

KfK 2991  
Juni 1980

# **Herstellung von Kernbrennstoff mit simuliertem Abbrand (Fissium) an der Anlage FIFA**

**J. Schreibmaier  
V. Matschoß, H. Albrecht,  
A. Mack**

**Hauptabteilung Kerntechnische Betriebe  
Institut für Radiochemie  
Hauptabteilung Ingenieurtechnik  
Projekt Nukleare Sicherheit**

**Kernforschungszentrum Karlsruhe**



KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE

HAUPTABTEILUNG KERNTECHNISCHE BETRIEBE

INSTITUT FÜR RADIOCHEMIE

HAUPTABTEILUNG INGENIEURTECHNIK

PROJEKT NUKLEARE SICHERHEIT

KfK 2991

HERSTELLUNG VON KERNBRENNSTOFF MIT SIMULIERTEM  
ABBRAND (FISSION) AN DER ANLAGE FIFA

J. Schreibmaier

V. Matschoß, H. Albrecht

A. Mack

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH, Karlsruhe

Als Manuskript vervielfältigt  
Für diesen Bericht behalten wir uns alle Rechte vor

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH  
ISSN 0303-4003

## Zusammenfassung

Fissium ist ein synthetisches Abbrandgemisch, das neben  $\text{UO}_2$  bis zu 13 repräsentative Spaltproduktarten enthält und eine Traceraktivität von einigen Hundert Mikrocurie aufweist. Es wird in Form von gepreßten und gesinterten Pellets hergestellt und anschließend in Zirkaloy-Rohre eingefüllt.

Der vorliegende Bericht enthält eine detaillierte Spezifikation des Fissiums, eine Beschreibung der Anlage FIFA und des Herstellungsprozesses sowie einige Untersuchungsergebnisse über die Eigenschaften der erzeugten Pellets.

Preparation of Nuclear Fuel with Simulated Burnup (Fissium)  
in the FIFA Facility

## Abstract

Fissium is a synthetic fuel containing  $\text{UO}_2$  and up to 13 representative fission products with tracer radioactivity of several hundred microcuries. The production includes pressing, sintering, and incapsulation of pellets in zircaloy tubes.

The report contains a detailed specification of the fission composition, a description of the facility FIFA and all steps of the production process. In addition, some properties of the resulting fission pellets are presented.

Inhaltsverzeichnis

	Seite
1. Einleitung	2
2. Fissium	
2.1. Anforderungen	3
2.2. Auswahl der Spaltelemente	4
2.3. Chemische Form der Spaltelemente im Fissium	5
2.4. Np - Aktivierungsprodukt des Brennstoffs	8
3. Anlage FIFA	
3.1. Beschreibung der Anlage	9
3.2. Boxen und Abschirmbehälter	11
3.3. Zu- und Abluftsystem	13
3.4. Dosisleistungskontrolle	13
3.5. Handschuhboxen	14
3.6. Technische Beschreibung wichtiger Anlagenteile	14
4. Beschreibung des Herstellungsprozesses	
4.1. Dosieren der Spaltelementkomponenten in Quarzampullen	21
4.2. Chargieren des $UO_2$ -Pulvers	21
4.3. Aktivierung der Komponenten	23
4.4. Schleusen der Fissiumbestandteile in die Anlage FIFA	23
4.5. Herstellen der Fissiumpulvermischungen	23
4.6. Chargieren des Fissiumpulvers	25
4.7. Ausschleusen der Kunststoffbehälter	25
4.8. Pelletieren	25
4.9. Sintern der Fissium II-Pellets	27
4.10. Einschweißen der Pellets in Zry-Kapseln	29
5. Ermittlung der Tracernuklidaktivitäten	30
6. Eigenschaften der an der Anlage erzeugten Fissiumpellets	32
7. Betriebserfahrungen	34
8. Literaturverzeichnis	35

## 1. Einleitung

Die hier beschriebene Fissiumherstellung steht in engem Zusammenhang mit dem Versuchsprogramm zur Bestimmung der Spaltproduktfreisetzung unter den Bedingungen eines LWR-Kernschmelzenunfalls (PNS-Vorhaben 4315). Das Spaltproduktinventar der in diesen Versuchen eingesetzten Brennstabprüflingen läßt sich im Prinzip auf verschiedene Weise erzeugen:

1. Durch Bestrahlung von frischem Brennstoff im Reaktor,
2. durch Simulation des Abbrandes mit einer Mischung aus  $UO_2$  und inaktiven Spaltelementen (inaktives Fissium) und
3. durch Simulation des Abbrandes mit schwach aktivem Fissium, das neben dem  $UO_2$  sowohl inaktive als auch aktive Spaltprodukte (als Tracer) enthält.

Bei der Planung der Versuche wurde die erste dieser Möglichkeiten sehr bald ausgeschlossen; da ein Brennstabprüfling von z.B. 100 g bei einem realistischen Abbrand (1 - 3 Atom%) auch nach langer Kühlzeit noch eine Aktivität von mindestens 10 Ci aufweist, wäre es nämlich erforderlich, die gesamte Schmelzanlage einschließlich der Spaltproduktmeßtechnik in einer heißen Zelle zu installieren.

Nach einer Prüfung der in Frage kommenden analytischen Methoden für den Nachweis der freigesetzten Spaltprodukte (1,2) wurde auch die 2. Möglichkeit nicht weiter verfolgt. Die wesentlichen Gründe dafür waren:

- Die Analyse der außerhalb des Schmelztiegels auf sehr verschiedenartigen Oberflächen niedergeschlagenen Spaltprodukte hätte einen hohen naßchemischen Aufwand erfordert;

- die ebenfalls freigesetzten Hauptkomponenten der Kernschmelze ( $\text{UO}_2$ , Zircaloy, Stahl) hätten die quantitative Bestimmung der Spaltprodukte erheblich erschwert.

Diese Nachteile treten beim Einsatz von schwach aktivem Fissium nicht auf; d.h.

- die Schmelzanlage kann ohne Abschirmmaßnahmen betrieben werden,
- der Nachweis der Spaltprodukte erfolgt  $\gamma$ -spektrometrisch, wobei eine Störung durch inaktive Freisetzungsprodukte entfällt und alle Bestandteile der Transportstrecke (Glasteile, Rohre, Filter) ohne chemische Behandlung ausgemessen werden können.

Das Verfahren zur Fissiumherstellung in der Anlage FIFA (3,4) wurde in den Jahren 1977/78 entwickelt und seitdem ohne wesentliche Unterbrechungen oder Änderungen angewandt.

## 2. Fissium

### 2.1 Anforderungen

Bei der Planung der Fissiumherstellung waren folgende Gesichtspunkte maßgebend:

- Alle wichtigen Spaltelemente sind selbst vorhanden oder durch chemisch und physikalisch ähnliche Komponenten vertreten.
- Ihre chemische Form ist so gewählt, daß sie in ähnlicher Form wie im Brennstoff vorliegen.
- Die Konzentration der Spaltelemente richtet sich nach dem vorgegebenen Abbrand.

- Eine homogene Verteilung aller Komponenten wird angestrebt.
- Auf den Einsatz von Spalteredelgasen wird verzichtet.
- Radioaktive Tracernuklide markieren die einzelnen Komponenten.
- Das Fissium wird in Form von gepreßten bzw. gesinterten Pellets hergestellt.
- Das Fissium I enthält neben den radioaktiv markierten leichtflüchtigen Spaltelementen auch die schwerflüchtigen in inaktiver Form.
- In den gesinterten Fissium II-Pellets sind nur die schwerflüchtigen Spaltelemente, radioaktiv markiert, enthalten.

## 2.2 Auswahl der Spaltelemente

Bei der Kernspaltung von U-235 mit thermischen Neutronen entsteht ein Spaltproduktspektrum von mehr als 35 verschiedenen Elementen. Wie aus Tabelle I zu erkennen ist, liegen einige Elemente in nur sehr geringen Mengen im Abbrand vor. Für die Herstellung des mit radioaktiven Tracernukliden markierten Fissiums kommen nur die Elemente in Frage, bei denen durch Aktivierung Radionuklide erzeugt werden, die sich für  $\gamma$ -spektrometrische Analysen eignen; d.h. die Radionuklide müssen in geeigneter Aktivität vorliegen, und ihre  $\gamma$ -Linien müssen ausreichende Übergangswahrscheinlichkeiten besitzen. Bei der Festlegung der Komponenten wurde versucht, jeweils ein geeignetes Spaltelement der chemischen Haupt- und Nebengruppen auszuwählen. Die Konzentration der Spaltelemente richtet sich nach dem vorgegebenen Abbrand. Bis jetzt wurde ausschließlich ein Abbrand von 44000 MWd/t zugrunde gelegt, in Tabelle II sind die diesem Abbrand entsprechenden Mengen zusammengefaßt. Bei den Elementen bzw. Verbindungen, die mehre-

re Spaltelemente repräsentieren, wurden die Massen so festgelegt, daß die Stöchiometrie mit der des Abbrandes übereinstimmt.

### 2.3 Chemische Form der Spaltelemente im Fissium

Die chemische Form der Spaltelemente hängt im wesentlichen vom Oxidationspotential des Brennstoffs ab. Bei der Festlegung der chemischen Form im Fissium wurde davon ausgegangen, daß stöchiometrisches  $UO_2$  vorliegt. Wie aus Untersuchungen bekannt ist, treten in den Pellets beim Einsatz im Reaktor Ausscheidungen von Spaltprodukten auf (5,6). Diese Ausscheidungen in der Uranoxidmatrix der Pellets sind sowohl oxidischer als auch metallischer Natur. Außerdem ist noch eine radiale und axiale Verteilung der Spaltprodukte in den einzelnen Pellets und Brennstäben zu beobachten. Da beim Schmelzen des Brennstoffs diese Inhomogenitäten sich ausgleichen, wurde bei der Fissiumherstellung darauf verzichtet, die Konzentrationsprofile und Spaltprodukteinschlüsse zu simulieren, sondern es wurde eine möglichst homogene Verteilung aller Komponenten angestrebt.

Bei einem Abbrand von  $44000 \text{ MWd/t}^+)$  liegen die Alkalimetalle Rb und Cs mit 0,89 bzw. 7,60 Gew.% im Brennstoff vor. Wegen vergleichbarer chemischer und physikalischer Eigenschaften wird Cs als Vertreter beider Spaltelemente gewählt. Cs wird in Form von CsJ und  $Cs_2CO_3$  eingesetzt;  $Cs_2CO_3$  zersetzt sich oberhalb  $610^\circ\text{C}$ . CsJ wird dazu verwendet, den entsprechenden Jodanteil einzubringen, da auf den Einsatz von elementarem J wegen der hohen Flüchtigkeit verzichtet werden muß. Das Tracerjod J-131 wird durch Bestrahlung von Te erzeugt.

Als repräsentatives Element für die Erdalkalimetalle Sr und Ba (2,46 bzw. 4,02 Gew.%) wurde Ba ausgewählt. Da die Erdalkalielemente in oxidischer Form im Brennstoff vorliegen, wird Ba in Form von BaO eingesetzt.

<sup>+) Diesem Abbrand liegen alle folgenden Gewichtsanteile zugrunde.</sup>

Tabelle I: Spaltelementkonzentrationen im abgebrannten UO<sub>2</sub>-Brennstoff (Abbrand 44000 MWd/t) (7)

Element	Konzentration (g/t Uran)	Element	Konzentration (g/t Uran)
As	$1,15 \cdot 10^{-1}$	J	$3,76 \cdot 10^2$
Se	$6,73 \cdot 10^1$	Xe	$7,40 \cdot 10^3$
Br	$1,99 \cdot 10^1$	Cs	$3,55 \cdot 10^3$
Kr	$4,71 \cdot 10^1$	Ba	$1,88 \cdot 10^3$
Rb	$4,15 \cdot 10^2$	La	$1,67 \cdot 10^3$
Sr	$1,15 \cdot 10^3$	Ce	$3,75 \cdot 10^3$
Y	$5,96 \cdot 10^2$	Pr	$1,52 \cdot 10^3$
Zr	$4,74 \cdot 10^3$	Nd	$4,97 \cdot 10^3$
Nb	$4,56 \cdot 10^1$	Pm	$1,11 \cdot 10^2$
Mo	$4,48 \cdot 10^3$	Sm	$1,06 \cdot 10^3$
Tc	$1,09 \cdot 10^3$	Eu	$2,88 \cdot 10^2$
Ru	$3,31 \cdot 10^3$	Gd	$2,23 \cdot 10^2$
Rh	$4,03 \cdot 10^2$	Tb	$2,87 \cdot 10^0$
Pd	$1,98 \cdot 10^3$	Dy	$1,69 \cdot 10^0$
Ag	$8,37 \cdot 10^1$	Ho	$2,46 \cdot 10^0$
Cd	$1,50 \cdot 10^2$	Er	$9,36 \cdot 10^{-2}$
In	$1,29 \cdot 10^0$		
Sn	$7,74 \cdot 10^1$		
Sb	$2,58 \cdot 10^1$		
Te	$7,89 \cdot 10^2$		

Tabelle II: Fissiumzusammensetzung (100 g Charge)

	Komponente	auch stellvertretend für	Masse (mg)
Fissium I	CsJ+Cs <sub>2</sub> CO <sub>3</sub>	Rb	71,3+404,8
	Mo		394,8
	Se		5,9
	Sb		2,5
	Cd		13,2
	Te		69,6
	Sn		7,0
	Fissium II / Fissium I	Ru	Rh, Pd
Ag			7,4
Nd <sub>2</sub> O <sub>3</sub>		Y, S.E.	1111,1
CeO <sub>2</sub>			405,8
BaO		Sr	339,3
ZrO <sub>2</sub>			570,0
U-238			100,0
UO <sub>2</sub>			100 g

Auf die Elemente der dritten Nebengruppe (Y, Seltene Erden) entfallen insgesamt 30,39 Gew.% aller Spaltprodukte. Diese Elemente werden im Fissium durch Nd und Ce repräsentiert und als  $\text{Nd}_2\text{O}_3$  bzw.  $\text{CeO}_2$  beigemischt.

Zr, mit 10,15 Gew.% im Abbrand enthalten, liegt als  $\text{ZrO}_2$  im Fissium vor.

Auf den Einsatz von Nb (0,1 Gew.%) wird verzichtet, da bei Experimenten mit aktivem Zr-95 die Freisetzung des als Tochternuklid gebildeten Nb-95 bestimmt werden kann.

Die mit 2,38, 7,09 und 0,89 Gew.% im Abbrand als Metalle vorliegenden Elemente Ru, Rh und Pd werden durch Ru repräsentiert.

Ebenfalls in metallischer Form werden folgende Elemente eingesetzt:

Se, Mo, Ag, Cd, Sb und Te.

#### 2.4 Np-Aktivierungsprodukt des Brennstoffs

Neben den Spaltprodukten liefern auch Aktivierungsprodukte des Brennstoffs und der Reaktoreinbauten einen erheblichen Beitrag zur Nachwärmeerzeugung. Ein Großteil dieser Nachwärme ist auf den Zerfall von Np-239 zurückzuführen. Für Experimente, bei denen die Np-Freisetzung untersucht werden soll, wird daher isotopenreines U-238 (U-235 < 100 ppm) aktiviert und mit den anderen Fissiumbestandteilen verarbeitet.

### 3. Anlage FIFA (Fissiumfabrikation)

#### 3.1 Beschreibung der Anlage

Die Fissiumpellets werden in der in Abb. 1, 2 dargestellten Anlage hergestellt und in Zry-Kapseln eingeschweißt. Die Anlage besteht aus fünf in einer Reihe auf einem Grundgestell ausgerichteten gasdichten Edelstahlboxen. Diese sind zur Strahlenabschirmung von 12 mit Wasser gefüllten Behältern seitlich umschlossen. Alle Arbeiten in den Boxen erfolgen mittels Manipulatoren.

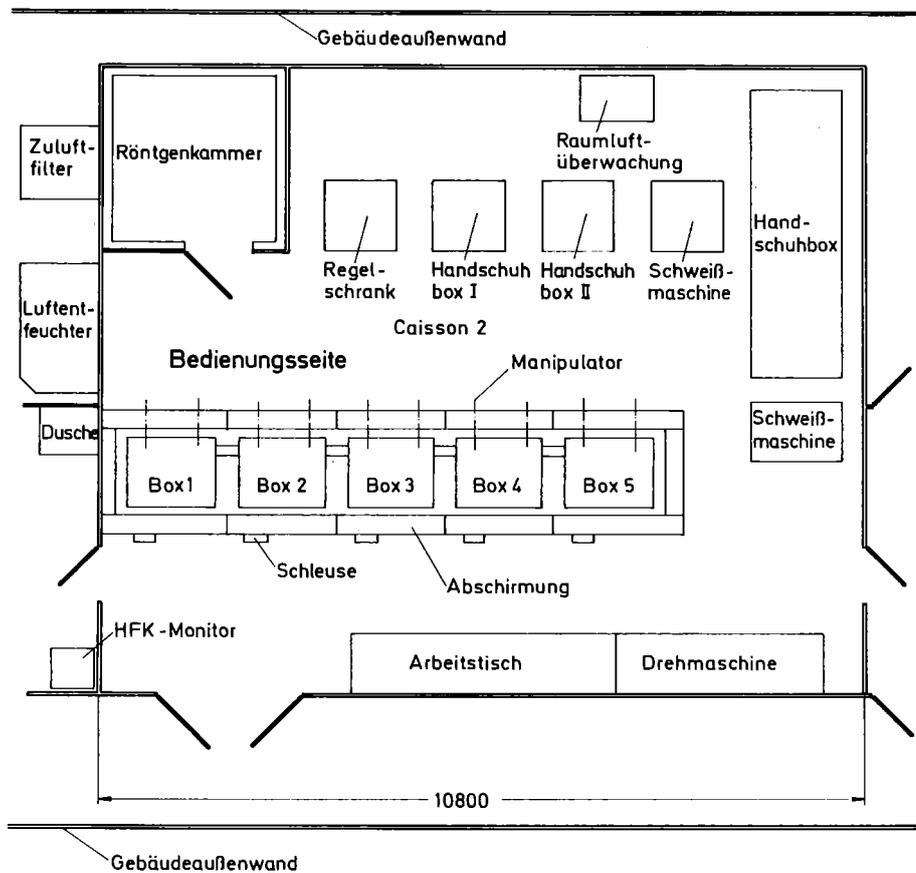


Abb.1: Aufstellungsplan FIFA

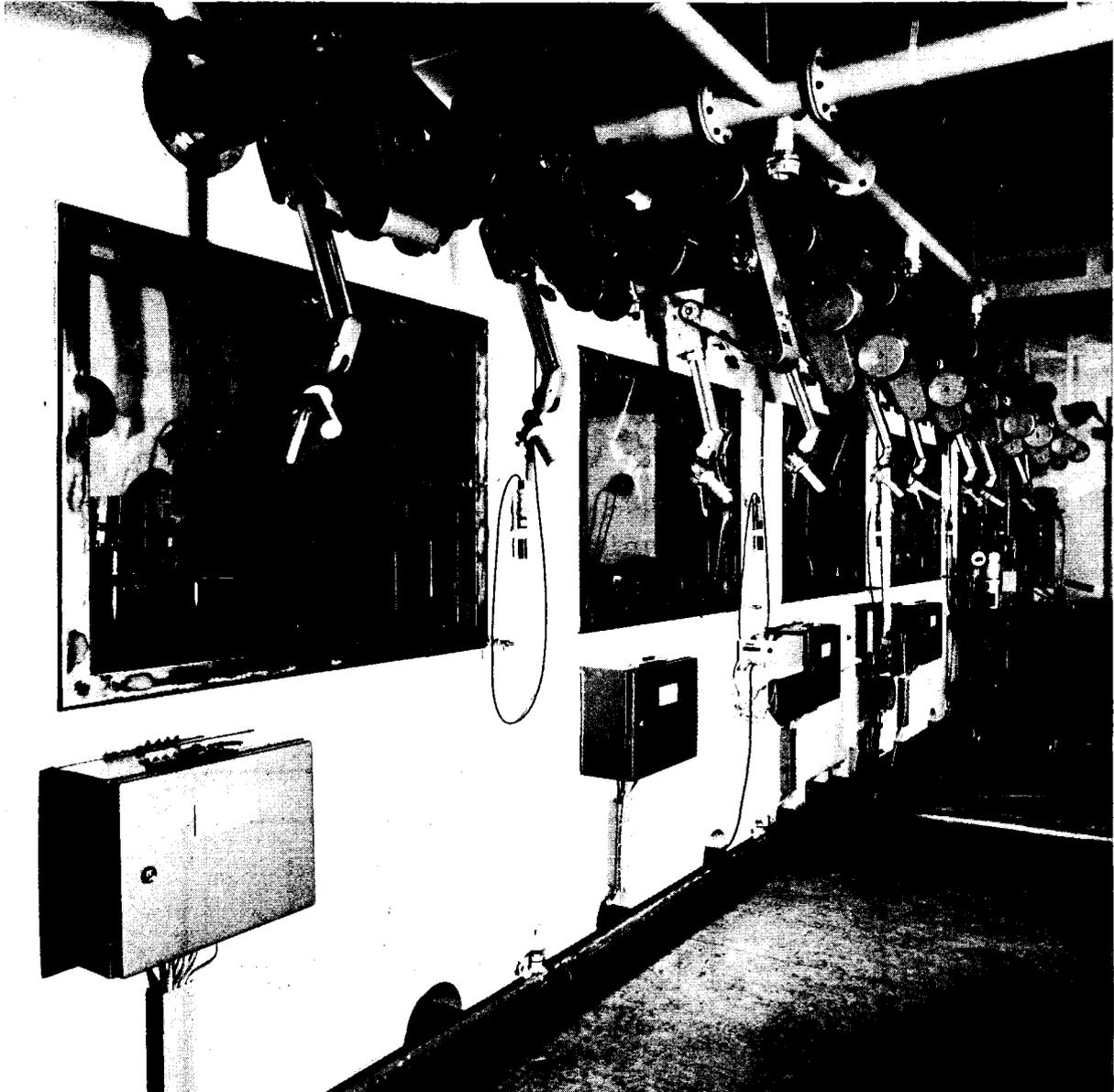


Abb. 2: Ansicht der Anlage FIFA (Bedienungsseite)

Die einzelnen Arbeitsschritte in den Boxen sind:

- Box 1: Dosieren und Wiegen der Fissiumbestandteile
- Box 2: Mischen des Pulvers und Pressen der Pellets
- Box 3: Öffnen der Quarzampullen und Sintern der Pellets
- Box 4: Einfüllen der Pellets in Zry-Kapseln
- Box 5: Verschweißen der Zry-Kapseln

### 3.2 Boxen und Abschirmbehälter

Die Boxen sind aus 3 mm dickem, nichtrostendem Stahlblech gefertigt. An der Bedienungsseite stehen je Box zwei Manipulatoren zur Verfügung (Abb. 3). Drei Öffnungen an Decke, Frontseite und Rückseite sind mit 15 mm dickem, 3-schichtigem Verbundglas gasdicht verschlossen. Gewindemuffen zur Aufnahme der Abluftfilter befinden sich an den Rückwänden.

Die Boxen 1 bis 3 sind durch einen Transportwagen miteinander verbunden, der Transporte von Box zu Box ermöglicht.

Die Verbindung von Box 3 und 4 wird durch eine Vorrichtung, die ein kontaminationsfreies Einfüllen von Pellets in Hüllrohre, Kapseln oder Schlauchfolie ermöglicht, hergestellt.

Die Boxen 1 bis 3 können unabhängig von den Boxen 4 und 5 betrieben werden.

An der Rückseite der Boxen sind zwei Schleusen 254/210 und drei kombinierte Schleusen 254/142, System KfK, angebracht, die ein kontaminationsfreies Ein- und Ausschleusen mit Behältern der Durchmesser 210 bzw. 142 mm ermöglichen.

Die Schleusendurchführungen werden mit abschließbaren Strahlenschiebern aus 250 mm dickem PVC verschlossen. Die gesamte Boxenanlage ist von 12 Wasserbehältern bis zu einer Höhe von 2100 mm umgeben. <sup>+) Die Behälter sind aus 3 mm dickem Stahlblech gefertigt und mit einem dekontaminierbaren Anstrich versehen. Sie können mittels Stellschrauben zueinander ausgerichtet werden. Die Abschirmwirkung wird bei gefüllten Behältern durch eine 250 mm starke Wasserschicht erreicht. Sie</sup>

<sup>+) Die Wasserabschirmung ergab sich aus dem früheren Verwendungszweck der Anlage.</sup>

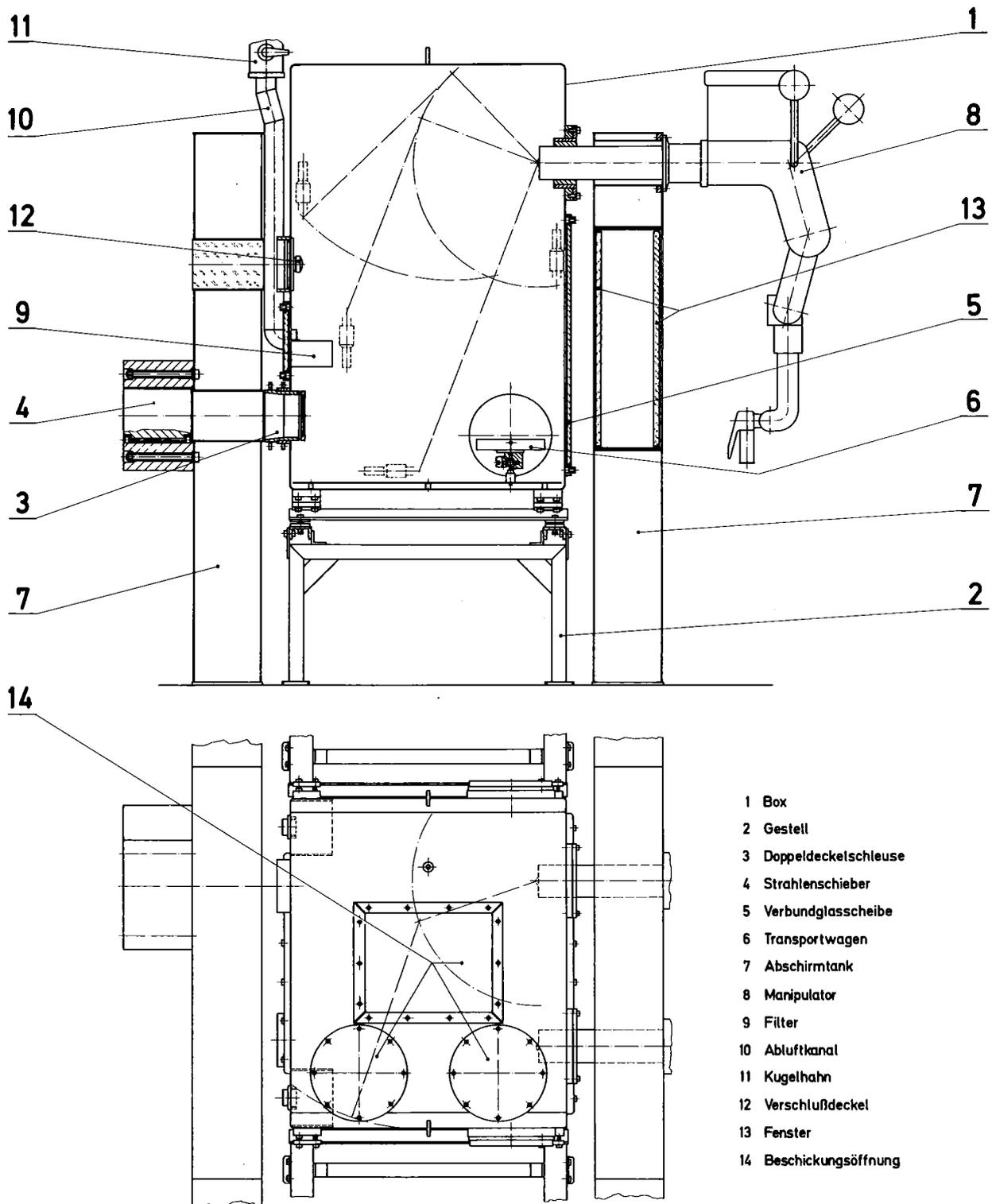


Abb. 3: Box mit Grundgestell

sind an der Unterseite mit halbkreisförmigen Aussparungen zur Durchführung von Versorgungsleitungen versehen. Die an der Bedienungsseite der Anlage aufgestellten Behälter sind außerdem mit je 2 Durchführungen für Manipulatoren und einer Öffnung für ein Fenster ausgestattet.

Für Interventionen sind an zwei Wasserbehältern Öffnungen ausgearbeitet, die während des Betriebes durch fahrbare kleine Behälter verschlossen sind.

### 3.3 Zu- und Abluftsystem

Die Zuluft der Boxen wird mit einem Adsorptionsentfeuchtungsgerät auf eine rel. Feuchte von 20 % bei 20°C gebracht, damit die z.T. stark hygroskopischen Substanzen dosierfähig bleiben. Die Abluft wird über zwei hintereinander geschaltete Aerosolfilter der Klasse S geführt, von denen sich ein Filter außerhalb der Box befindet. Zwischen den Filtern ist ein Absperrorgan eingebaut, wodurch ein Abkoppeln der Boxen vom Lüftungssystem möglich ist. Außerdem wird beim Filterwechsel durch jeweils eines der beiden Filter das Austreten von radioaktiven Stoffen in den Lüftungskanal verhindert.

Innerhalb der Boxen wird ständig ein Unterdruck von ca. 200 Pa aufrechterhalten und durch Kapsel-federvakuummeter angezeigt.

### 3.4 Dosisleistungskontrolle

Die Aktivität der in die Anlage eingebrachten Elemente wird je Charge so begrenzt, daß die zulässige Dosisleistung von 2,5 mrem/h für ständig an den Boxen arbeitendes Personal nicht überschritten wird.

An der Boxenanlage sind 5  $\gamma$ -Pegelwächter mit beweglich angeordneten Zählrohren installiert. Bei Überschreitung des eingestellten Sollwertes von 2,5 mrem/h wird ein Warnsignal gegeben.

### 3.5 Handschuhboxen

Zur Anlage FIFA gehören außerdem zwei Handschuhboxen für inaktive Arbeiten. Sie sind an das Zu- und Abluftsystem der Boxenstraße angekoppelt. In der Handschuhbox I werden die Spaltelemente bzw. deren Verbindungen ausgewogen und in die Bestrahlungskapseln aus Quarzglas gefüllt. Handschuhbox II steht für das Chargieren des  $UO_2$ -Pulvers zur Verfügung.

### 3.6 Technische Beschreibung wichtiger Anlagenteile

#### 3.6.1 Sinterofen

In Box 3 ist zum Sintern von Pellets ein Hochvakuum-Widerstandsofen (Abb. 4) installiert. Wahlweise ist ein Betrieb im Hochvakuum oder mit Schutzgas (Argon) möglich. Der Ofenkessel ist am Boden der Box angeflanscht und mit O-Ringen abgedichtet. Die für den Betrieb notwendigen Bedienelemente befinden sich außerhalb der Box.

Mit Hilfe einer programmierbaren Regeleinheit können Temperaturprofile mit max. fünf Anstiegs- und Haltefunktionen zum Sintern der Pellets gefahren werden. Diese Regeleinheit ist mit den übrigen zur Überwachung des Ofens erforderlichen elektrischen Baugruppen in einem 19"-Schrank zusammengefaßt. Die Kühlung von Kesselwandung, Ofendeckel und Stromzuführungen erfolgt durch Rohrbündelwärmeaustauscher einer Wasser-Wasser-Rückkühlanlage. Sie ist so be-

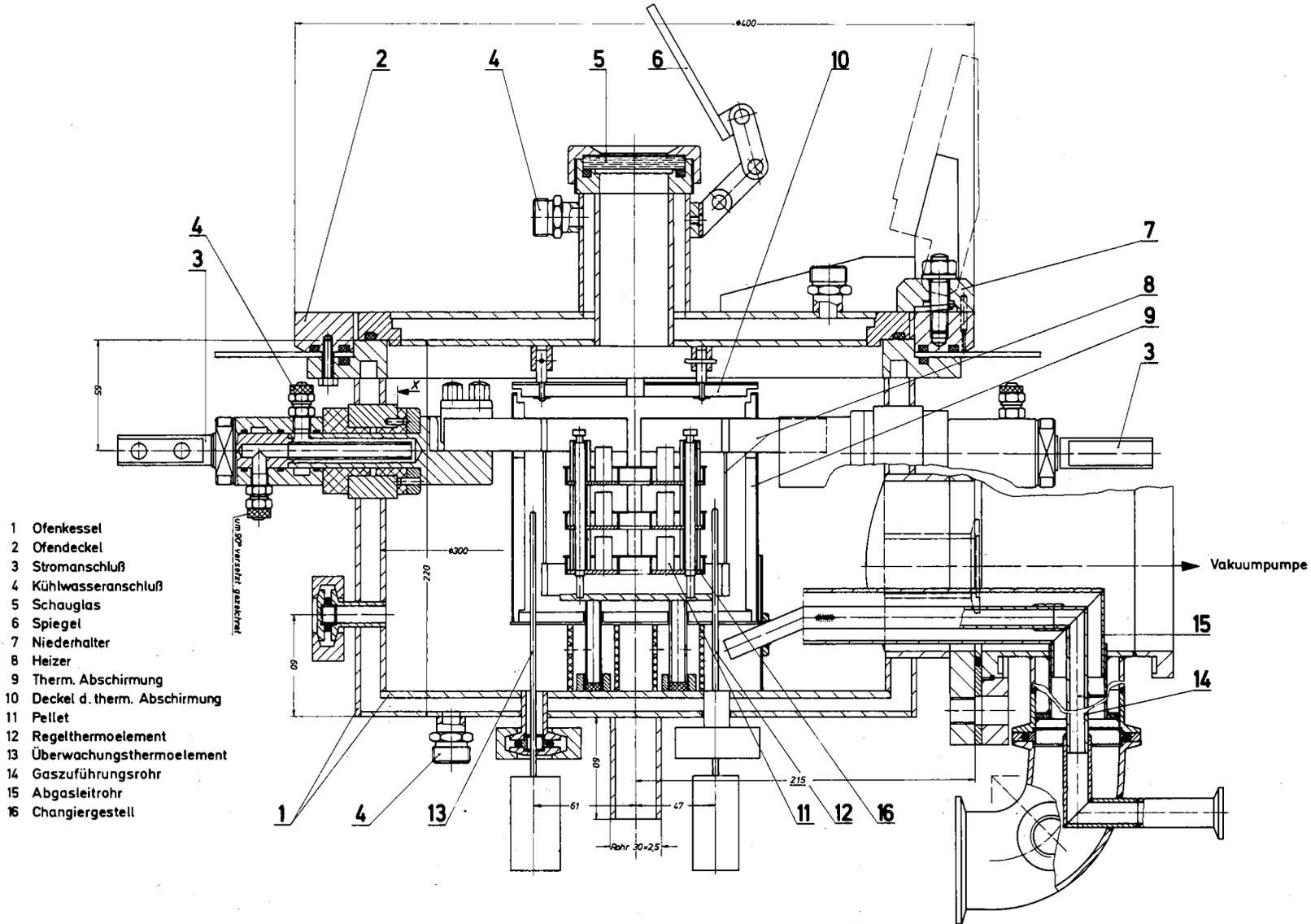


Abb. 4: Sinterofen

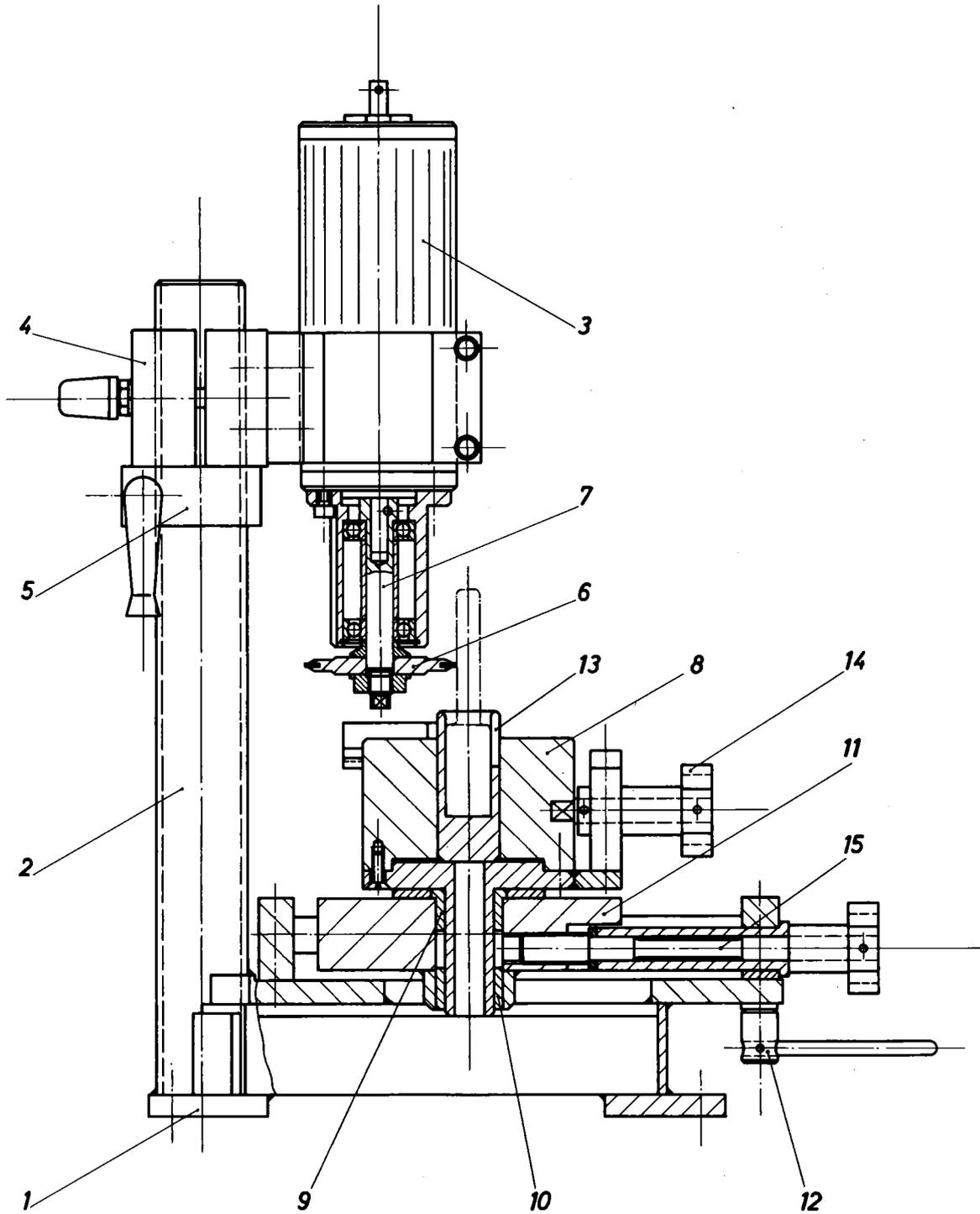
messen, daß eine Wärmeleistung von 25 kW abgeführt werden kann. Eingebaute Strömungswächter und Temperaturgrenzkontakte bewirken automatische Ofenabschaltung bei Pumpenausfall oder erhöhter Kühlwassertemperatur.

### 3.6.2 Ampullentrennvorrichtung (Abb. 5)

Zum Öffnen der bestrahlten Quarzampullen wurde eine fernbedienbare Trennvorrichtung entwickelt, die es gestattet, die Ampullen so zu öffnen, daß keine Quarzteilchen in das Ampulleninnere gelangen.

Technische Beschreibung: Am vertikal an der Grundplatte (1) angeschweißten Führungsrohr (2) ist der Motor (3) mit dem Doppelklemmstück (4) befestigt. Er ist höhenverstellbar und kann auf dem Klemmring (5) geschwenkt werden. Die Diamanttrennscheibe (6) ist direkt auf der Motorwelle (7) befestigt. Das Dreibackenfutter (8), drehbar in den Buchsen (9) und (10), wird mit dem Schlitten (11) grob-, bei festgestellter Knebelschraube (12), mittels Gewindespindel (15) feinverstellt. Die Kunststoffeinsätze (13) werden entsprechend der Ampullendurchmesser ausgewechselt. Das Einspannen der Kunststoffeinsätze im Dreibackenfutter erfolgt mit dem Vierkantschlüssel (14).

Funktionsweise der Vorrichtung: Die Glasampulle wird zunächst in den geschlitzten Kunststoffeinsatz gestellt, im Dreibackenfutter eingespannt und dicht an die Diamanttrennscheibe herangefahren. Danach wird die Knebelschraube festgestellt und der Schlitten über eine Gewindespindel solange feinverstellt, bis die rotierende Trennscheibe in die Glasampulle eingedrungen ist. Durch das anschließende Schwenken des Dreibackenfutters nach beiden Seiten



**Abb. 5: Ampullentrennvorrichtung**

wird der Ampullenhals nahezu über den gesamten Umfang angeritzt. Hierbei ist besonders darauf zu achten, daß die Ampullenwandung nicht ganz durchtrennt wird, damit der beim Trennen entstehende Quarzstaub nicht in die Ampulle gelangt.

Nach dem Lösen der Knebelschraube kann der Schlitten zurückgefahren und die Ampulle entnommen werden. Das anschließende Abschlagen des Ampullenhalses erfolgt über einer scharfen Kante.

### 3.6.3 Übergabevorrichtung (Abb. 6)

Zwischen den Boxen 3 und 4 ist die Vorrichtung für das kontaminationsfreie Einfüllen von Pellets in Zry-Kapseln installiert. Sie stellt gleichzeitig die Verbindung der beiden Boxen sowie die Trennung der kontaminierten und nichtkontaminierten Arbeitsbereiche dar. Beide Bereiche sind nur während des Einfüllvorgangs atmosphärisch miteinander verbunden; dabei besteht ein Druckgefälle zum kontaminierten Anlagenteil.

Technische Beschreibung: Die Verbindung der beiden Boxen wird durch einen Kunststoffzylinder (1) hergestellt. Er ist beidseitig in die Boxenflansche (2) eingepaßt und nach außen mit O-Ringen abgedichtet. Axial ist ein Führungsrohr (3) aus Edelstahl eingesetzt, das gleichfalls mit O-Ringen abgedichtet ist. Je ein Schlitten (4) und (5), in Box 3 zur Aufnahme des Einfüllstückes (6), in Box 4 für das Durchreicherohr (7), ist auf Stahlwellen (8) mittels Kugelbüchsen (9) in horizontaler Richtung beweglich.

Ausreichende Justiermöglichkeit ist durch Stellenschrauben (10) an den Lagerblöcken (11) gegeben. Festgestellt werden die Schlitten durch Bremsbacken (12) mit Knebelschrauben (13). Am freien Ende des Durchreicherohres ist die Spannzange (14) zur Auf-

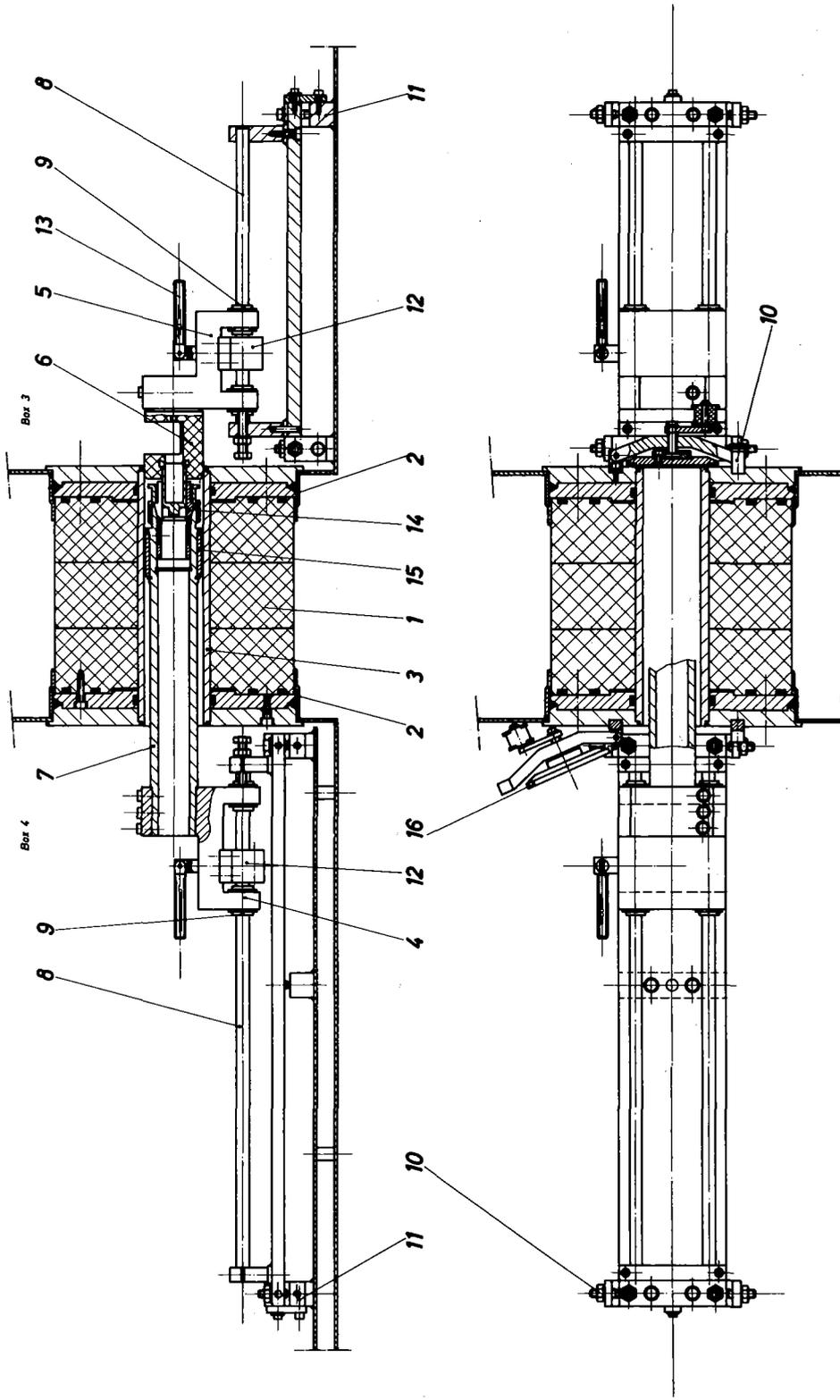


Abb. 6:      Übergabevorrichtung

nahme der Kapsel befestigt. Das Durchreicherohr wird mit dem Ring (15) im Führungsrohr zentriert. Mit den Verschlußdeckeln (16) werden die Boxen atmosphärisch getrennt.

Funktionsweise der Vorrichtung: Zunächst wird eine Kapsel, in die der untere Stopfen bereits eingeschweißt ist, in die Spannzange des Durchreicherohres eingesetzt. Durch das Öffnen der Verschlußdeckel in den Boxen 3 und 4 wird die Durchreicheröffnung freigegeben. Der Schlitten in Box 4 wird nun soweit verfahren, bis die Kapsel ca. 5 mm in Box 3 hineinragt. Danach muß der in Box 3 montierte Schlitten soweit an die Kapsel herangefahren werden, bis diese durch das Einfüllstück genau zentriert ist. Anschließend werden beide Schlitten arretiert.

Damit beim Einschieben der Pellets am Übergang Einfüllstück-Kapsel keine Kontamination durch Abrieb entsteht, ist der Innendurchmesser des Einfüllstückes etwas kleiner als der der Kapsel.

Nach dem Einfüllen wird die Kapsel der Spannzange entnommen und der obere Endstopfen aufgedrückt. Mit dem Zurückfahren der Schlitten und Verschließen der Durchreicheröffnung ist der Arbeitsschritt beendet.

Mit der Übergabevorrichtung können auch durch geringen Umbau Pellets in PVC-Folie eingefüllt und in Box 4 mit einem Folienschweißgerät eingeschweißt werden.

#### 4. Beschreibung des Herstellungsprozesses (Abb. 7)

##### 4.1 Dosieren der Spaltelementkomponenten in Quarzampullen

Die Prozeßspezifikation sieht vor, daß für jede Charge die zu aktivierenden Komponenten vor der Fissiumproduktion einzeln bestrahlt werden. Hierdurch ist einerseits eine flexiblere Anpassung an die für die Freisetzungsexperimente erforderlichen Aktivitäten gewährleistet, andererseits wird der Herstellungsprozeß so einfach wie möglich gestaltet. Die in Tabelle II aufgeführten Spaltelemente bzw. deren Verbindungen lagern in der Handschuhbox I in einem Exsikkator mit  $P_2O_5$ -Trockenmittel. Das Abfüllen in die Bestrahlungskapseln aus Quarzglas erfolgt mit Vibrationsdosierbehältern. Die Einwaagegenauigkeit beträgt hierbei  $\pm 0,1$  mg. Nach dem provisorischen Verschließen mit einem Stopfen werden die Ampullenhäuse unter Kühlung des Inhalts mit flüssigem Stickstoff außerhalb der Box abgeschmolzen. Wie die zur Aktivierung vorgesehenen Komponenten werden alle anderen inaktiven Bestandteile nach dem gleichen Verfahren in Quarzampullen abgefüllt. Dadurch ist es möglich, jede Charge im voraus zu dosieren und die zum Teil hygroskopischen Substanzen über längere Zeit außerhalb der Handschuhbox zu lagern.

##### 4.2 Chargieren des $UO_2$ -Pulvers

In der Handschuhbox II erfolgt das Abwiegen der für die Herstellung einer Fissiumcharge notwendigen Menge  $UO_2$ -Pulver in Kunststoffbehälter. Alle Geräte in der Anlage FIFA sind so dimensioniert, daß Chargen von 100 g Fissium hergestellt werden und dabei die Komponenten mit ausreichender Genauigkeit dosiert werden können.

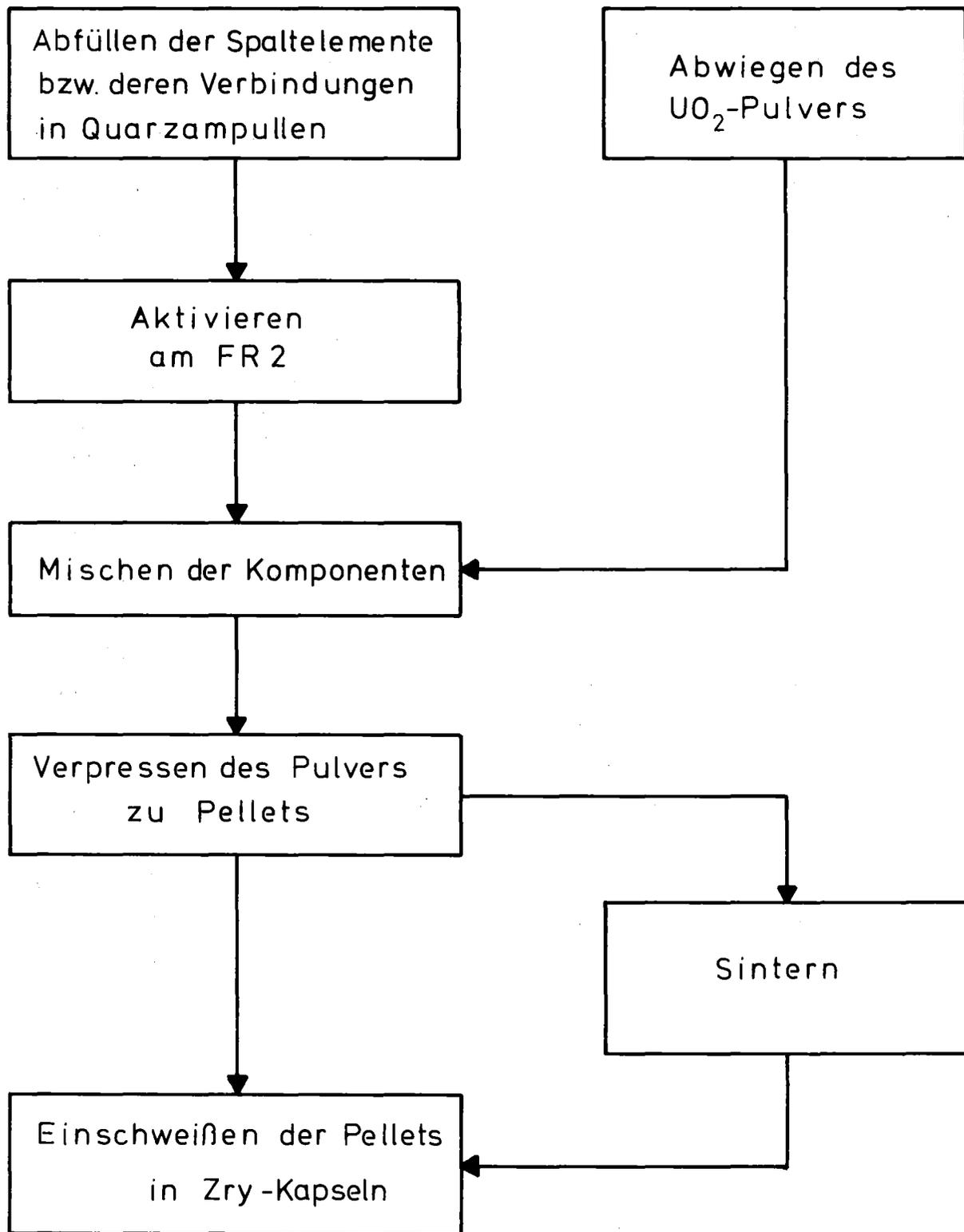


Abb. 7: Arbeitsschritte bei der Fissiumherstellung

#### 4.3 Aktivierung der Komponenten

Alle Aktivierungen erfolgen an der Rohrpostbestrahlungsanlage bzw. im Isotopenkanal des FR2. Die Bestrahlungszeiten richten sich nach den vorgegebenen Aktivitäten. Da bei der Aktivierung auch kurzlebige Radionuklide erzeugt werden, die sich bei der  $\gamma$ -spektrometrischen Analyse störend auswirken können, muß bei der Bestrahlung ein festgelegter Zeitplan mit ausreichenden Kühlzeiten eingehalten werden. Zur Messung der erzeugten Tracernuklidaktivitäten vergleiche Kapitel 5.

In Tabelle III sind die für die  $\gamma$ -spektrometrische Analyse in Frage kommenden Tracernuklide mit den wichtigsten Störnukliden zusammengefaßt.

#### 4.4 Schleusen der Fissiumbestandteile in die Anlage FIFA

Über die Doppeldeckelschleusen an der Rückseite der Boxenanlage werden die Quarzampullen und das  $UO_2$ -Pulver geschleust.

#### 4.5 Herstellen der Fissimpulvermischungen

Nach dem Einfüllen des  $UO_2$ -Pulvers in den Mischbehälter werden die Quarzampullen mit der in Box III installierten Vorrichtung geöffnet. Die abgesägten Ampullen werden gewogen und der Inhalt zu dem  $UO_2$ -Pulver in den Mischbehälter geschüttet. Durch Rückwiegen der entleerten Kapseln lassen sich Verluste durch an der Wand festhaftendes Material ermitteln. Alle Komponenten werden dann zur Homogenisierung in einer Spexmühle 20 min. gemischt.

Tabelle III: Zeitplan der Bestrahlungen von Fissiumkomponenten

Fissiumkomponente	Tracer-nuklid	Halbwertszeit	Stör-nuklid	Halbwertszeit	Kühlzeit
CsJ+Cs <sub>2</sub> CO <sub>3</sub>	Cs-134	2,06 a	-	-	-
Sb	Sb-124	60,3 d	Sb-122	2,7 d	30 d
Se	Se-75	120 d	-	-	-
Cd	Cd-115	53,4 h	-	-	-
	In-115m Cd-115	d.p. Cd-115	-	-	-
Ru	Ru-103	39,4 d	Ru-97	2,9 d	30 d
			Ru-105	4,4 h	
Ag	Ag-110m	250,4 d	-	-	-
BaO	Ba-131	11,5 d	-	-	-
CeO <sub>2</sub>	Ce-141	32,5 d	Ce-143	33 h	20 d
			Ce-137m	34,4 h	20 d
Nd <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	Nd-147	11,0 d	Pm-149	53,1 h	25 d
			Pm-151	28 h	
ZrO <sub>2</sub>	Zr-95	64,0 d	Zr-97	16,8 h	7 d
	Nb-95 Zr-95	d.p. Zr-95			
Mo	Mo-99	66,0 h	-	-	-
	Tc-99m Mo-99	d.p. Mo-99	-	-	-
Te	J-131	8,04 d	-	-	-
Te-128 98%	Te-129m	33,8 d	J-131	8,04 d	80 d
U-238	Np-239	2,4 d	-	-	-

#### 4.6 Chargieren des Fissimpulvers

Vom Mischbehälter wird das Fissimpulver in Dosierbehälter umgefüllt und aus diesen die entsprechenden Mengen abgewogen. Zum Pelletieren sind jeweils 5 g in Glasschiffchen, für die Aktivitätsbestimmung je 1 g in Kunststoffbehälter einzuwiegen.

#### 4.7 Ausschleusen der Kunststoffbehälter

Die zur Homogenitätsbestimmung (vergleiche Kapitel 5) sowie zur Aktivitätsermittlung benötigten Fissimpulverproben (1 g) werden nach dem Verschließen der Kunststoffbehälter über die Doppeldeckelschleusen kontaminationsfrei ausgeschleust.

#### 4.8 Pelletieren

Nach dem Beschicken der Preßmatrize mit jeweils 5 g Fissimpulver erfolgt das Pressen der Pellets bei einem Druck von  $3 \text{ t/cm}^2$ . Gepreßt wird mit einer teilbaren Matrize (Abb. 8). Vor jedem Preßvorgang wird die Matrize mit Öl geschmiert. Dadurch können Pellets mit einer höheren Festigkeit hergestellt werden. Außerdem verlängert sich wegen der geringeren Materialbelastung die Standzeit der Preßwerkzeuge. Nach dem Pelletieren werden die Preßlinge in Box I gewogen. Außerdem besteht die Möglichkeit, die Abmessungen der Pellets mit einem Mikrometer in Box III zu bestimmen.

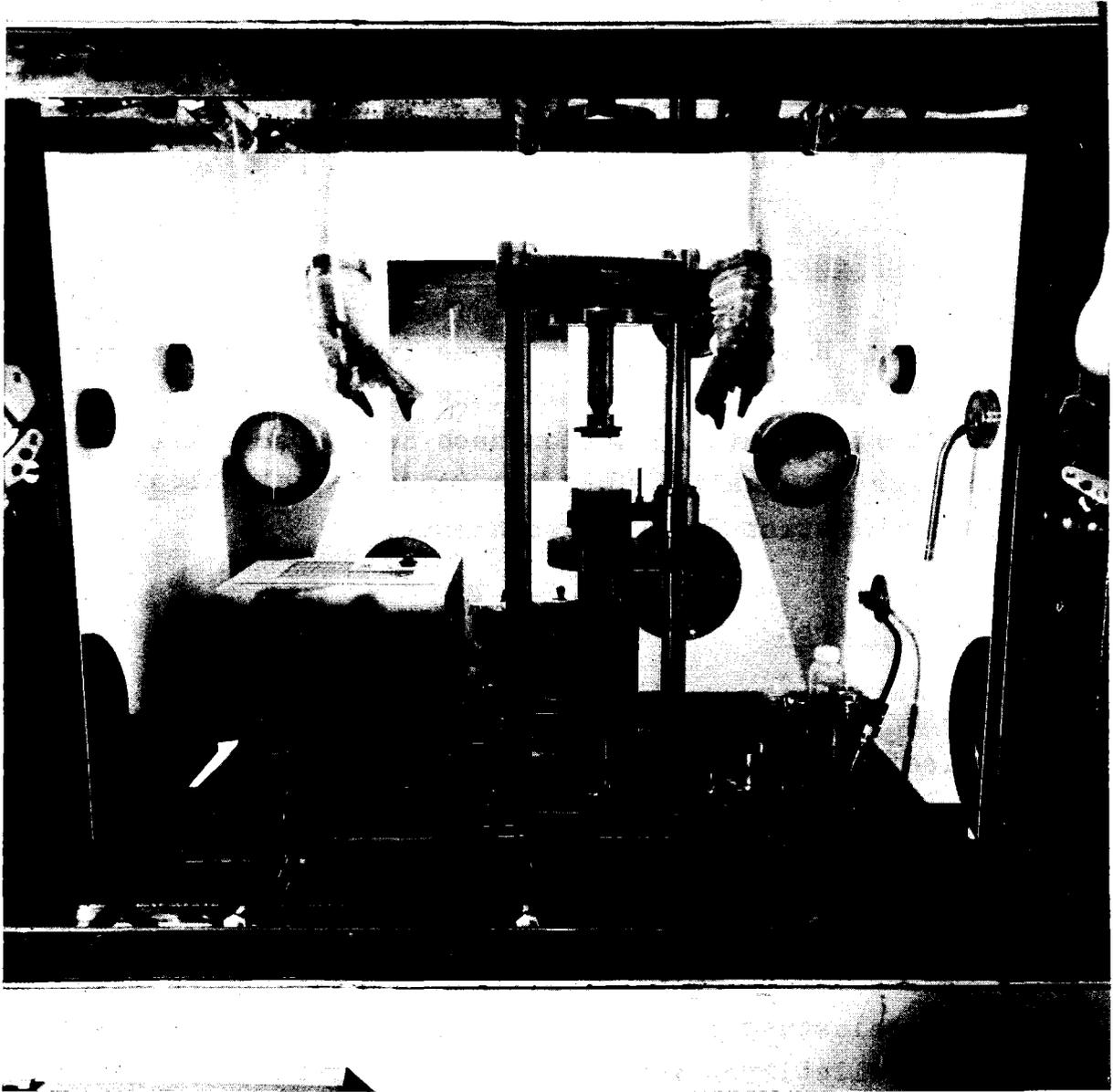


Abb. 8: Box II mit hydraulischer Presse, Preßmatrize  
und Spexmühle

#### 4.9 Sintern der Fissium II-Pellets

In Abb. 9 ist das Sinterprogramm dargestellt, nach dem die Fissium II-Pellets unter Argonatmosphäre (1 bar) gesintert werden. Nach 2 Stunden Aufheizen auf 600°C wird ein Trockenplateau von 0,5 Stunden eingelegt. Dann erfolgt weiteres Aufheizen auf 1500°C über 4 Stunden. Die Haltezeit bei 1500°C beträgt 2 Stunden. Danach werden die Sinterkörper über 8 Stunden auf Raumtemperatur abgekühlt. Die Gewichtsbestimmung der Pellets vor und nach dem Sintern erfaßt Verluste, die beim Sinterprozeß auftreten können.

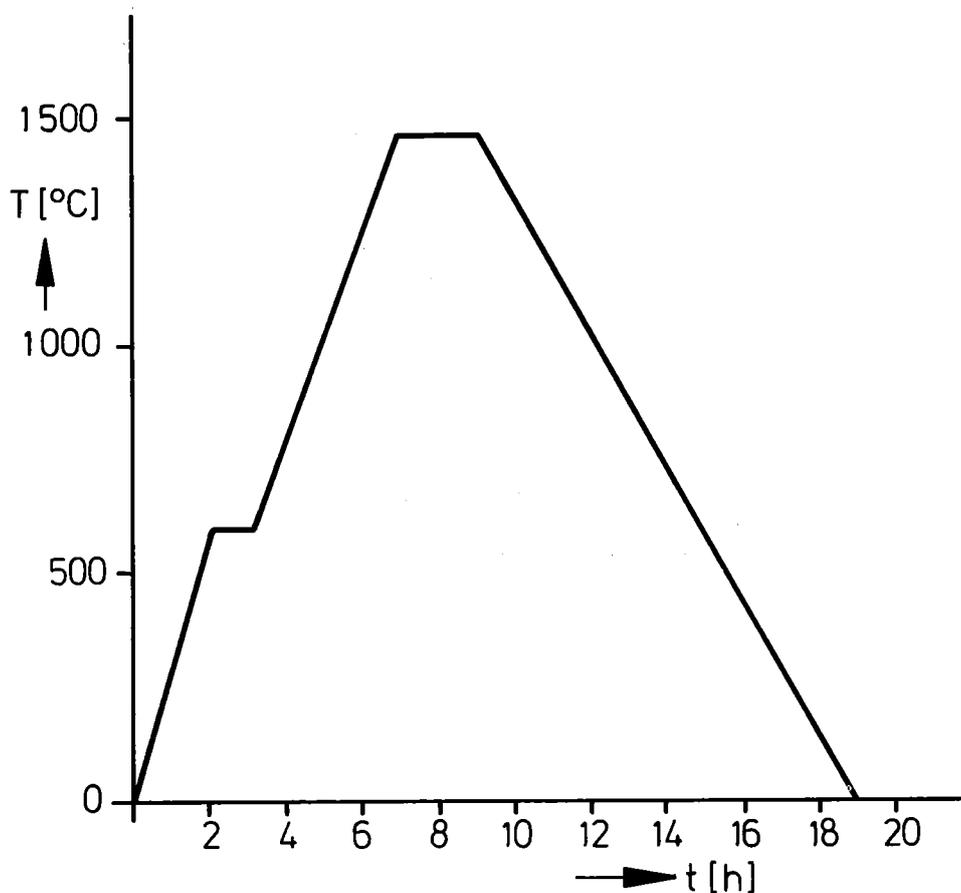


Abb. 9 : Sinterprogramm

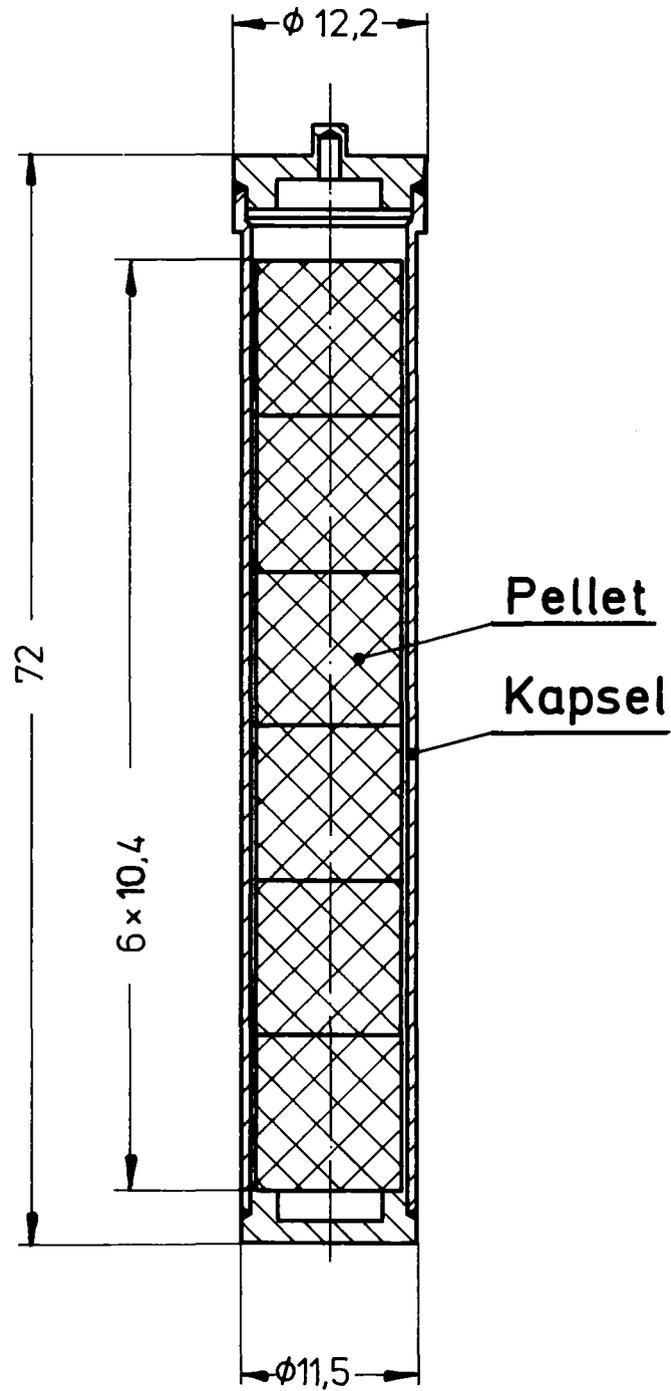


Abb. 10 : Zry - Kapsel mit Pellets

#### 4.10 Einschweißen der Pellets in Zry-Kapseln

In Abb. 10 ist eine Zry-Kapsel mit 6 Fissiumpellets dargestellt. Das Einschweißen des oberen Endstopfens erfolgt mit einer WIG-Schweißeinrichtung in Box 5 (Abb. 11). Auf einer fahrbaren Grundplatte sind Elektrodenhalterung und Dreibackenfutter mit regelbarem Antriebsmotor montiert. Die Schweißparameter werden mit einer außerhalb der Boxen aufgebauten identischen Schweißeinrichtung ermittelt.

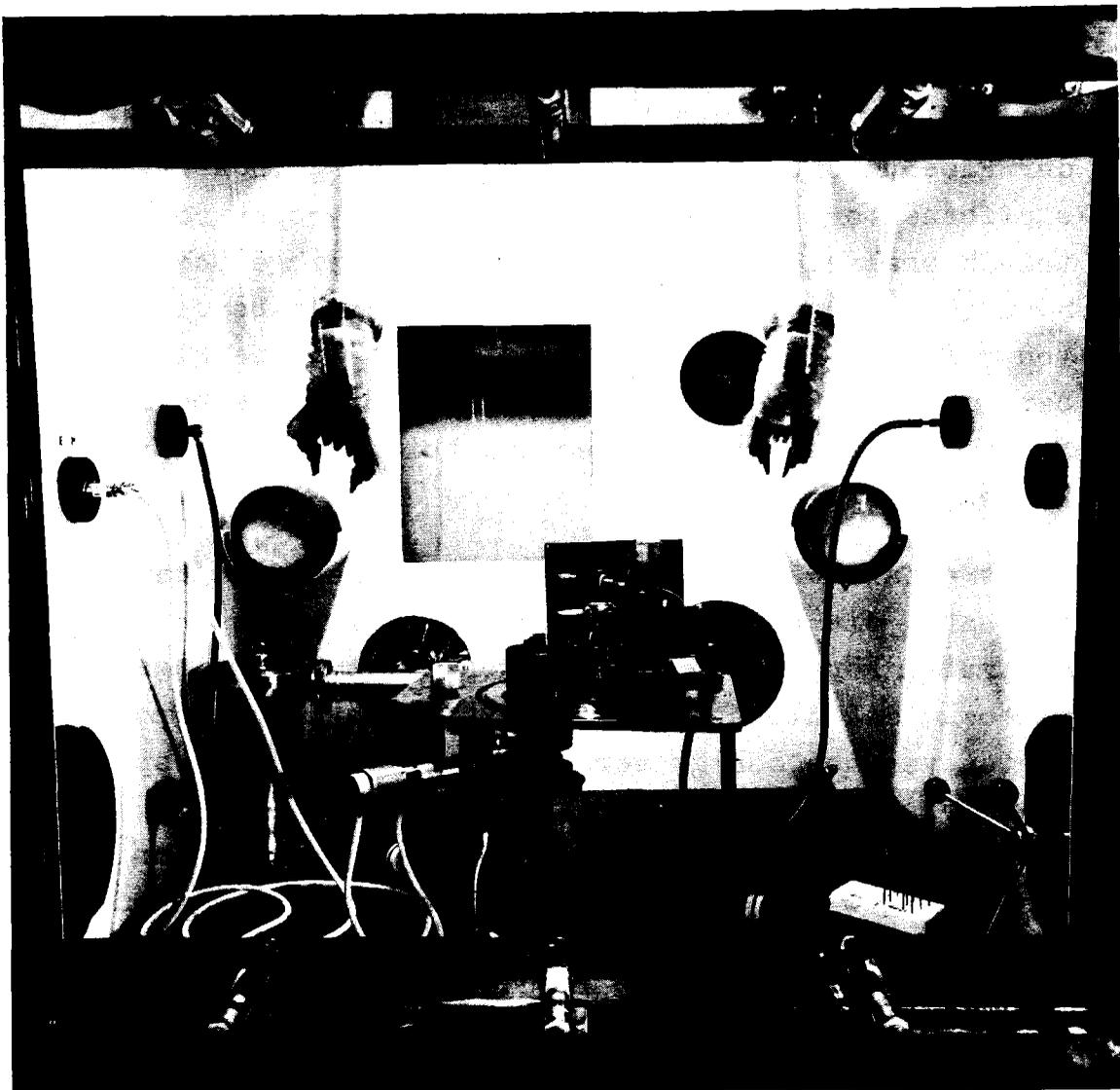


Abb. 11: Box 5 mit Schweißeinrichtung für Zry-Kapseln

## 5. Ermittlung der Tracernuklidaktivitäten

Im Folgenden ist die  $\gamma$ -spektrometrische Ermittlung der Tracernuklidaktivitäten am Beispiel der  $\gamma$ -Messungen einer Fissiumcharge dargestellt (Abb. 12). Nach der Bestrahlung der Quarzampullen im Reaktor und den entsprechenden Kühlzeiten werden die Ausgangsaktivitäten der Tracernuklide ermittelt. Für die Herstellung einer Charge (100 g) ist der gesamte Inhalt der bestrahlten Quarzampullen vorgesehen. Dadurch ist es möglich, die in den Pellets zu erwartenden Aktivitäten grob abzuschätzen. Nicht erfaßt werden hierbei Verluste, die beim Entleeren der Quarzampullen, beim Mischen, Pelletieren und Sintern auftreten. Genauere Bestimmungen werden dadurch erreicht, daß nach dem Mischen des  $UO_2$  und der Fissiumkomponenten Proben von je 1 g in Kunststoffbehälter ( $\varnothing$  50 mm) abgewogen und  $\gamma$ -spektrometrisch analysiert werden. Durch die geringe Schütthöhe (0,2 mm) des Pulvers wird die Selbstabsorption von  $\gamma$ -Linien mit Energien über 200 keV vernachlässigbar klein. Außerdem werden die Verluste, die beim Entleeren der Quarzampullen und beim Mischen auftreten, bestimmt.

Nicht erfaßt werden mit diesem Verfahren die Abdampfverluste, die beim Sintern der Fissium II-Pellets auftreten können. Untersuchungen haben allerdings ergeben, daß diese für die schwerflüchtigen Komponenten vernachlässigt werden können. Bei der  $\gamma$ -spektrometrischen Analyse der fertigen Pellets haben die oben erwähnten Verluste keine Bedeutung, sehr nachteilig wirkt sich jedoch die starke Absorption von niederenergetischen  $\gamma$ -Linien in den Pellets aus, deshalb werden nur die Messungen der Pulverproben für genaue Aktivitätsbestimmungen herangezogen.

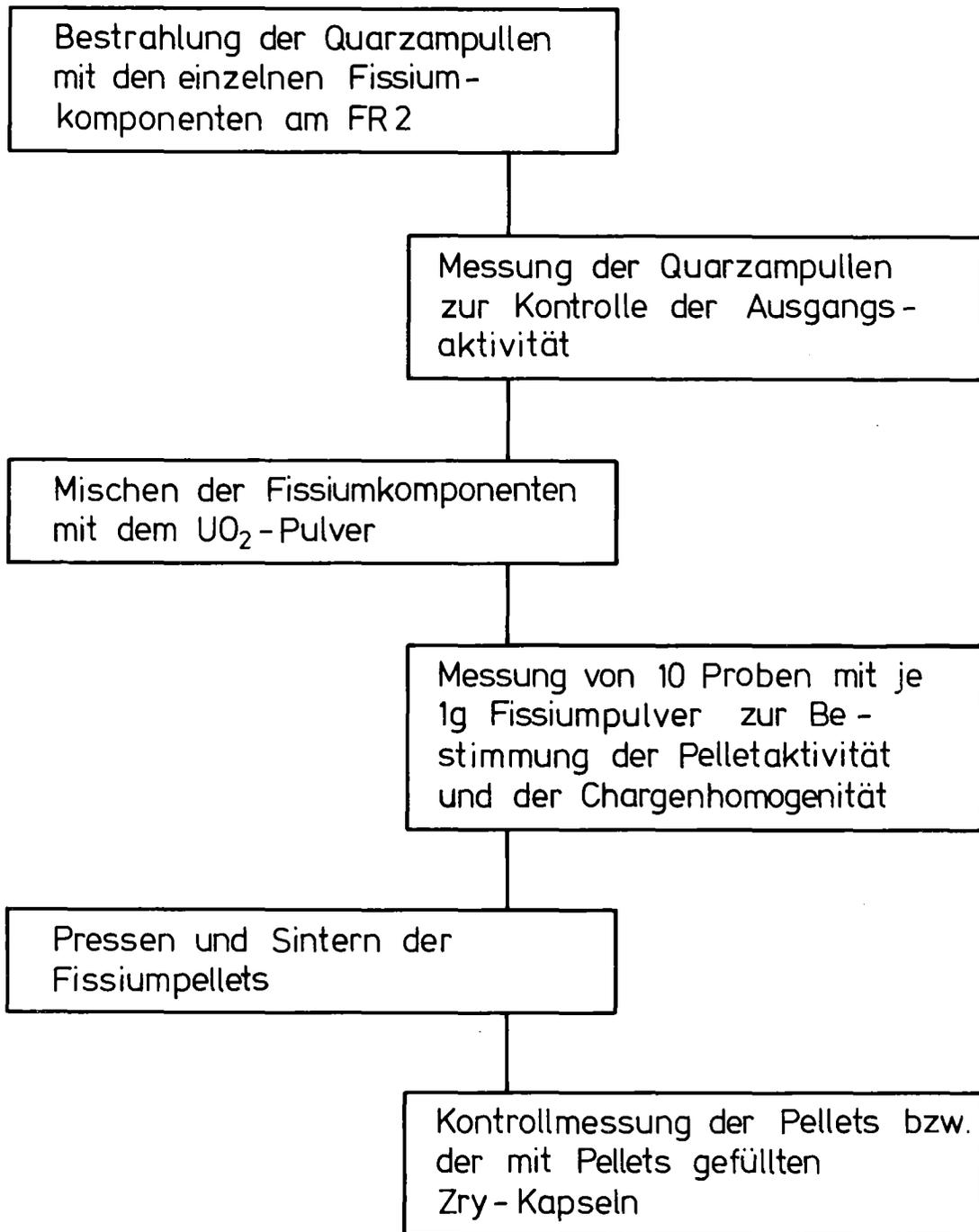


Abb.12: Aktivitätsbestimmungen im Verlauf der Fissiumherstellung

6. Eigenschaften der an der Anlage FIFA erzeugten Fissiumpellets

Nach dem Pressen ergibt sich für beide Fissiumarten eine mittlere Dichte von  $\rho = 7,96 \text{ g/cm}^3$ , dieser Wert entspricht 73 % der theoretischen Dichte. Die 5 g schweren Pellets haben eine mittlere Höhe von 10,47 mm und einen Durchmesser von 10,20 mm. Nach dem Sinterprozeß wurde eine mittlere Dichte der Fissium II-Pellets von  $\rho = 8,96 \text{ g/cm}^3$  ermittelt ( $\rho \hat{=} 82,7 \%$  der theor. Dichte). Wie in Abb. 13 zu erkennen ist, sind die Pellets nach dem Sintern leicht deformiert. Die Form eines abgestumpften Kegels ist offensichtlich auf die unterschiedliche Verfestigung beim Pressen zurückzuführen.

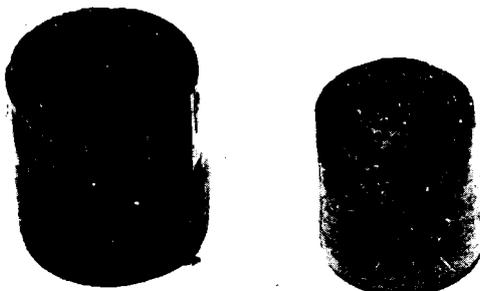


Abb. 13: Ungesintertes und gesintertes Fissiumpellet

In Abb. 14 ist die Verteilung einiger Tracernuklide in 10 Proben mit jeweils 1,2 g Pulver dargestellt. Die nach der Mittelwertbildung berechneten Aktivitäten werden dann auf die Pelletgewichte umgerechnet. Wie aus der Abbildung außerdem zu erkennen ist, wird eine gute Homogenität des Pulvers erreicht. Die mittlere Abweichung der Aktivität in den Pulverproben beträgt in vielen Fällen weniger als 10 %. Für die Verteilung innerhalb der Pellets ist eine noch geringere Abweichung zu erwarten, da pro Pellet 5 g Pulver verarbeitet werden, die Abweichung aber für 1,2 g bestimmt wurde.

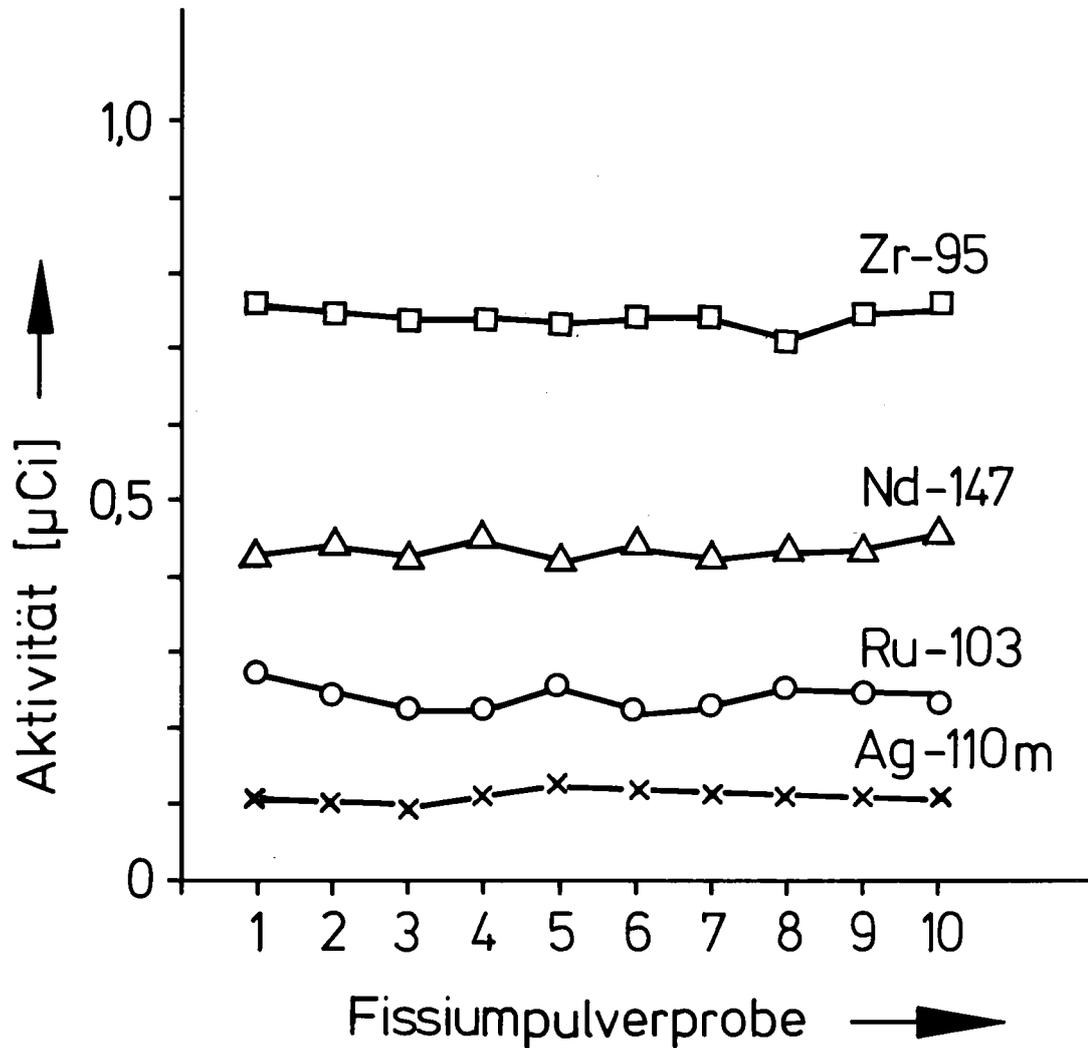


Abb.14: Verteilung einiger Tracernuklide in Fissiumpulverproben ( $m_{Pr}=1,2\text{g}$ )

## 7. Betriebserfahrungen

Nach Abschluß der Vorversuche wurden an der FIFA-Anlage von April 1978 bis Oktober 1979 25 Chargen radioaktives und 5 Chargen inaktives Fissium hergestellt.

Kurzzeitige Unterbrechungen waren durch den Ausfall des Luftentfeuchtungsgerätes, Reparaturen an der Regeleinheit des Sinterofens und an der Analysenwaage in Box I bedingt.

Für 3 Wochen mußte die Anlage stillgelegt werden, um Wiederholungsprüfungen (atmosphärische- und Strahlendichtheit), die Bestandteil der Umgangsgenehmigung sind, durchzuführen.

Für die Verarbeitung einer Charge Fissium mit den vorhandenen Geräten sind 2 Mannwochen zu veranschlagen. Mit eingeschlossen sind dabei das Einfüllen der inaktiven Fissiumkomponenten in Quarzglasampullen, deren Reinigen und Ausheizen, das Chargieren des  $UO_2$ -Pulvers sowie alle Schleus- und Wartungsarbeiten an der Anlage.

Zur Zeit steht für die Fissiumherstellung 1 Operateur zur Verfügung. Mit 2 Operateuren wäre die Anlage optimal genutzt, wobei der Durchsatz mehr als verdoppelt werden könnte.

8. Literaturverzeichnis

- 1) H. Albrecht, C. Keller, W. Krause, H. Wild,  
D. Perinic, B. Kammerer, H. Knauß, A. Mack,  
B. Stuka, P. Hofmann

Versuche zur Erfassung und Begrenzung der  
Freisetzung von Spalt- und Aktivierungspro-  
dukten beim Coreschmelzen

KFK-Bericht 2195, 1975 s. 318-337

- 2) H. Albrecht, W. Krause, H. Wild, D. Perinic,  
B. Kammerer, H. Knauß, A. Mack, B. Stuka,  
M.F. Osborne

Versuche zur Erfassung und Begrenzung der  
Freisetzung von Spalt- und Aktivierungspro-  
dukten beim Coreschmelzen

KFK-Bericht 2262, 1976 s. 347-365

- 3) H. Albrecht, K. Nolte, H. Wild, D. Perinic,  
B. Kammerer, A. Mack, B. Stuka

Versuche zur Erfassung und Begrenzung der  
Freisetzung von Spalt- und Aktivierungspro-  
dukten beim Coreschmelzen

KFK-Bericht 2500, 1977 s. 429-447

- 4) H. Albrecht, U. Matschoß, K. Nolte, H. Wild

Untersuchung der Freisetzung von Spalt- und  
Aktivierungsprodukten beim Kernschmelzen

KFK-Bericht 2700, 1978 s. 4300/19-4300/28

- 5) J. Bazin, J. Jouan, N. Vinguesoult  
Comportement et état physico - chimique des  
produits de fission dans les éléments  
combustibles pour réacteur à eau pressurisée  
Bull. Inf. Sci. Tech. 196, 55-71, 1974
  
- 6) J.I. Bramman, R.M. Sharpe, D. Thom, G. Yates  
Metallic Fission-Product Inclusions in  
Irradiated Oxide Fuels  
J. Nucl. Mater. 25, 201-205, 1968
  
- 7) M.J. Bell  
Origen - The Oak Ridge Isotope Generation  
and Depletion Code  
ORNL - 4628, 1973

### Danksagung

Bei Planung und Aufbau der Anlage FIFA sowie bei der radiochemischen Nachuntersuchung des Fissiums waren mehrere Abteilungen und Institute des Kernforschungszentrums beteiligt.

Von KTB-HZ wurden z.B. die Räume und einige Einrichtungen des ehemaligen Transplutonium-Labors zur Verfügung gestellt;

von IT-PA und IT-M wurden Projektierungs- und Konstruktions-Arbeiten für mehrere Anlagenkomponenten übernommen;

die Herren Damm und Eberle, KTB-HZ, haben den mechanischen Aufbau und den inaktiven Versuchsbetrieb der Anlage durchgeführt;

von Fräulein Nolte, IRCH, wurden die  $\gamma$ -spektrometrischen Analysen des Fissiums angefertigt.

Die Autoren möchten allen Genannten an dieser Stelle für ihre Mitarbeit und zahlreichen Anregungen danken.