



KfK 2943  
März 1981

# **Untersuchungen zur Lösbarkeit von MOX-Brennstoff älterer Fertigung für thermische Reaktoren**

W. Ochsenfeld, H.-J. Bleyl, H. Wertenbach  
Institut für Heiße Chemie  
Institut für Radiochemie  
Projekt Wiederaufarbeitung und Abfallbehandlung

**Kernforschungszentrum Karlsruhe**



KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE

Institut für Heiße Chemie

Institut für Radiochemie

Projekt Wiederaufarbeitung und Abfallbehandlung

KfK 2943

PWA 101/80

Untersuchungen zur Lösbarkeit von  
MOX-Brennstoff älterer Fertigung für thermische Reaktoren

W. Ochsenfeld, H.-J. Bleyl und H. Wertenbach

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH, Karlsruhe

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

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH  
ISSN 0303-4003

## Zusammenfassung

Untersucht wurde die Lösbarkeit von  $\text{UO}_2/\text{PuO}_2$  - LWR Brennstoff in Salpetersäure. Der Brennstoff enthielt bis zu 4 % Plutonium und wurde durch Mischen der Oxide nach einem bis 1976 bei der Fa. Alkem angewandten Verfahren hergestellt. Er wurde sowohl vor dem Reaktoreinsatz als auch nach verschiedenen Abbränden bis maximal 3,7 Atom % untersucht. Die Ausgangskonzentration der Salpetersäure wurde von 7 bis 14,5 molar variiert, als Lösedauer wurde zwischen 2 und 14 Stunden angewandt.

In allen Fällen wurden Löserückstände und darin erhebliche Anteile Plutonium festgestellt. Für die jeweiligen Mengen zeigte sich eine schwache Abhängigkeit von den Lösebedingungen und eine stärkere von dem Abbrand. Im unbestrahlten Brennstoff mit 3,2 %  $\text{Pu}_{\text{fiss}}$ -Anteil betragen die Löserückstandsmengen 1,0-1,2 % des Brennstoffs und die Menge ungelösten Plutoniums zwischen 15 und 25 % vom gesamten Plutonium. Vom Brennstoff mit dem höchsten Abbrand blieben ca. 0,5 % ungelöst, die darin enthaltene Menge Plutonium machte 2-3 % vom gesamten Plutonium des Brennstoffs aus. Der Einfluß des Abbrandes wird mit der Wirkung gesteigerter Brennstofftemperatur interpretiert.

Experimental Results on the Solubility of LWR  $UO_2/PuO_2$  Fuel  
fabricated by the earlier Mox Fuel Procedure.

Abstract

The report summarizes experimental results on dissolution of  $UO_2/PuO_2$  LWR fuel by nitric acid. The mechanically blended fuel was fabricated by Alkem's procedure used until 1976. The examination of the fuel was done before and after irradiation, the maximum burn-up reached was 3,7 atom %. 7 to 14,5 molar nitric acid were applied during 2 to 14 hours of dissolution time.

In all cases insoluble residues were found to contain more or less plutonium. The amounts of both residue and plutonium were mainly dependent on burn-up and less on the conditions of dissolution. The unirradiated fuel turned out to have the highest amounts of undissolved material: 1,0-1,2 % of the fuel and 15-25 % of the total plutonium. On the other side about 0,5 % of the fuel and 2-3 % of the total plutonium were determined to be undissolved in dissolution experiments of the fuel with maximum burn-up. The effect of burn-up is interpreted as the result of the increased temperature of the fuel during in-core time.

Untersuchungen zur Lösbarkeit von  
MOX-Brennstoff älterer Fertigung für thermische Reaktoren

---

W. Ochsenfeld, H.-J. Bleyl und H. Wertebach  
Kernforschungszentrum Karlsruhe  
Institut für Heiße Chemie  
und Institut für Radiochemie

Zur Vorbereitung der Wiederaufarbeitung von MOX-Brennstoff (Pu-recycle Brennstoff) wurden u. a. Kenntnisse über dessen Lösbarkeit erforderlich. Sie wurden durch Verwendung von KWO- und VAK-Brennstab-Abschnitten mit ca. 3 kg Brennstoff, die von Nachbestrahlungsuntersuchungen zurückgeblieben waren, gewonnen. Das Material war von der Fa. ALKEM nach dem bis 1976 angewandten Fertigungsverfahren hergestellt worden. Ergänzend dazu wurde das Verhalten von nicht abgebranntem Brennstoff derselben Herstellungsart untersucht und dabei etwa 400 g Mischoxid eingesetzt. Als Lösemittel wurde Salpetersäure ohne jeden Zusatz benutzt, ausgenommen einige Ansätze mit dem Brennstoff ohne Abbrand.

#### Experimentelles

Nicht abgebrannter Brennstoff: Etwa 20 g des Materials wurden eingewogen und in einer Glas- oder Teflonapparatur, bestehend aus Kolben und Rückflußkühler, in der Lösesäure einige Stunden bei Siedetemperatur gehalten. Die Lösung enthielt am Schluß zwischen 220 und 230 mg U/ml. Nach dem Abkühlen wurde über

eine Scheibe aus Sinter-Edelstahl, Porenweite  $1 \mu\text{m}$  (Sika R 1 der Fa. Krebsöge), filtriert. Das Filtrat war stets eine klare Lösung. Der Rückstand wurde mit verdünnter  $\text{HNO}_3$  und Methanol gewaschen, anschließend getrocknet und ausgewogen. Zu seiner Analyse wurde er mit Kaliumhydrogensulfat geschmolzen, was zu einem vollständigen Aufschluß führte.

Die Auflöserversuche in Gegenwart von Fluorid wurden in Kolben und Kühlern aus Teflon durchgeführt. Allgemein wurde das Fluorid der Lösesäure sofort zugefügt. In einigen Fällen (Versuch 18, 19) wurde nach dem Auflösen der Hauptmenge mit  $\text{HNO}_3$  erst in den letzten Stunden HF zugefügt, um mit kleineren HF-Konzentrationen auszukommen.

Abgebrannte Brennstoffe: Zur Auflösung wurden 2 oder 3 Stücke von ca. 5 cm Länge eines Brennstabes gewogen, in einer Glasapparatur (Kolben, Rückflußkühler, Saugrohr) mit Salpetersäure versetzt und für bestimmte Zeit am Sieden gehalten. Die Lösung hatte am Schluß eine Uran-Konzentration zwischen 190 und 240 mg/ml. Nach dem Abkühlen wurde durch ein Teflongefäß mit Boden aus Sinter-Edelstahl von 1 oder  $14 \mu\text{m}$  Porenweite filtriert. Die im Kolben verbliebenen Hülsen und die Rückstände auf den Filtern wurden mit verdünnter  $\text{HNO}_3$  und Methanol gewaschen, anschließend getrocknet und gewogen. Als Brennstoffeinwaage ergaben sich dabei zwischen 70 und 100 g, im Vergleich dazu wogen die Hülsen ca. 25 %.

Zur Analyse der Rückstände wurde mit konzentrierter  $\text{HNO}_3$  / 0,05 M HF bei  $170^\circ\text{C}$  aufgeschlossen, was nicht vollständig gelang. In der Aufschlußlösung konnte aber  $> 97 \%$  des Pu des Löserückstandes mit Hilfe eines Röntgenfluoreszenzspektrometers bestimmt werden, im Aufschlußrückstand wurden mit derselben Methode der restliche Anteil gefunden.

### Resultate für nicht abgebrannte Brennstoffe

In Salpetersäure wurde ein unerwartet hoher Anteil des Plutoniums des unbestrahlten KT8030-Brennstoffs nicht gelöst. In 8 molarer  $\text{HNO}_3$  blieben nach 6,5 Std. Kochen noch 20 % des gesamten Plutoniums ungelöst (Versuch 5). In 10 bis 11 M  $\text{HNO}_3$  blieben nach 3 h 18 % bzw. 25 % (Versuch 21 und 22), nach 8 h 13 % (Versuch 20) und nach 15 h 13 % des Plutoniums im Rückstand. Sogar in konzentrierter 14,5 M  $\text{HNO}_3$  waren nach 6,5 h 14 % des Plutoniums nicht gelöst worden (Versuch 6). Eine größere Lösesäuremenge (vgl. Versuch 19 mit 18) hat bei ansonsten gleichen Bedingungen eine bessere Auflösung des Pu zur Folge.

Zu bemerken ist, daß in den ungelösten Rückständen allgemein etwa 60 % Pu und 15 % U gefunden wurden.

Zugabe von HF in ausreichender Konzentration, d.h. ab 0,1 M verringerte die Rückstandsmenge auf <0,17 % und den ungelösten Anteil des Plutoniums unter <0,13 % schon in 3 Stunden (Versuch 10, 14, 16, 17). Geringere HF-Konzentrationen als 0,1 % in der verwendeten Salpetersäure von ca. 7 bis 12 M brachten eine Verbesserung der Löslichkeit, die aber für die Verarbeitung im Purex-Prozeß nicht ausreichend war.

Neben dem Brennstoff KT8030 wurde auch der nach einer abgeänderten Fertigungsweise hergestellte rSS 100 %-Brennstoff untersucht. Er hinterließ nach 6,5 stündigem Kochen in 8 M  $\text{HNO}_3$  eine Rückstandsmenge von 0,06 %. Eine Analyse war wegen der geringen Menge des Rückstandes nicht möglich. Unter der ungünstigsten Annahme, daß der Rückstand lauter  $\text{PuO}_2$  ist, wäre der ungelöste Pu-Anteil <2,5 %.

Die ungelösten Rückstände der Versuche 20, 21, 22 und 23 wurden nochmals mit 10 bis 10,7 molarer  $\text{HNO}_3$  mit verschiedenen

HF-Konzentrationen jeweils 5 Stunden lang gekocht. Der dabei verbleibende Rückstand wurde abfiltriert und gewogen (Tab. 2). Das Gelöste im Filtrat wurde analysiert und die Ergebnisse dieser Versuche in Tab. 1 eingesetzt.

Tabelle 1: Nicht abgebrannte Brennstoffe

Vers. Nr.	Brennstoff Bezeichnung	Lösebedingungen		Dauer Std.	Löserückstand			Pu ungelöst $\frac{\text{Pu}_{\text{Rückst}}}{\text{Pu}_{\text{total}} \times 10^{-2}}$
		Anfangskonz. M HNO <sub>3</sub>	M HF		Menge % vom Brennst.	Zusammen- setzung % U	% Pu	
	$\frac{\text{Pu}}{(\text{U}+\text{Pu}) \times 10^{-2}}$							
<u>KT8030</u>								
5	4,00	8,3	-	6,5	1,19	18	62	20
1	"	9	-	6	1,13	-	-	-
23	"	10	-	3	0,86	-	-	-
20	"	10,4	-	8	0,91 <sup>4)</sup>	15	52	13
21	"	10,7	-	3	1,31	18	71	25
22	"	10,7	-	3	0,97	17	69	18
4	"	11,2	-	15	0,96	13	48	13
2	"	11,4	-	2,5	1,07	-	-	
6	"	14,5	-	6,5	0,96	14	53	14
9	"	6,9	0,02	3	0,96	13	60	16
7	"	6,3	0,02 <sup>1)</sup>	3	0,95	-	-	-
8	"	6,9	0,02 <sup>2)</sup>	3	0,95	-	-	-
18	"	12,1	0,01	6 <sup>3)</sup>	0,61	6,8	68	11
19	"	12,1	0,01	6 <sup>3)</sup>	0,24 <sup>5)</sup>	2,9	63	4
11	"	7,1	0,05	3	0,55	7,4	59	9
13	"	7,1	0,05	6	0,42	6,8	65	7
10	"	7,0	0,1	3	0,13	} 0,35	3,2	0,13
14	"	<b>7,0</b>	0,1	3	0,17			
17	"	10,1	0,1	3	0,009	-	-	-
16	"	7,3	0,2	3	0,029	-	-	-
<u>rSS 100 %</u>								
15	2,39	8	-	6,5	0,057	-	-	
27	2,39	8	-	6,5	0,066	-	-	≤ 2,5

- 1) außerdem 0,02 M Al(NO<sub>3</sub>)<sub>3</sub>
- 2) außerdem 0,007 M Al(NO<sub>3</sub>)<sub>3</sub>
- 3) außerdem 0,007 M Al(NO<sub>3</sub>)<sub>3</sub>
- 4) F nur während der letzten 2 Stunden
- 5) zweimal mit frischer Säure gelöst
- 6) größere Lösemittelmenge, Endkonzentration 72 mg U/ml

Tabelle 2: Auflösung der Rückstände

Vers. Nr.	Rückstand Gew.-%	Lösesäure		Ungelöst	
		M HNO <sub>3</sub>	M HF	Gew.-% des Rückstands	Gew.-% des Brennstoffs
23	0,86	10	-	84,5	0,72
22	0,97	10,7	0,01	6,6	0,06
21	1,31	"	0,03	4,5	0,06
20	0,91	"	0,1	2,65	0,024

Nach Entfernung der Hauptlösung mit Uran und Plutonium sind die Rückstände mit Salpetersäure in Gegenwart geringer HF-Konzentrationen praktisch vollständig löslich. Die Erklärung ist naheliegend, denn in der ersten Lösung wird das Fluorid von den in großen Mengen vorhandenen Metallen gebunden und deswegen ist dabei ein großer Überschuß nötig. Wenn Fluorid für die vollständige Auflösung nicht zu umgehen wäre, ist eine Auflösung in zwei Stufen die günstigere: Zuerst Auflösung der Hauptmenge des Urans und Plutoniums mit Salpetersäure, Filtration und danach Lösen des Rückstandes mit Salpetersäure und HF.

Resultate für abgebrannte Brennstoffe

Die Untersuchungsergebnisse sind in der Tabelle 3 zusammengefaßt. Sie ist nach dem Reaktor (KWO und VAK) und nach der Startanreicherung mit spaltbarem Plutonium gegliedert.

Als Brennstoffdaten sind die Herkunft durch die Brennelement- und Brennstabbezeichnung angegeben, der Pu<sub>fiss</sub>- und Pu<sub>gesamt</sub>-Anteil vor dem Reaktoreinsatz genannt, sowie in steigender Reihenfolge die Rechnungsergebnisse für den Abbrand und die Brennstableistung aufgeführt. Bei einem Brennstoffeinsatz in mehreren Reaktorzyklen sind der kumulierte Abbrand, aber die Stableistungen pro Zyklus tabelliert. Alle Zahlen stammen aus Angaben von Alkem oder KWU.

Unter Lösebedingungen wird die Ausgangskonzentration der Salpetersäure und die Dauer des Siedevorgangs angegeben. Additive Zeitangaben bedeuten eine Unterbrechung des Lösens über Nacht. Der größere Teil der Untersuchungen wurde, nach Absprache mit den Firmen Alkem und Belgo Nucleaire, mit 10 M Salpetersäure und etwa 6 Stunden Lösedauer durchgeführt. Nur mit Brennstoff aus KWO 149/133 wurden die Lösebedingungen in bemerkenswertem Umfang variiert. Hier wurde mit 7, 10 oder 14 Stunden lang gearbeitet. In der Tabelle sind die Ansätze nach steigenden Zahlen geordnet. Die Auswirkung auf die Löserückstandsmenge wird später diskutiert.

Weiter ist der aus der Lösung bestimmte Abbrand tabelliert. Die Werte korrespondieren in den meisten Fällen gut mit denen aus der Rechnung. Dagegen ergaben sich für den VAK-Brennstoff systematische Unterschiede von ca. 40 %, die aber nach Meinung des Reaktorbetreibers mit der besonderen Lage der hier zu Verfügung gestellten Brennstäbe vereinbar sind. Mit der generellen Bestimmung des Abbrandes aus den Lösungen sollten Verwechslungen oder untypische Brennstababschnitte festgestellt werden können.

Die Löserückstandsmenge ist als Gewichtsanteil der Brennstoffeinwaage angegeben. Es wurden Werte zwischen 0,17 und 1,05 % gefunden. Sie ergaben sich durch Filtration über das 1  $\mu\text{m}$ -Filter oder über das 14- und das 1  $\mu\text{m}$ -Filter in Folge. Wenn nur das 14  $\mu\text{m}$ -Filter verwendet wurde (wobei das Filtrat trüb war), ist ein Grenzwert genannt. Der Tabelle ist zunächst zu entnehmen, daß die Löserückstandsmengen von nach Brennstoffherkunft und Lösebedingungen parallelen Ansätzen unterschiedlich gut übereinstimmen. Das wurde auch schon bei der Untersuchung des nicht abgebrannten Brennstoffs, also unter vergleichsweise einfachen Arbeitsbedingungen, festgestellt (vgl. Tab. 1). Dieser Befund kann nicht eindeutig erklärt werden. Eine grob unvollständige Überführung des Rückstandes auf das Filter oder ein nicht abgeschlossenes Trocknen vor

Tabelle 3: Abgebrannte Brennstoffe

Brennstoffdaten				Lösebedingung		Abbrand	Löserückstand			Pu ungelöst
Herkunft	Pu-Anteil vor Abbrand	Abbrand a)	Brennstableistung a)	HNO <sub>3</sub>	Dauer	aus Lösung	Menge	Anteile U   Pu		$\frac{Pu \text{ Rückst}}{Pu \text{ total}} \cdot 10^{-2}$
BE/BS	$\frac{Pu}{(U+Pu)} \cdot 10^{-2}$	$\frac{MWd}{kg}$	W/cm	M	Std.	At.-%	% von Brennst.	% von Löserückstand		
A) aus KWO, Pu <sub>fiss.</sub> vor Reaktoreinsatz 3,2 %										
249/122	3,54 <sup>b)</sup>	7,2	132	10	1,7 + 3,6	0,60	0,68	19	56	13
				10	5,5	0,61	0,21	18	44	3 <sup>c)</sup>
281/99	3,53 <sup>b)</sup>	8,8	163	10	5	0,97	1,05	24	64	21
				10	2 + 3	0,99	1,03	16	48	17
281/235	3,53 <sup>b)</sup>	9,2	171	10	5	1,04	0,87	17	47	14
				10	2 + 3	0,99	0,88	20	55	15
249/133	3,54 <sup>b)</sup>	17,6	128+196	7	2	1,63	0,86	-	-	-
				7	5,5	1,79	0,95	20	45	14
				7	8	1,92	0,69	19	45	11
				10	5,5	1,37	0,86	18	56	16
				10	6,3 + 7	1,63	0,77	15	50	13
				10	6,5 + 7	1,79	0,64	17	50	11
				14,5	2	1,69	0,85	-	-	-
				14,5	1,3 + 6	1,76	0,59	16	47	10
				14,5	7 + 7	1,70	0,55	-	-	-
251/296	3,96 <sup>a)</sup>	19,9	178+219	10	5,5	2,02	0,49	13	30	6
				10	5,6	1,84	0,60	17	36	8
251/493	3,96 <sup>a)</sup>	24,4	220+265	10	5,2	2,55	0,49	5,4	10	2,0
				10	4 + 1,3	2,66	>0,42	7,5	17	>2,9
251/425	3,96 <sup>a)</sup>	36,9	245+260+220	8	6	3,68	0,65	5,9	8,9	2,5 <sup>d)</sup>
B) aus KWO, Pu <sub>fiss.</sub> vor Reaktoreinsatz 2,0 %										
249/ 37	2,21 <sup>b)</sup>	8,3	152	10	5,5	0,84	0,53	16	58	15
				10	5,7	0,82	0,60	15	54	16
281/188		11,4	211	10	5	1,21	0,36	21	47	9
				10	5	1,28	0,53	19	50	12
254/276		11,5	213	10	5	1,33	0,17	} 15	35	4 <sup>c)</sup>
				10	5	1,25	0,26			
249/ 10	2,21 <sup>b)</sup>	16,0	95+200	10	7	1,77	0,37	11	29	6
				10	2 + 5	1,34	0,24	13	38	5
C) aus VAK, Pu <sub>fiss.</sub> vor Reaktoreinsatz 1,97 bzw. 1,22 % <sup>a)</sup>										
P5 /160	2,10 <sup>a)</sup>	>14,5 <sup>e)</sup>	~ 250+250 <sup>f)</sup>	10	5	2,10	0,32	8,8	15	4
				10	5	2,25	0,33	11	15	4
				10	6 + 1	2,09	0,24	23	42	9
P5 / 53	1,30 <sup>a)</sup>	>14,5 <sup>e)</sup>	~ 250+250 <sup>f)</sup>	10	5,5	2,16	0,25	20	61	15

a) Angaben von KWU, über den Brennstab gemittelt  
 b) Angaben von Alkem  
 c) Löserückstandsmenge relativ klein  
 d) Löserückstandsmenge relativ groß

e) Angaben von VAK, über den Brennstab gemittelt  
 f) Angaben von VAK, maximale Leistung

der Gewichtsermittlung darf ausgeschlossen werden. Ungeachtet dessen läßt sich aus den Ergebnissen deutlich ein Zusammenhang zwischen Löserückstandsmenge und Pu-Anteil sowie Abbrand des Brennstoffs erkennen: fallende Pu-Anteile und steigende Abbrände führten in der Regel zu kleineren Löserückstandsmengen. Dieser Reihe läßt sich sogar das Ergebnis für nicht abgebrannten Brennstoff anschließen, da die gemittelte Löserückstandsmenge dort höher als bei jedem abgebrannten Brennstoff gefunden wurde (vgl. Tab. 1). Eine Abhängigkeit von den Lösebedingungen kann ebenfalls, allerdings weniger ausgeprägt, abgelesen werden: erhöhte Säurestärke und verlängerte Lösedauer ergaben meist geringere Löserückstandsmengen.

Von den Bestandteilen der Löserückstände interessierten in erster Linie Uran und Plutonium. Die Tabelle weist aus, daß deren Anteile nicht konstant sind. Unterschiede sind zunächst in Löserückständen aus parallelen Ansätzen und weiter in solchen aus unterschiedlich abgebrannten Brennstoffen abzulesen. Das Streuen der Ergebnisse, vor allem bei den parallelen Ansätzen, wird auf das Maß der Reproduzierbarkeit hauptsächlich von Probenahme und Aufschlußvorbereitung zurückgeführt. Mit steigenden Abbränden nehmen die U- und Pu-Anteile ab, was aber erst nach Überschreiten einer Schwelle zu erkennen ist. Dieser Wert scheint für die beiden KWO-Brennstoffe mit unterschiedlicher Startanreicherung verschieden zu sein (zwischen 18 und 20 MWd/kg bei 3,2 %, 12 - 16 MWd/kg bei 2,0 %). Veränderungen sind auch beim Pu/U-Verhältnis in den Rückständen zu sehen. Mit steigendem Abbrand verringert sich der Quotient, beim Brennstoff mit 3,2 % Startanreicherung beispielsweise von Anfangswerten zwischen 2,5 und 3 bis zu 1,5 bei höchstem Abbrand. Auch dieser Reihe läßt sich der nicht abgebrannte Brennstoff voranstellen, für den ein Pu/U-Verhältnis im Löserückstand von 3,5 bis 4 ermittelt wurde (Tab. 1). Aus wenigen zusätzlichen Messungen ist der Gehalt des Löserückstandes an Americium, Ruthen, Molybdän und Zirkon bekannt.

Tabelle 4: Zusammensetzung von Löserückständen

BRENNSTOFF		ABBRAND		LÖSERÜCKSTAND				
BE / BS	Pu <sub>fiss</sub>	aus Lösung	U	Pu	Anteile			
Nr.	$\frac{Pu_{fiss}}{(U+Pu) \times 10^{-2}}$	At.-%			Am	Ru	Mo	Zr
					%			
281/ 99	3,2	0,97	24	64	1,2	1,8	1,2	0,9
		0,99	16	48	0,9	1,7	1,3	0,1
281/235	3,2	1,04	17	47	1,0	3,6	1,0	0,6
		0,99	20	55	1,1	2,2	1,4	0,7
251/425	3,2	3,68	5,9	8,9	0,6	15	3,9	0,3
249/ 37	2,0	0,84	16	58	1,5	1,9	1,3	1,6
281/188	2,0	1,21	21	47	1,2	4,0	2,6	1,3
		1,28	19	50	1,1	2,8	2,0	0,9
254/276	2,0	1,33						
		1,25	15	35	1,1	4,2	1,8	3,3
P5 /160	1,97	2,10	8,8	15	0,6	10	7,6	0,7
		2,25	11	15	0,8	12	8,6	0,8

Die Ergebnisse sind in Tabelle 4 zusammengefaßt. Während für Americium Werte zwischen 0,3 und 1,3 % gemessen wurden und dabei in der Regel ein gleicher Zusammenhang mit dem Abbrand wie bei Uran und Plutonium herauskam, ist die Beziehung bei den Spaltproduktelementen umgekehrt. Mit steigendem Abbrand zeigen deren Anteile am Löserückstand insgesamt gesehen eine prozentuale Zunahme, wobei einzelne Werte von diesem Bild erheblich abweichen. Die Fehler bei der röntgenfluoreszenzspektroskopischen Messung hängen von der Art der Proben (Lösungen mit internem Standard bzw. ungelöste Reste auf Filterpapier) und von der Konzentration der zu bestimmenden Elemente ab. Die relative Standardabweichung (1Me) beträgt bei den Proben der Tabellen 3 und 4 für Uran und für Plutonium ca.  $\pm 10$  %. Der Gesamtfehler liegt für U und Pu bei  $\leq 5$  % und für Am und die Spaltprodukte bei 20 - 40 %.

Das ungelöste Plutonium ist in der Tabelle 3 abschließend bezogen auf das in Lösung und Löserückstand zusammen vorhandene Plutonium angegeben. Aufgrund der hierbei zusammengefaßten Fehler von Plutonium- und Rückstandsmengenbestimmung sowie des früher erwähnten Streuens ihrer Ergebnisse sind gerundete Zahlen tabelliert. Sie zeigen den Bereich, in dem der Anteil ungelösten Plutoniums liegt. Er beträgt danach 2 - 3 % bei Abbränden zwischen 25 und 35 MWd/kg, 4 - 8 % bei Abbränden von rund 20 MWd/kg und 10 - 15 % darunter. In guter Ergänzung dazu steht das Ergebnis der Wiederaufarbeitung von 18 kg MOX-Brennstoff in der MILLI-Anlage. Das Brennstoffgemisch hatte dabei Abbrände von 32 - 46 MWd/kg, die Menge ungelösten Plutoniums betrug 1 - 2 %. Nicht abgebrannter Brennstoff hatte streuende Werte mit einer Häufung um 15 % ergeben.

Es war bei dieser Untersuchung nicht sicher festzustellen, ob der Abbrand als solcher die Veränderung der unlöslichen Plutoniummenge mit sich bringt oder ob es nicht vielmehr auf die Brennstofftemperatur und ihren zeitlichen Verlauf ankommt.

Aus der Tabelle 3 ergibt sich im allgemeinen das Bild, daß eine Brennstableistung von etwa 200 W/cm erreicht sein mußte, um den unlöslichen Plutoniumanteil am Pu-Gehalt nicht abgebrannten Brennstoffs von ca. 15 % deutlich zu verringern. Das wird als ein Hinweis auf die primäre Rolle der Brennstofftemperatur vor dem Abbrand verstanden. Weiter deutet die erwähnte Abbrandschwelle bei den Uran- und Plutoniumanteilen im Löserückstand auf die Richtigkeit des postulierten Zusammenhangs hin. Eine gesicherte Aussage ist aber deshalb nicht möglich, weil bei den hier untersuchten Brennstoffen die höheren Abbrände zugleich mit erhöhten Brennstableistungen erreicht wurden.

An der Durchführung der Arbeiten waren Mitarbeiter von  
IHCh, IRCh und KTB/HZ beteiligt, denen die Autoren ihren  
Dank aussprechen möchten.