 - 5
242 Pu	16

Durch die Verunreinigung mit 242 Pu wird eine Dosisleistung erzeugt, die etwa 0,1 ppm 236 Pu entspricht. Isotopenreines 238 Pu kann durch sofortige Abtrennung von 242 Cm nach der Bestrahlung und anschließende Lagerung erzielt werden. Als Targets werden zylindrische AmO₂-Al-Pellets eingesetzt (24 mm Ø), die durch Kaltpressen und anschließendes Heißpressen mit Aluminium umhüllt werden.

4. Anwendung von 238 Pu in Herzschrittmacher

Ein gestörter Herzrhythmus kann in vielen Fällen durch elektrische Impulse stimuliert werden [6,7]. Die Charakteristika dieser Impulse sind:

Dauer	1 - 2 ms
Spannung	4 - 6 V
Stromamplitude	5 - 15 mA
Impulsfrequenz	bis 120 imp/min
Dauerleistung	≥ 160 µW el.

Es gibt mehrere Arten von Herzschrittmachern; die wichtigsten sind: asynchrone Einheit mit vorgegebener Impulszahl und synchrone Einheiten, die die Herztätigkeit überwachen und ständig oder nach Bedarf stimulieren [8]. Das Arbeitsprinzip eines solchen Systems zeigt Abb. 5.

Für die Energieumwandlung kommen mehrere Methoden, wie z.B. thermionische, photovoltaische und thermoelektrische in Frage. Dabei ist die thermoelektrische Umwandlung bereits soweit entwickelt, daß sie in Herzschrittmachern verwendet wird. Für die Umwandlung werden sowohl dünne Thermoelementdrähte [9,10] als auch Halbleiterlegierungen [11,12]

(Bi-Te) eingesetzt. Gegebenenfalls wird ein Gleichspannungswandler zur Erzeugung der Endspannung (6 V) nachgeschaltet.

Die Sicherheit solcher Systeme hängt überwiegend von der Stabilität des Brennstoffes in der Hülle ab. Daher wird der Auswahl einer geeigneten Brennstoffkombination große Aufmerksamkeit gewidmet.

5. Brennstoffform

Das übergeordnete Kriterium für die Auswahl geeigneter Brennstoffkombination ist die Sicherheit sowohl für den Träger des Systems als auch für dessen Umgebung. Daraus ergeben sich folgende Anforderungen an die Brennstoffverbindung:

1. Sehr geringe Strahlungsemission
2. Maximale Sicherheit der Kapsel mit Umhüllung gegenüber Austritt von Brennstoff und dessen Verbreitung in die Umgebung.

Aus diesen Gründen muß die Brennstoffkombination eine hohe mechanische, thermische und Korrosions-Stabilität aufweisen. In Tab. III sind einige mögliche Brennstoffkombinationen [2] zusammengestellt. Die keramischen Verbindungen des ^{238}Pu werden wegen ihres hohen Schmelzpunktes bevorzugt, wenn auch stabilisierte Legierungen [7] (z.B. mit 10 Gew.% Sc) in den französischen Herzschrittmachern angewendet werden. Das PuO_2 wird als gesintertes Pellet eingesetzt. In Anlehnung an die bekannten Herstellungsverfahren für $^{239}\text{PuO}_2$ -Pellets dürften sich folgende Herstellungsbedingungen [13] als günstig erweisen:

Preßdruck:	6 - 7 Mp/cm^2
Sintertemperatur:	1400 - 1600 $^{\circ}\text{C}$
Sinterdauer:	bis 4 h
Sinteratmosphäre:	Argon/Wasserstoff.

Die Geometrie der umhüllten Kapsel wird so gewählt, daß eine optimale Anpassung an das Wandlersystem mit hoher mechanischer Stabilität und geringen Wärmeverlusten gewährleistet wird. Es werden sowohl zylindrische als auch kugelige Formen eingesetzt. Als erste Umhüllung wird eine Tantal- bzw. Ta-10 Gew.-% W-Legierung verwendet. Diese Legierung ist bis zu hohen Temperaturen (1500°C) mit $^{238}\text{PuO}_2$ gut verträglich. Als zweite Umhüllung wird Pt bzw. Pt-20 Gew.-% Ir-Legierung verwendet, die eine gute Hochtemperaturfestigkeit und Korrosionsstabilität aufweist [14].

Die Kapsel wird so dimensioniert, daß auch unter extremen Bedingungen und langfristigem Innerem He-Druckaufbau, im Schadensfall keine Freisetzung von Brennstoff vorkommt. Die Qualitätsprüfung geschieht durch umfangreiche Tests, die in Tab. IV zusammengestellt sind [15].

6. Kreislaufersatz-Systeme

Im Gegensatz zu den Herzschrittmachern sind solche Systeme weitaus komplexer und befinden sich noch in der Entwicklungsphase. Neben den technologischen und biomedizinischen Problemen, müssen den Sicherheitsaspekten wegen der höheren Pu-238-Mengen (30- 60 g) große Beachtung gewidmet werden.

Abb. 6a zeigt schematisch die verschiedenen Komponenten des Systems, Abb. 6b die Brennstoffkapselkonstruktion. Der $^{238}\text{PuO}_2$ -Brennstoff wird in Form zweier gesinterter Pellets eingesetzt. Um die Verträglichkeit mit den Kapselmaterialien zu verbessern, wird ein leicht unterstöchiometrischer Brennstoff bevorzugt [16].

Der Brennstoff wird mehrmals umhüllt, um zu gewährleisten, daß es sowohl während des Betriebes als auch bei vorstellbaren Unfällen zu keiner Freisetzung von Aktivitäten kommt. Daher muß die Kapselkonstruktion so ausgelegt sein, daß sie elastischen, plastischen und Kriechdeformationen standhält. Solche Belastungen entstehen durch den Heliumdruck während des Betriebes und können verstärkt werden, wenn der Träger des Systems einer hohen Temperatur beim Unfall ausgesetzt ist.

Die erste Umhüllung besteht aus reinem Tantal und stellt eine Diffusionsbarriere zwischen dem $^{238}\text{PuO}_2$ und der zweiten Umhüllung dar. Diese besteht aus der Hochtemperatur-Tantalbasislegierung T-111 (Ta-8 % W-2 % Hf), die den eigentlichen mechanischen Belastungen standhalten soll. Schließlich wird eine dritte Umhüllung aus der edlen Pt-20 % Rh-Legierung verwendet, die Oxydations- und Korrosionsschutz gewährt. Sämtliche Umhüllungen werden durch Elektronenstrahlschweißen verschlossen und jeweils durch Heliumleck- und Ultraschalltests auf Dichtigkeit überprüft.

Die gesamte Kapsel wird einer Reihe von Tests unterworfen, die ihre Betriebssicherheit überprüfen sollen. Es sind dies [16]

Freier Fall: 9,1 m auf hartem Gegenstand
Thermische Belastung: 800°C , 30 min
Wasserkorrosion: ~ 90 cm Wasser, 8 h

Feuerunfall:

Brand: 1316°C , 1 h
Betriebsunfall: 927°C , 24 h, -57°C , 24 h
Thermoschock: -57 bis 927°C in 15 min

Mechanische Belastung:

Aufschlag: 5,5 kg von 3 m Höhe auf die Kapsel
Durchlöcherung: 13,4 m/s auf 3 mm pln
Scherung: 4550 kg, 1 h
Quetschung: 9090 kg, 1 h
Außendruck: 204 atm, 15 min
Systemunfall: 180 atm, 1266°C mit Aufheizung u. Abkühlung
Korrosion: LiF/Naf LiF/LiCl 1266°C , 2 h

Für die sichere Auslegung der Brennstoffkapsel und zur Analyse ihres Verhaltens unter extremen Bedingungen ist die Kenntnis der Eigenschaften der Werkstoffe von großer Bedeutung. Sie sind nachstehend, soweit bekannt, zusammengefaßt. Die Zusammenstellung soll zugleich diejenigen Lücken aufweisen, wo eigene experimentelle Untersuchungen erforderlich wären.

Eigenschaften von PuO₂ [17]:

Gittertyp:	K.f.Z	
Gitterparameter (RT):	5,3960 ± 0,0003 Å	
Dichte:	11,46 g/cm ³	
Schmelzpunkt:	2390 ± 20°C	
Oberflächenspannung:	525 dyn/cm (+ 15 %)	} am Schmelzpunkt
Viskosität:	32 centipolse (+ 25 %)	

Thermodynamische Daten:

T in K	C _p in cal·mol ⁻¹ ·K ⁻¹	S _T -S ₀ in cal·mol ⁻¹ ·K ⁻¹	H _T -H ₀ in cal/mol	-(G _T -H ₀)/T in cal·mol ⁻¹ ·K ⁻¹
25	0.80	0.43	7	0.15
50	2.62	1.50	48	0.54
75	4.58	2.94	138	1.09
100	6.35	4.50	276	1.75
125	7.89	6.09	454	2.46
150	9.28	7.65	669	3.19
175	10.61	9.18	918	3.94
200	11.92	10.69	1199	4.69
225	13.20	12.16	1513	5.44
250	14.42	13.62	1858	6.18
275	15.56	15.05	2233	6.92
298.16	16.50	16.34	2605	7.61
300	16.57	16.44	2635	7.66
350	18.15	19.12	3506	9.11
400	19.19	21.62	4441	10.52
450	19.85	23.92	5418	11.88
500	20.30	26.04	6423	13.19
600	20.93	29.80	8486	15.66
700	21.33	33.06	10601	17.91
800	21.57	35.92	12747	19.99
900	21.76	38.47	14914	21.90
1000	21.90	40.76	17097	23.68
1100	22.00	42.87	19293	25.33
1200	22.08	44.79	21497	26.87

1300	22.17	46.56	23710	28.32
1400	22.22	48.20	25929	29.68
1500 ^{x)}	22.27	49.74	28153	30.97
1600 ^{x)}	22.32	51.17	30383	32.19
1700 ^{x)}	22.36	52.53	32617	33.34
1800 ^{x)}	22.39	53.81	34855	34.44

x) extrapoliert

Wärmeleitfähigkeit [18]

Temperatur (°C)	Wärmeleitfähigkeit (Wcm ⁻¹ ·°C ⁻¹)
104	0.0700
113	0.0810
147	0.0732
170	0.0650
243	0.0560
249	0.0653
287	0.0564
316	0.0582
358	0.0530
392	0.0550
441	0.0524
531	0.0470
579	0.0495
606	0.0445
670	0.0405
730	0.0394
786	0.0370
868	0.0340
912	0.0323
984	0.0312
1046	0.0288
1130	0.0274
1165	0.0268
1225	0.0256
1258	0.0242
1318	0.0232
1375	0.0214
1414	0.0213
1516	0.0196
1615	0.0186
1633	0.0171
1645	0.0166
1655	0.0171

Thermischer Ausdehnungskoeffizient $\alpha = 5,17 \times 10^{-6} + 1,35 \times 10^{-8} T - 5,28 \times 10^{-11} T^2 + 7,10 \times 10^{-14} T^3 - 2,44 \times 10^{-17} T^4$ [α] = grad^{-1}
 $14^\circ\text{C} < T < 1137^\circ\text{C}$

Löslichkeitsrate [18]

Seewasser $\mu\text{g Pu d}^{-1} \text{mm}^{-2}$	destilliertes Wasser $\mu\text{g Pu d}^{-1} \text{mm}^{-2}$
$2,9 - 3,1 \times 10^{-4}$	$2,7 - 2,9 \times 10^{-4}$

Tantal: [19]

Gittertyp: kubisch raumzentriert
Gitterparameter (RT): 3,296 Å
Dichte: 16,66 g/cm³
Schmelzpunkt: 2996°C

Thermischer Ausdehnungskoeffizient:

T (°C)	α (grd. ⁻¹)
0 - 100	$6,5 \times 10^{-6}$
0 - 500	$6,6 \times 10^{-6}$
20 - 1500	$8,0 \times 10^{-6}$

Wärmeleitfähigkeit:

T (°C)	Wärmeleitfähigkeit W cm ⁻¹ grd ⁻¹
568	0.6808
828	0.7185
1106	0.7521
1416	0.7898
1547	0.7877
1830	0.8296

Mechanische Eigenschaften bei Raumtemperatur

(Bleche, rekristallisiert)

σ_B (Kp/mm ²)	σ_s (Kp/mm ²)	E-Modul (Kp/mm ²)	Poissons- zahl	σ (%)
28-35	21-28	18980	0-35	30-40

Warmfestigkeit

(Werte schwanken je nach der Verarbeitung und den Verunreinigungen)

T °C	σ_{B2} kp/mm ²	$\sigma_{0,2,2}$ kp/mm ²
1000	15	8,5
1200	10,3	5,3
1650	2,8-7,5	2,7-5,3
2000	2,6-3,6	1,1-1,8
2200	2,1-2,8	1,0-1,3
2500	1,2-1,8	0,5-0,9
2800	0,7-0,9	0,3-0,5

Zeitstandfestigkeit ($\dot{\sigma}_{B/100}$) bzw. $\sigma_{B/1000}$ [20]

Bezeichnung	$\sigma_{B/100}$ (kp/mm ²)				
	Temperatur (°C)				
	1000	1100	1200	1300	1400
Ta	5	3,5	2,5	1,5	1,0
T-111	$\sigma_{B/1000}$				
	20	12			

Eigenschaften von Pt - 20 % Rh- bzw. Ir-Legierungen

[22]

	Pt-20 % Rh			Pt-20 % Ir		
Schmelzpunkt (°C)	~ 1850			~ 1815		
Dichte (g/cm ³)	18,7			21,8		
Thermischer Ausdehnungs- koeffizient (°C ⁻¹)						
o - 100°C	9,3 × 10 ⁻⁶			8,3 × 10 ⁻⁶		
o - 1000°C	9,9 × 10 ⁻⁶			9,05 × 10 ⁻⁶		
Zugfestigkeit (kp/mm ²) (Raumtemperatur)	43			65		
Zeitstandfestigkeit (kp/mm ²) (Temperatur)	1 h	10 h	100 h	1 h	10 h	100 h
900°C	13	8,2	4,9	-	6,5	3,9
1400°C	1,8	0,95	-	-	-	-
1460°C	-	-	-	-	1,26	0,3

Auch bei einer mehrfachen Umhüllung des Brennstoffes und einer sicheren Auslegung der Brennstoffkapsel sind Situationen denkbar, die eine Freisetzung des Brennstoffs hervorrufen können. Ob dieser Fall eintritt, hängt in erster Linie von den mechanischen Eigenschaften und den Hüllmaterialien ab. Bei einer schlagartigen Beanspruchung der Brennstoffkapsel kann es zu einer Zertrümmerung des spröden $^{238}\text{PuO}_2$ kommen mit einer anschließenden Verbreitung der feinsten Teilchen in die Umgebung.

Es liegen bisher wenige Daten über Art und Umfang der Zerkleinerung in Abhängigkeit von der Kapselgeometrie, den Aufprallbedingungen und der $^{238}\text{PuO}_2$ -Dichte vor. Es wurden lediglich einige Untersuchungen an sphärischen $^{238}\text{PuO}_2$ -Teilchen (84 - 95 % TD) in zylindrischen V2A-Umhüllungen (Schmierdichte 57 % TD) durchgeführt.

Die Kapseln ließ man mit verschiedenen Geschwindigkeiten auf einen Granitblock (mit ihrer Längsachse senkrecht zur Blockfläche) aufprallen. Folgende Partikelgrößenverteilung lag vor dem Aufprall vor:

Partikelgröße (μm)	Anteil Gew-%
> 105	79,6
53 - 105	20,3
37 - 44	0,1

In Abb. 7 ist der Anteil der zertrümmerten Teilchen (< 44 μm) in Abhängigkeit von der Aufprallgeschwindigkeit dargestellt. Erwartungsgemäß nimmt dieser Anteil zunächst mit wachsender Geschwindigkeit zu, erreicht jedoch einen Sättigungswert. Dieser dürfte durch die Pufferwirkung der zertrümmerten Teilchen bei gleichzeitiger Verdichtung hervorgerufen sein. Die Partikelgrößenverteilung bei zwei stark unterschiedlichen Aufprallgeschwindigkeiten zeigt Abb. 8. Eine Erhöhung des Anteils feiner Teilchen mit erhöhter Aufprallgeschwindigkeit ist deutlich zu erkennen. Schließlich zeigt Tab. V eine Analyse der Anzahl der untrafeinen Teilchen (< 10 μm), die beim Aufprall entstehen.

7. Schlußfolgerungen

Die vorstehenden Ausführungen lassen folgende Schlüsse hinsichtlich der Materialprobleme zu:

- sowohl für Herzschrittmacher als auch für Kreislaufersatzsysteme ist die Werkstoffproblematik im wesentlichen vergleichbar. Lediglich die höhere Pu-Konzentration im Falle der Kreislaufersatzsysteme macht eine kritischere Behandlung ihrer Materialfragen erforderlich.
- für diese Behandlung von Materialproblemen muß der Sicherheitsaspekt im Vordergrund stehen und erst in zweiter Linie kann der Forderung nach hoher thermischer und elektrischer Effektivität Rechnung getragen werden; aus dieser Feststellung ergibt sich Priorität für die Behandlung von Verträglichkeitsfragen, Heliumgasspeicherung und - für den Katastrophenfall - die Verhinderung einer Pu-Verseuchung.
- von allen in Frage kommenden Brennstoffformen (gesintertes PuO_2 , plasmaerschmolzene Mikrokugeln aus PuO_2 , Cermets) sind aufgrund der vorliegenden Randbedingungen Cermets mit metallischer Matrix am ehesten geeignet, das Sicherheitsrisiko zu vermindern:
 1. Durch Wahl einer geeigneten Matrix kann die chemische und thermische Verträglichkeit zwischen Brennstoff und Hüllmaterial verbessert werden.
 2. Die gegenüber dem PuO_2 erhöhte Wärmeleitfähigkeit führt zu geringeren Betriebstemperaturen und verbessert damit die mechanische Stabilität der Systeme.
 3. Bei einer unfallbedingten mechanischen Belastung (z.B. Aufprall) wird durch die erhöhte Plastizität die Bruchgefahr herabgesetzt.
 4. Tritt eine Zertrümmerung der Brennstoffe dennoch ein, kann damit gerechnet werden, daß einzelne PuO_2 -Teilchen ihre metallische Hülle behalten, insbesondere dann, wenn diese durch Abscheidung aus der Dampfphase aufgebracht wurde.

Literatur

- [1] Penn, A.W., Phys. Bull., London 22, 207-210 (1971)

- [2] Mullins, L.J., USAEC Report LA-DC-72-473 (1972)

- [3] Gasteiger, R. (ed.), PACT-Bericht Nr. 36 (1973)

- [4] Schulz, W.W., Benedict, G.E., TID-25955 (1972)

- [5] Lindsey, W.J. et al., Nuclear Technology 13, 78-82 (1972)

- [6] Lins, W., Weinlander, W., Second International Conference on Power from Radioisotopes, P. EN/IB 40

- [7] Renner, T., BMBW-FBK-71-23 (1971)

- [8] Hixon, J.D., Isotopes and Radiation Technology 9 (2) 216-222 (1972)

- [9] NUMEC Report 3731-22 (1970)

- [10] NUMEC Report 3731-24 (1970)

- [11] Myatt, J. et al., Second International Conference on Power from Radioisotopes (P. EN/IB 43) 1972

- [12] Alais, M., Ibid Paper EN/IB/18

- [13] Thümmler, F., Gebhardt, E., Reaktorwerkstoffe, Teil II, Teubner-Verlag (1969)

- [14] Selle, J.E. et al., USAEC Report MLM-1706 (1970)

- [15] Boucher, R.M. et al., Second International Conference on Power from Radioisotopes Paper EN/IB 3

- [16] Harmison, L.T. et al., Ibid EN/IB 1o

- [17] Gmelins Handbuch der anorg. Chemie, 8. Auflage Erg.-Werk,
Bd. 4, Transurane Teil C (Verlag Chemie, Weinheim/Bergstr.)
(1972)

- [18] USAEC Report MLM-1564

- [19] Landoldt-Börnstein Bd. IV/2 b, S. 166 ff.

- [20] Refractory metal alloys, Edited by Macklin et al.,
Plenum Press N.Y., 1968

- [21] Bonnel, P.H., USAEC Report MLM 1626 (1969) und MLM 1499 (1968)

- [22] Handbuch der Edelmetalle, Degussa, Frankfurt (1967)

Tab. I: Mögliche Isotope für Energiequellen [1]

Isotop	Halbwertszeit (α)	Zerfalls- art	Leistungs- dichte Wg^{-1}
238 Pu	89	α	0.66
244 Cm	18	α	2.4
242 Cm	0.44	α	120
210 Po	0.38	α	140
228 Th	1.9	α	170
90 Sr	28	β	0.95
137 Cs	30	β	0.42
144 Ce	0.78	$\beta-(\alpha)$	25
60 Co	5.3	$\beta(\alpha)$	17.4
227 Ac	2.2	$\beta-, \alpha$	14.5
232 U	74	α	4.4

Tab. II: ²³⁸Pu-Isotopenzusammensetzung [2] aus Np 237

Pu-Isotop	Anteil (Gew.-%)	
	herkömmliches	biomedizinisches
236	$1-3 \times 10^{-4}$	$< 3 \times 10^{-5}$
238	80.0	90.4
239	16.3	9.0
240	3.0	0.8
241	0.6	0.03
242	0.1	< 0.01

Zusammensetzung	Schmelzpunkt (°C)	Leistungsdichte Watt/cm ³
Pu	640	7.2
Pu-3Ga	670	7.1
Pu-10Sc	750	6.6
Pu ₄ Zr	800	5.9
(PuFc ₂ +Fe)	1165	3.9
PuPt ₂	1475	3.2
PuC ¹²	1650	5.4
PuN ¹⁵	2200	5.6
PuO ₂ ¹⁶	2400	4.2

Tab. III [2] Mögliche Brennstoffkombinationen für Kreislaufstutz- und Ersatzsysteme

Test	Bedingungen	Temperatur (°C)	Innendruck kp/cm ²
Schlag	50 m/s auf Granit, Beton oder Stahl (Kapselorientierung für maximale Beschädigung)	T ± 50	30
Quetschung	1000 kp Kraft zwischen zwei Stahl- backen (2 cm dick)	T ± 50	30
Thermischer	30 min bei 800°C und Wasserab- schreckung (entspricht Brand)	800	850
	30 min bei 1300°C (entspricht Einäscherung)	1300	130
Korrosion	1 Jahr in Seewasser mit und ohne Sauerstoff (lineare Korrosion <1µm) Anzahl der Grübchen <5 cm ⁻² ; Tiefe 5 µm	T ± 50	
Dichtigkeit	vor und nach jedem Test 10 ⁻⁸ cm ³ s ⁻¹		

Tab. IV Vorläufige Testbedingungen für Kreislaufstutzsysteme

Partikelgrößenbereich[μm]	Häufigkeit (%)	
	a.	b.
0.1 - 0.144	0	0
0.145 - 0.206	0	0
0.207 - 0.295	1.34	2.96
0.296 - 0.422	18.81	26.62
0.423 - 0.608	38.50	29.09
0.609 - 0.872	22.22	17.75
0.873 - 1.25	13.19	17.91
1.26 - 1.79	5.11	4.82
1.80 - 2.57	0.553	0.78
2.58 - 3.70	0.195	0.07
3.71 - 3.92	0.061	0
5.33 - 7.61	0.01	0
7.62 - 10.90	0.006	0

Tab. V Teilchenhäufigkeit von PuO_2 bei 2 verschiedenen Zertrümmerungsgeschwindigkeiten (a-31 m/s; b-32,2 m/s)

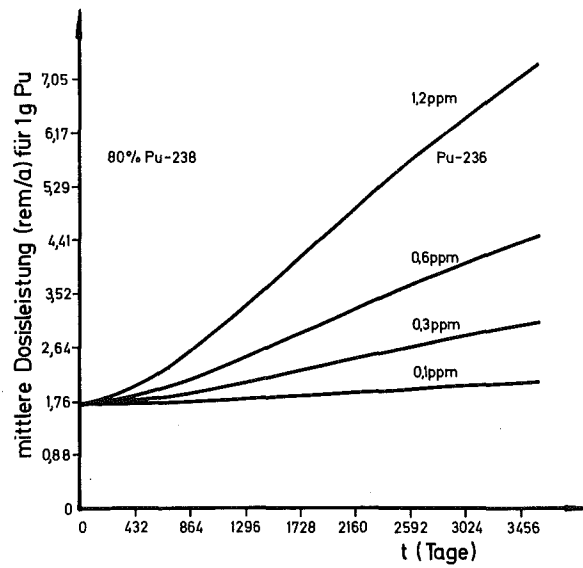


Abb. 1 Dosisleistung von ^{238}Pu mit unterschiedlichem ^{236}Pu -Anteil als Funktion der Zeit [3]

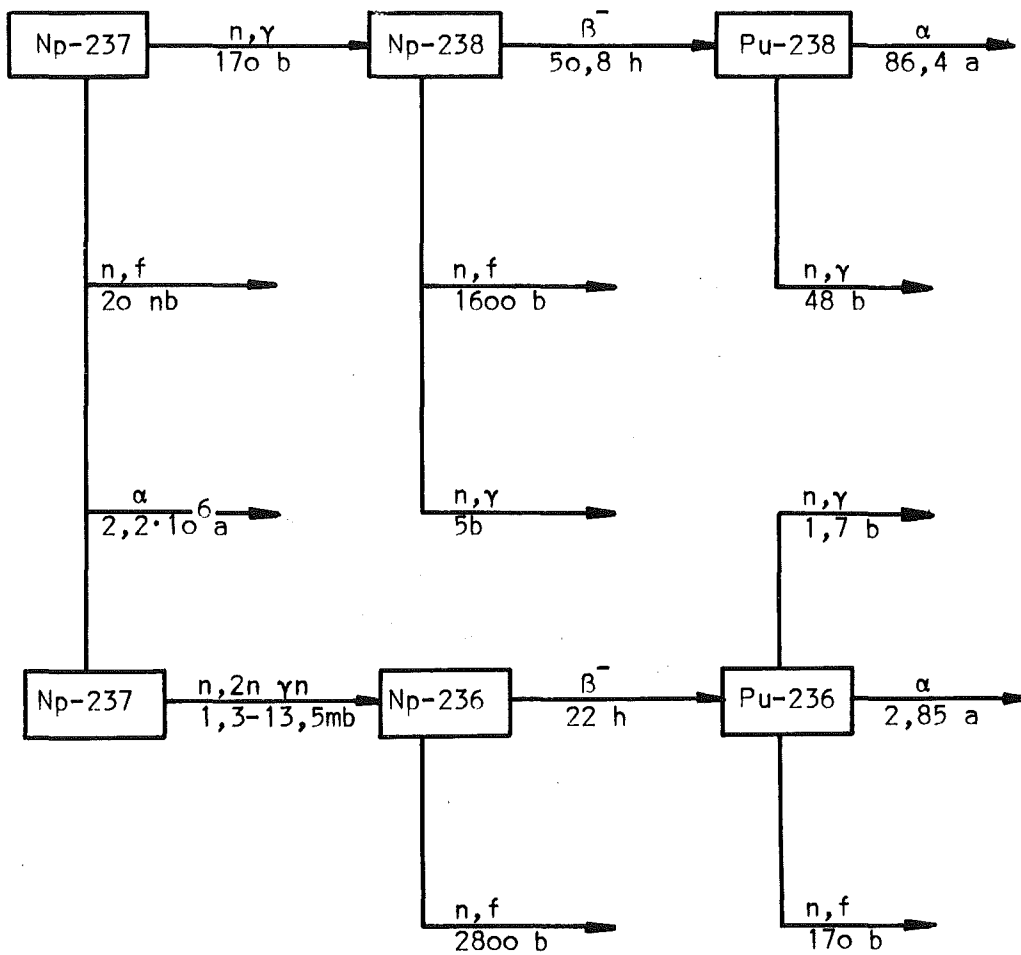


Abb. 2 Aufbau von ^{238}Pu aus ^{237}Np [3]

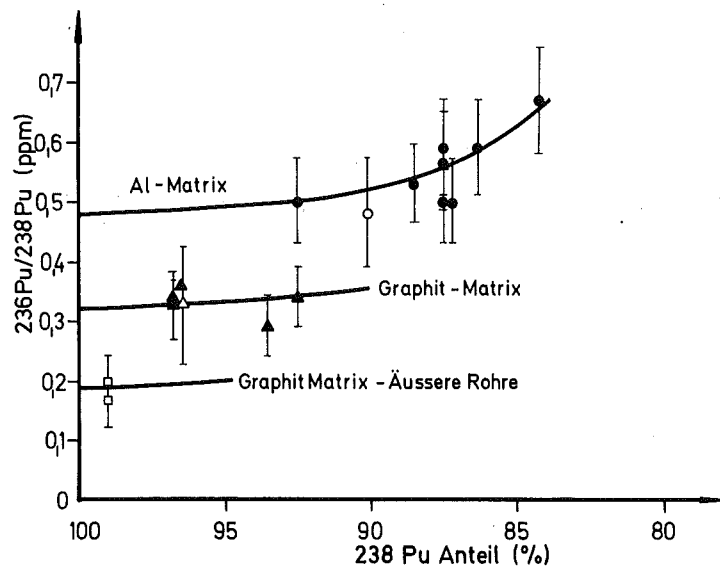


Abb. 3 Reinheit von ^{238}Pu erzeugt in Targets aus verschiedenen Matrixmaterialien [5]

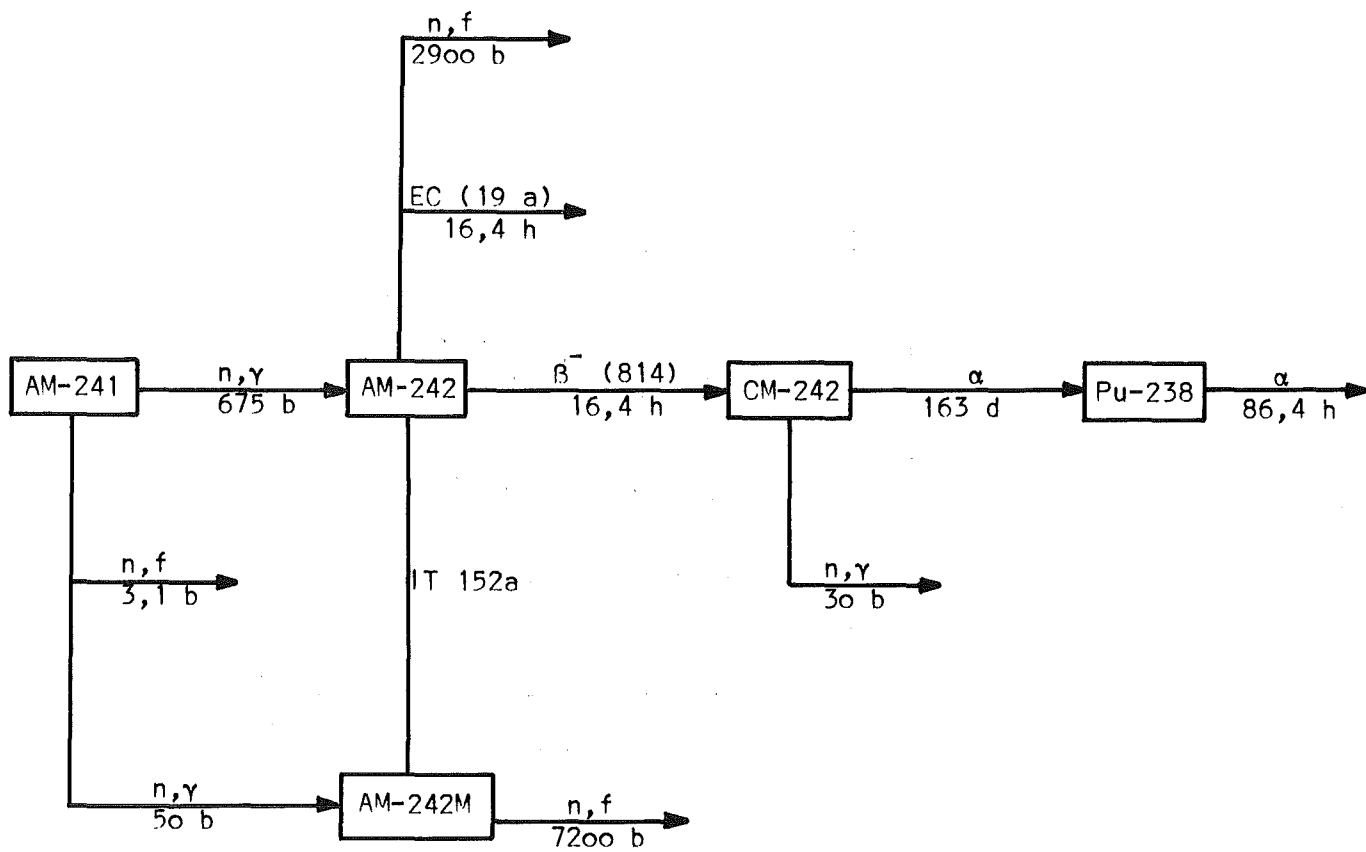


Abb. 4 Aufbau von 238 Pu aus 241 Am [3]

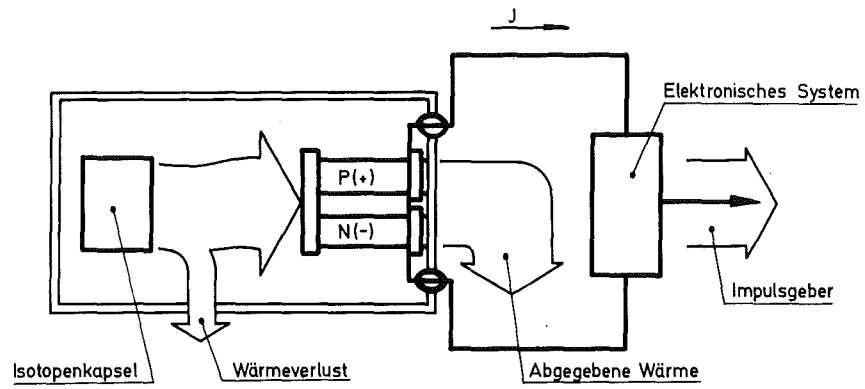


Abb. 5 Funktionsschema eines Herzschrittmachers

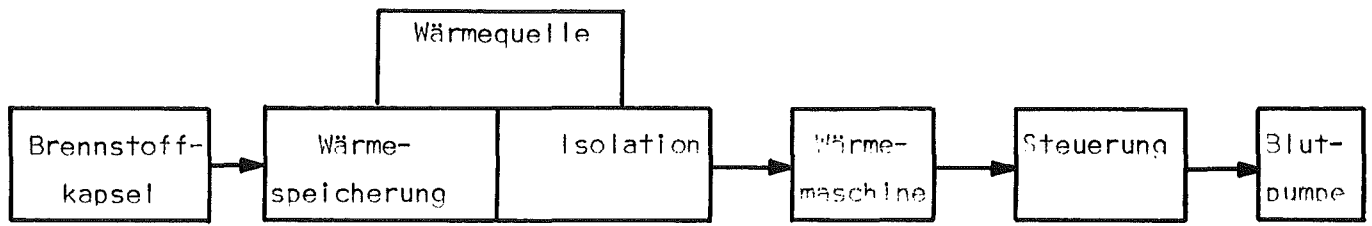


Abb. 6a Funktionsweise eines Kreislaufstützsystems (schematisch)
[16]

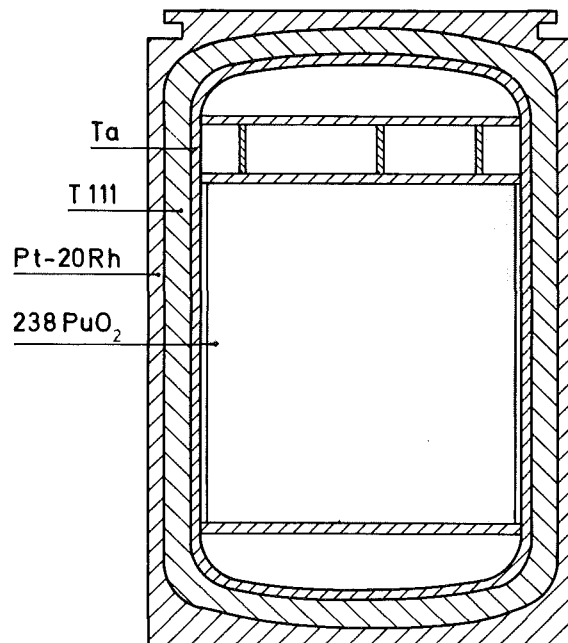


Abb. 6b Brennstoffkapsel für Kreislaufstützsysteme [16]

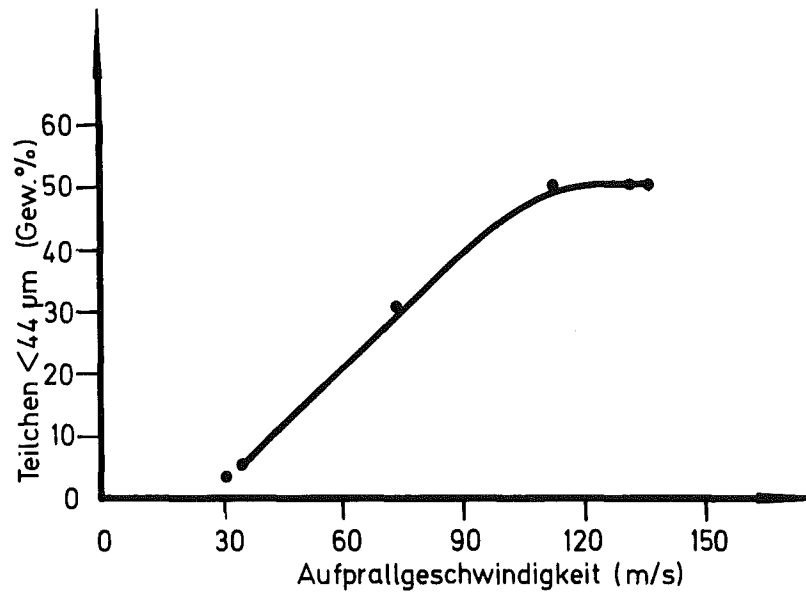


Abb. 7 Zertrümmerung von ^{238}Pu -Kugeln als Funktion der Aufprallgeschwindigkeit [21]

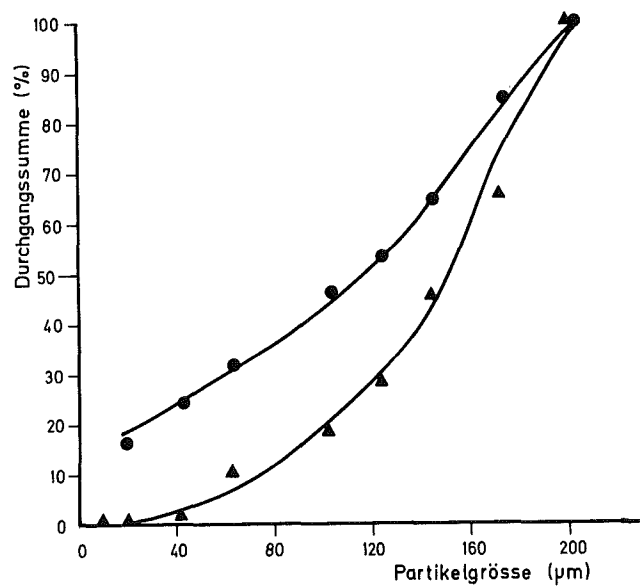


Abb. 8 Partikelgrößenverteilung von $^{238}\text{PuO}_2$ -Kugeln nach dem Aufprall [21]