

KfK 3278  
März 1982

# **Technologische Fragen des Brüterbrennstoffkreislaufs**

**Beiträge zum Seminar am  
15. Oktober 1981  
im Kernforschungszentrum Karlsruhe**

**Hrsg.: W. Marth, H. Lahr  
Projekt Schneller Brüter**

**Kernforschungszentrum Karlsruhe**



KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE

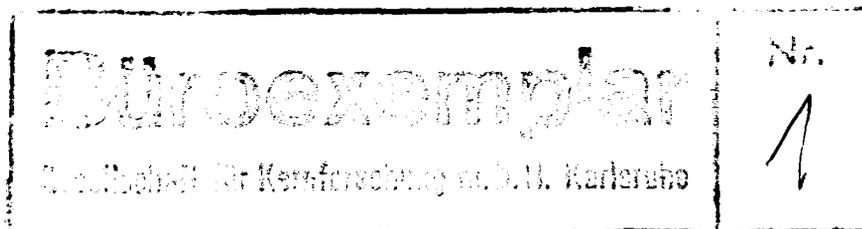
Projekt Schneller Brüter

KfK 3278

"Technologische Fragen des Brüterbrennstoffkreislaufs"

Beiträge zum Seminar am 15. Oktober 1981  
im Kernforschungszentrum Karlsruhe

Hrsg.: W. Marth, H. Lahr



Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH, Karlsruhe

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

**Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH  
ISSN 0303-4003**

InhaltSeite

"Technologische Fragen des Brüterbrennstoffkreislaufs; Zielsetzung und erste Ergebnisse"	1
W. Marth, H. Lahr, Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH, Projektleitung Schneller Brüter	
"Die Brennelemente der KNK II und ihr Betriebsverhalten"	6
H. Mayer, Interatom GmbH, Bergisch Gladbach; H. Richard, Kernkraftwerk-Betriebsgesellschaft mbH, Leopoldshafen	
"Das Referenzkonzept zur Entsorgung der KNK II"	14
G. Schnetgöke, Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH, Projektleitung Schneller Brüter	
"Die Entfernung des Natriums von Brennelementen"	29
K.Ch. Stade, H. Breitländer, Kernkraftwerk- Betriebsgesellschaft mbH, Leopoldshafen; H.H. Stamm, Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH, Institut für Radiochemie	
"Zerlegen von Brennelementen mit Gitterabstandshaltern"	46
G. Bestenreiner, Interatom GmbH, Bergisch Gladbach	
"Die Zerlegung und Nachuntersuchung des ersten und zweiten defekten KNK II-Brennelements"	56
H. Enderlein, Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH, Hauptabteilung Kerntechnische Betriebe; W. Kathol, Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH, Projektleitung Schneller Brüter	

"Verfahren und Erfahrungen zur Wiederaufarbeitung von Schnellbrüterbrennstoffen"	83
W. Ochsenfeld, Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH, Institut für Heiße Chemie	
"Die Wiederaufarbeitung von Brennstoff aus dem ersten defekten KNK II-Brennelement in der MILLI"	93
H.-J. Bleyl, Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH, Institut für Heiße Chemie	
"Die Zusammensetzung von Rückständen bei der Auflösung von bestrahltem Schnellbrüter-Mischoxidbrennstoff"	100
H. Kleykamp, Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH, Institut für Material- und Festkörperforschung	
"MILLI II: Konzeptstudie für eine Pilotanlage zur Wiederaufarbeitung von Brüter-Brennelementen"	114
G. Koch, Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH, Institut für Heiße Chemie	
"Erfahrungen zur Brennstoff-Rezyklierung"	121
V. Schneider, W.G. Druckenbrodt, Alkem GmbH, Hanau 11	
"Rechnungen zum Vergleich der Aktivitätsinventare bestrahlter Brennstoffe des SNR 300, des Super Phénix und des DWR Biblis"	125
H.W. Wiese, U. Fischer, B. Krieg, H. Küsters, Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH, Institut für Neutronenphysik und Reaktortechnik und S. Shi, delegiert vom Institut für Kernenergie und Technik, Qinghua Universität, Peking, China	

"Lokalisierung von defekten Brennstäben in Brennstab- bündeln und Reparatur von Brüterelementen"	134
H. Deckers, H. Drexler, H. Reiser, Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH, Institut für Material- und Festkörperforschung	
"Unterwassertechnik zur Reparatur von LWR-Brennele- menten und deren Anwendung für die Zerlegung von KNK II-Brennelementen"	142
K. Knecht, Kraftwerk-Union AG, Erlangen	
"Brütterspezifische Probleme bei Brennelement-Transporten und Behälterauslegung"	151
R. Christ, Transnuklear GmbH, Hanau 11	
"Konzeptstudie zur Zwischenlagerung von KNK II-Brennele- menten unter Wasser"	157
K. Wasinger, Kraftwerk-Union AG, Offenbach (Main)	
"Konzeptstudie zur Zwischenlagerung von KNK II-Brennele- menten in einem Blocklager"	165
P. Arntzen, A. Gasch, Nukem GmbH, Hanau 11	
"Konzept zur Zwischenlagerung bestrahlter KNK II-Brennele- mente in Transport-/Lagerbehältern"	173
W. Bergmann, G. Dries, R. Laug, Transnuklear GmbH, Hanau 11	

Technologische Fragen des Brüterbrennstoffkreislaufs;  
Zielsetzung und erste Ergebnisse

W. Marth, H. Lahr  
Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH  
Projekt Schneller Brüter  
Postfach 3640, D-7500 Karlsruhe

Zusammenfassung

Da die Zuarbeiten des Kernforschungszentrums Karlsruhe zum SNR 300-Bau weitgehend erledigt sind und nunmehr bestrahlte KNK II-Brennelemente anfallen, ergeben sich die Möglichkeit und die Notwendigkeit, verstärkt das Gebiet des Brüterbrennstoffkreislaufs zu bearbeiten. Mit diesen Arbeiten wurde im Jahre 1980 begonnen.

Die einzelnen Vorträge dieses Seminars stellen einen Überblick der bisher vorliegenden Zwischenergebnisse dar.

Technological Questions of the Breeder Fuel Cycle: Target and First Results

Abstract

Since the contributions by the Karlsruhe Nuclear Research Center to the construction of SNR 300 have been completed to a large extent and irradiated KNK II fuel subassemblies have now become available, the possibility and necessity arise of concentrating efforts on the breeder fuel cycle. This work was started in 1980.

The individual papers presented at this seminar will provide a survey of intermediate results obtained until today.

## 1. Einleitung

Das Projekt Schneller Brüter besteht seit mehr als 20 Jahren. Untersucht man die während dieses Zeitraums behandelten F+E-Themen, so wird deutlich, daß sie zum ganz überwiegenden Teil die Etablierung der Reaktortechnik zum Ziele hatten. Es begann mit der Physik schneller Neutronen, setzte sich fort mit dem Bau von Versuchskreisläufen für die verschiedenen in Betracht gezogenen Kühlmittel und mündete ein in theoretische Reaktorstudien, welche unter den Bezeichnungen Na1, Na2, D1 und D2 bekannt geworden sind. Nach der Auswahl des Kühlmittels Natrium gegen Ende der 60er Jahre übernahm die Industrie zunehmend Verantwortung. Mit dem Baubeginn des SNR 300 im Frühjahr 1973 war die Rolle des KfK im wesentlichen auf Forschungen der Teilgebiete Sicherheit, Brennstab und Material, Instrumentierung und Natriumtechnologie beschränkt.

Inzwischen sind die von KfK für den SNR 300 übernommenen Arbeiten zum Großteil erledigt, auch wenn dies in Anbetracht des Fertigstellungsgrads des Kernkraftwerks Kalkar überraschen mag. Etwa 15-20 % des PSB-Budgets zielen direkt auf SNR 300, der restliche Aufwand dient der F+E-Absicherung der Natriumbrüterlinie. Im Vordergrund stehen die theoretischen und experimentellen Arbeiten zum Kernschmelzen. Ein wichtiges Ziel ist die argumentative Untermauerung, daß Bethe-Tait-Störfälle im künftigen Genehmigungsverfahren für Großbrüter - anders als beim SNR 300 - nicht mehr als Auslegungstörfälle behandelt werden müssen. Auf dem Materialsektor stehen die F+E-Arbeiten zur Akzeptanz des Leck-vor-Bruch-Kriteriums im Vordergrund.

## 2. Arbeiten zum Brennstoffkreislauf

Die Vollastinbetriebnahme der KNK II im Jahre 1979 hat die Aufnahme eines weiteren wichtigen Gebiets in das PSB-F+E-Programm ermöglicht: den Brüterbrennstoffkreislauf. Zusammen mit dem Plutoniumlabor, den Heißen Zellen, der MILLI-Wiederaufarbeitungsanlage sowie den verschiedenen Einrichtungen zur Konditionierung des Abfalls besitzt das Kernforschungszentrum Karlsruhe, wie sonst keine Stelle in der Bundesrepublik, die geeignete Infra-

struktur, um Arbeiten auf dem Gebiet des Brüterbrennstoffkreislaufs erfolgreich durchführen zu können.

Da beim Brüter die Rückführung des Brennstoffs unverzichtbar ist, gibt es über die Notwendigkeit solcher Arbeiten keine Zweifel. Hinderlich sind jedoch die Akzeptanzschwierigkeiten auf dem Gebiet der Wiederaufarbeitung, ganz abgesehen von den Bemühungen zur "direkten Endlagerung" bestrahlter Brennelemente.

Das gegenwärtige Programm zum Brüterbrennstoffkreislauf sieht folgende Teilbereiche vor:

- Betrieb der Brennelemente in der KNK II,
- Dekontamination der entladenen Brennelemente von anhaftendem Natrium,
- Transport und Zwischenlagerung der bestrahlten Brennelemente,
- Nachuntersuchen und Reparatur sowie Zerlegen und Zerschneiden der Brennelemente bzw. Brennstäbe,
- Auflösen, Wiederaufarbeiten und Abfallbeseitigung (mit PWA),
- Refabrikation des wiedergewonnenen Brennstoffs und Rückführung der Brennelemente in KNK II,
- Reaktorphysikalische Berechnungen zu Aktivitätsinventaren.

Mit der Aufstellung dieses Programms wurde 1979/80 begonnen; die seither in Angriff genommenen Arbeiten stellen einen ersten Schritt dar. Sie sollen im Rahmen dieses Seminars einem größeren Kreis unmittelbar Interessierter vorgestellt werden, nicht zuletzt um weitere Anregungen zu erhalten.

### 3. Erste Ergebnisse

Sehr befriedigend ist das Verhalten der Mischoxidbrennstäbe in der KNK II. Bisher wurde mit 65.000 MWd/t bei mehr als tausend Brennstäben

der ursprünglich vorgesehene Zielabbrand (60.000 MWd/t) überschritten. Eine Genehmigung der Behörde zum Weiterbetrieb konnte aufgrund dieser günstigen Ergebnisse bereits erlangt werden.

Die Reinigung der Brennelemente von anhaftendem Natrium wird von der Wiederaufarbeitung gefordert. Eine Waschanlage an der KNK II hat seine Bewährungsprobe im Zuge der KNK I-Kampagne bestanden. Weitere Arbeiten mit KNK II-Elementen sind zur Optimierung dieser Verfahrensstufen besonders hinsichtlich Wasteanfall und Brennelementbelastung vorgesehen.

Die Zwischenlagerung bestrahlter Brüterelemente über längere Zeit ist sicher kein erwünschtes Ziel, zumal sie das externe Brennstoffinventar und die Verdoppelungszeit erhöht. Nichtsdestoweniger wird man in der Anfangsphase der Brütereinführung nicht ganz darauf verzichten können, so daß es angeraten erscheint, sich auf diese Situation einzustellen. Die Übertragung des bereits existierenden Zwischenlager-know-how's auf die andersartigen Randbedingungen der Brüterelemente war das Ziel dreier Studien für Naß-, Trocken- und Behälterlagerung.

Alle drei Verfahren sind generell durchführbar, jedoch unterschiedlich gut geeignet und bezogen auf KNK II-Elemente sehr verschieden teuer. Nur die Behälterlagerung soll besonders auch im Hinblick auf Abfalltransport und -zwischenlagerung vertieft untersucht werden.

Das Zerlegen von KNK II-Brennelementen mit Gitterabstandshaltern konnte an zwei defekt gewordenen Elementen geübt werden. Erfreulicherweise bereitete das Ziehen von Brennstäben bis zu 5 % Abbrand kaum Probleme.

Auch das Identifizieren der defekten Stäbe ging beim zweiten Brennelement sehr viel schneller vonstatten als beim ersten.

Ein Teil des Brennstoffs dieser Brennelemente wird in der Wiederaufarbeitungsanlage MILLI aufgelöst und abgetrennt. Die Kampagne des ersten defekten Elements lief ohne Schwierigkeiten, die Wiederaufarbeitung des zweiten Elements beginnt gerade. Der wiedergewonnene Brennstoff wird bei der Firma Alkem für Brennstäbe zur Nachladung der KNK II verwendet, so daß

erstmalig in der Bundesrepublik der Brüterbrennstoffkreislauf zumindest im Kilomaßstab geschlossen werden kann.

Die Verglasung des hochaktiven Abfalls aus der zweiten MILLI-Kampagne ist für das Jahr 1982 vorgesehen.

Da die MILLI wegen ihrer begrenzten Kapazität nicht in der Lage ist, die gesamten KNK II-Kerne aufzuarbeiten, wurde ein Entsorgungsvertrag mit dem französischen CEA geschlossen. Er sieht die Wiederaufarbeitung von zunächst drei Cores in der Anlage SAP-TOR in Marcoule vor. Dafür müssen vereinzelte Brennstäbe angeliefert werden. Die Vereinzelung soll in den heißen Zellen des KfK geschehen; als Entlastung wird das Dismantling unter Wasser im Becken des MZFR untersucht.

#### 4. Abschließende Bemerkungen

Die Verstärkung der Karlsruher Tätigkeiten im Brüterbrennstoffkreislauf ist notwendig, um ein wesentliches Gebiet der Brüterttechnik abzudecken. Effiziente Methoden beim Brennstoffkreislauf sind u.a. deshalb erforderlich, um die immer noch zu hohen Investitionskosten des Brüterreaktors auszugleichen. Die Arbeiten werden in Absprache mit dem Projekt Wiederaufarbeitung und Abfallbehandlung (PWA) durchgeführt.

Frankreich und Großbritannien arbeiten zielbewußt auf die Schließung des Brüterbrennstoffkreislaufs hin, wie sich aus der Aufarbeitung des Phénix- und PFR-Brennstoffs im Tonnenmaßstab erkennen läßt. Eine Zusammenarbeit mit diesen Partnern auf dem F+E-Sektor wäre ein erstrebenswertes Ziel. Eigene Anstrengungen werden dadurch aber nicht überflüssig, sondern sind die notwendige Voraussetzung für eine erfolgreiche Kooperation. Insofern begrüßt PSB/PL die Vorplanungsarbeiten für die MILLI II, eine Pilotwiederaufarbeitungsanlage für Brüterbrennstoff mit einer Kapazität bis zu fünf Tonnen/Jahr.

## Die Brennelemente der KNK-II und ihr Betriebsverhalten

H. Mayer (1)  
H. Richard (2)

- (1) INTERATOM, Internationale Atomreaktorbau GmbH,  
5060 Bergisch Gladbach 1, Friedrich-Ebert-Str.
- (2) Kernkraftwerk-Betriebsgesellschaft, 7501 Leopoldshafen

### Zusammenfassung

Auslegung, Fertigung, Genehmigung und Betrieb der KNK-Kernelemente bedeuten für die beteiligten Projektpartner den wichtigen Schritt von einem Entwicklungs- und Versuchsprogramm zur Bereitstellung einer größeren Zahl von Brennelementen für eine Kernkraftanlage.

Vorrangig ist die anfallende Betriebserfahrung, aber selbstverständlich sind die KNK-Brennelemente ein Teil des langfristig angelegten Brennelemententwicklungsprogramms. Das erste schnelle Core der KNK-II hat eine Standzeit von 273 Volllasttagen entsprechend einem Spitzenabbrand von 65.000 MWd/t<sup>SM</sup> in fünf Elementen erreicht. Die ursprüngliche Zielstandzeit von 255 VLT ist damit bereits überschritten; eine Genehmigung zum Betrieb bis 355 VLT liegt vor. Sowohl die langen Perioden des Dauerbetriebes bei 100 % Last als auch die bisher erreichten Abbrände zeigen, daß die beiden aufgetretenen Brennstabfehler (je 1 Stab pro Element) keine systematische Ursache haben können.

### Abstract

Design, fabrication, authorization for operation and the operation itself signify for the project partners involved the step from an research and development program to the procurement of a larger number of fuel subassemblies for a nuclear power plant. Although priority is given to operations experience, those assemblies have to be part of the long-term fuel development program. The first fast core of the KNK-II has reached a residence time of 273 efpd corresponding to a peak burnup of 65.000 MWd/t<sup>HM</sup> in 5 assemblies. By such, the originally planned target<sup>HM</sup> of 255 efpd has already been exceeded; the authorization for an operation up to 355 efpd has been granted. The extended periods of operation at 100 % load as well as the reached burnup prove that the two fuel pin defects (in two assemblies one pin each) do not have any systematic origin.

## 1. Die Brennelemente der KNK als Teil unserer Brennelemententwicklung

Mit der Auslegung, Fertigung und Betrieb der KNK-Kernelemente haben die beteiligten Projektpartner den Schritt von einem Entwicklungs- und Versuchsprogramm vollzogen zur Bereitstellung einer größeren Zahl von Brennelementen für eine Kernkraftanlage, die in allererster Linie Informationen zum Betriebsverhalten einzelner Komponenten und deren Zusammenwirken liefern soll. Selbstverständlich müssen die KNK-Brennelemente ein Teil des langfristig angelegten Entwicklungsprogramms sein [ 1\_ ] und weisen daher auch wichtige Elemente von Versuchsvorhaben auf.

Die Elemente der KNK entsprechen nahezu voll denen des KKW Kalkar, wobei die Grundvoraussetzungen für die Bereitstellung größerer Kernladungen für Schnelle Reaktoren erstmals für diesen ersten Kern der KNK mit Plutoniumbrennstoff erfolgreich durchgearbeitet wurden, nämlich:

- . vollständige nukleare, thermische und mechanische Auslegung großer Brennelemente, Verifizierung von Auslegungsmethoden [ 2\_ ] und deren Vertretung vor den Gutachtern der Genehmigungsbehörde;
- . Erstellung von Fertigungsspezifikationen und der Vereinbarung mit dem Hersteller unter den Gesichtspunkten einer kostengünstigeren Fertigung [ 3\_ ].
- . Einrichtung einer (Klein-)Serienfertigung und zugehöriger Meß- und Prüfverfahren, insbesondere für Mischoxidkeramik und Brennstäbe;
- . Ausarbeitung von Betriebsvorschriften für Brennelemente, Verfolgung des Bestrahlungsablaufs sowie Erarbeitung von Untersuchungsmethoden an bestrahlten großen Elementen;
- . den Betrieb mit Brennstabfehlern als zwar unerwünschtes, aber nicht unnormales Betriebsereignis [ 4\_ ].

Wir können zwar noch nicht große Zahlen bestrahlter Brennstäbe vorweisen, aber wir können für uns in Anspruch nehmen, daß unsere Arbeit unter den realen Bedingungen einer ständigen Wechselwirkung mit kritischen Kunden, Betreibern, Herstellern und Behörden abläuft.

## 2. Charakteristika der KNK-Pu-Elemente

Der KNK-Kern enthält 7 Elemente mit  $\text{PuO}_2\text{-UO}_2$ -Brennstoff und 22 Treiberelemente mit  $\text{UO}_2$ -Brennstoff (Abb. 1). Das Uran beider Elementtypen ist in U-235 angereichert. Die Elementlänge beträgt 2253 mm (KKW Kalkar: 3700 mm).

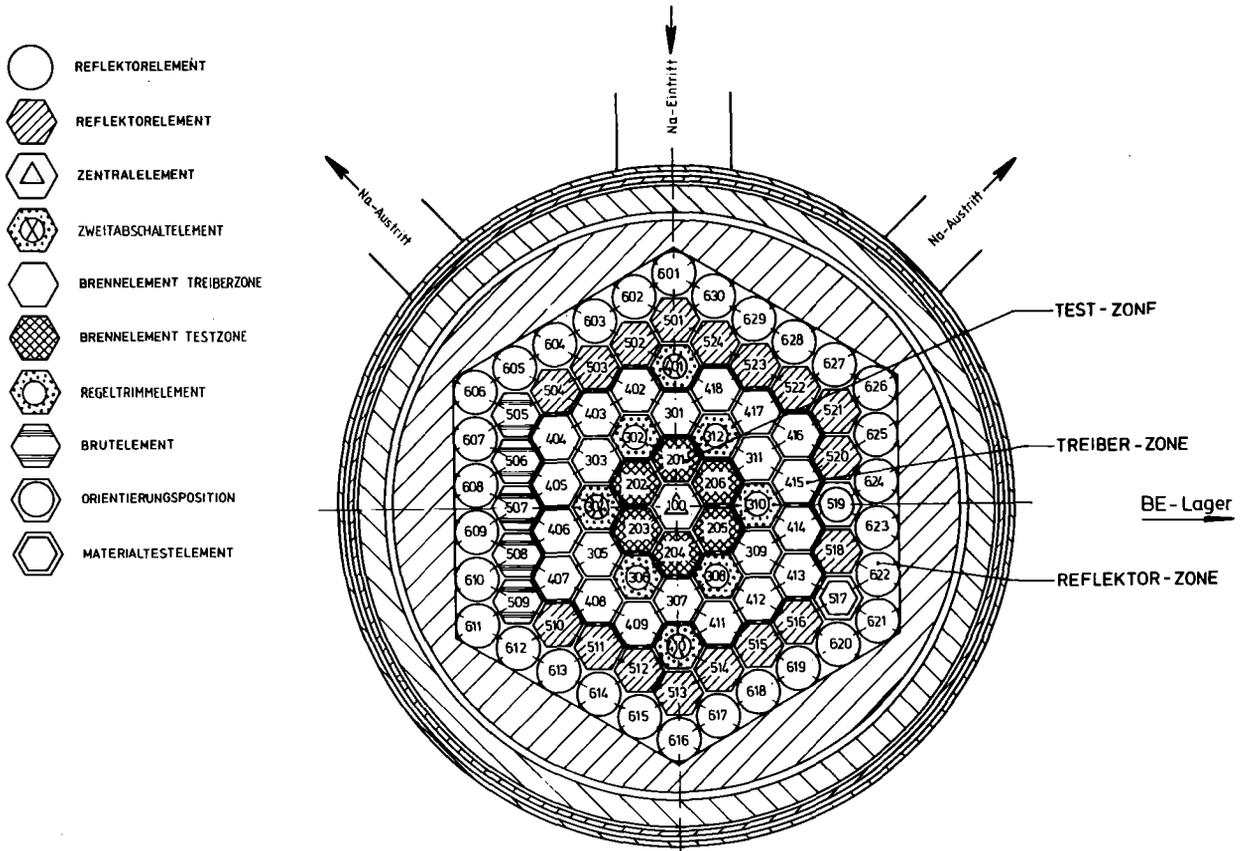


Abb. 1: Kernquerschnitt KNK-II

Die Elemente der Pu-Zone sind in ihrem Querschnitt typisch für die Erstbeladung des KKW Kalkar, es werden verschiedene Gitterabstandhaltertypen eingesetzt (Abb. 2):

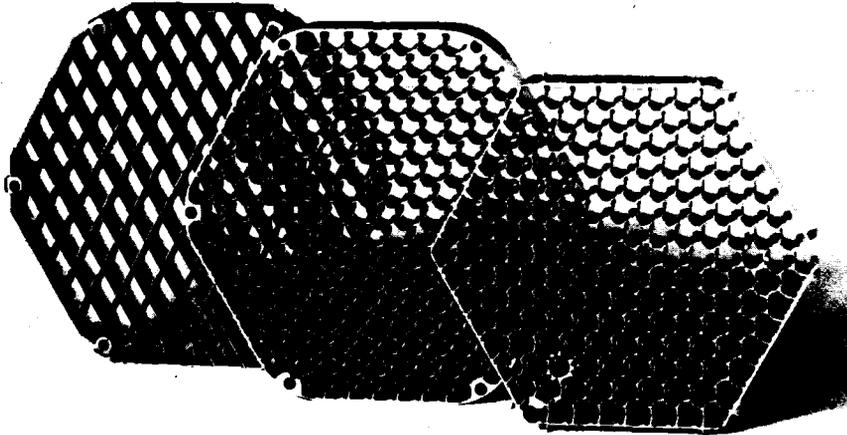


Abb. 2: Gitterabstandhalterttypen der KNK-II, v.l.n.r.:  
- Gitter für die Treiberzonenelemente,  
- funkenerodiertes Gitter für die Kranzelemente der Testzone, mit 6 Strukturstabpositionen;  
- funkenerodiertes Gitter für das Zentralelement der Testzone, mit 3 inneren Strukturstabpositionen.  
Querschnitt, Gitterteilung und Strukturstabposition entsprechen genau KKW Kalkar, 1. Kern

Für die Kernladung KNK II/2 werden neuartige Abstandhalterkonfigurationen verwendet: neben einem Wendeldrahtelement sind es im übrigen Gitterabstandhalter mit Strömungsleitblechen, Abb.3:

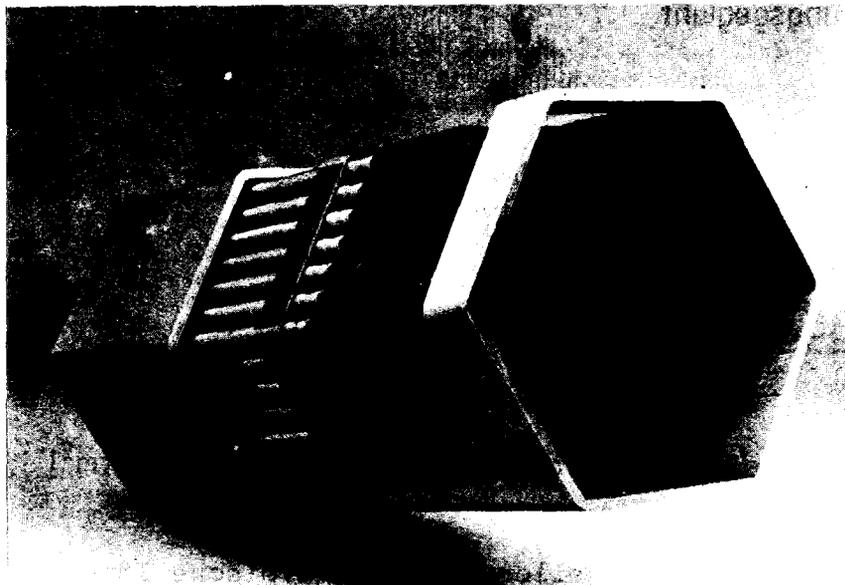


Abb. 3: Funkenerodierter Gitterabstandhalter mit Strömungsleitblechen für die 2. Beladung der KNK-II.

Ebenfalls aus dem Brennelement-Entwicklungsprogramm hergeleitet ist der Einsatz unterschiedlicher Hüllrohrmaterialien, wobei die Unterschiede bestehen können in der chemischen Zusammensetzung, der thermo-mechanischen Behandlung und dem Hersteller. Nun bedingen die Kerngröße und der hohe Anteil an U-235, daß bei gleichem Abbrand die in der KNK erreichte schnelle Neutronendosis grob um den Faktor 2.4 kleiner als im SNR-300 ist, ein Verhältnis wie es auch z.B. zwischen Rapsodie und Phenix besteht.

Was bedeutet das für das Bestrahlungsverhalten der Hüllrohre bzw. der Strukturmaterialien generell ? Die Graphik (Abb. 4) zeigt, daß in der KNK Schwellenaufweitungen, wie sie im Kern des SNR-300 erwartet werden, an lösungsgeglühten Materialien erreicht werden können, d.h. es ist dies die Art eines "diagnostic experiment".

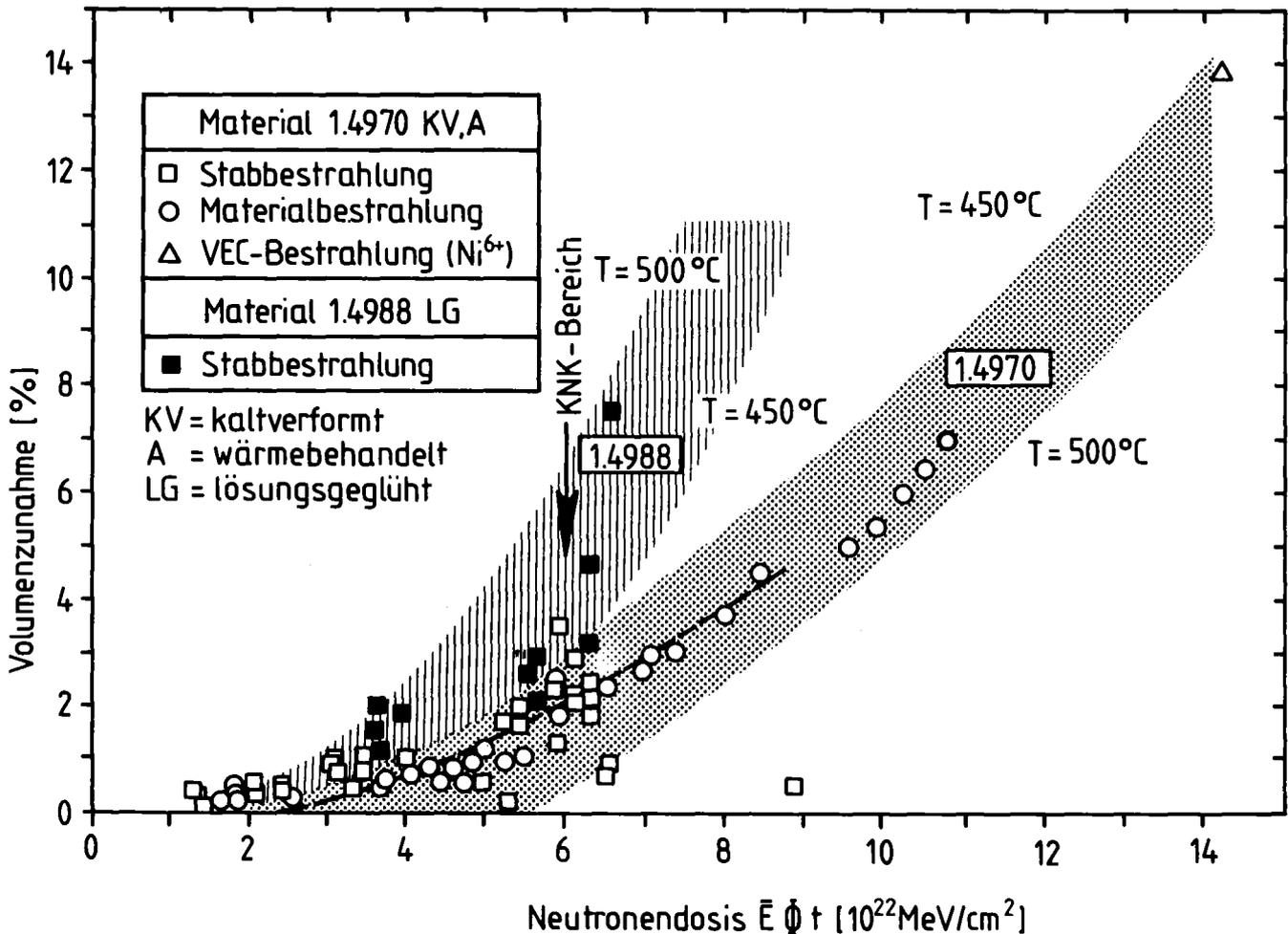


Abb. 4: Erwartetes Schwellen für zwei typische lösungsgeglühten und kaltverformte Hüllrohrmaterialien der KNK-II.

Die Beanspruchung der Kästen durch neutroneninduziertes Schwellen und Kriechen ist geringer, aber für Betriebsvorgänge ist dies sicher vorerst eine erwünschte Erleichterung. Andererseits ist die Beanspruchung der Brennstabhüllen bei hohen Abbränden vergleichsweise höher durch mechanische Wechselwirkung des Brennstoffs mit der wenig schwellenden Hülle.

### 3. Betriebsverlauf und erreichter Element-Abbrandzustand

Aus unterschiedlichsten Gründen erfolgten im Betrieb der KNK Betriebsunterbrechungen oder wurden solche vorgenommen. Immerhin konnte zweierlei gezeigt werden (Beispiel: Betrieb 1980, Abb. 5):

- . der kontinuierliche Dauerbetrieb über mehrere Wochen;
- . der Weiterbetrieb der Anlage mit einem Brennstabdefekt und der daran anschließende Brennelementwechsel.

Wahrscheinlich waren wir beim Weiterbetrieb immer noch zu vorsichtig; weiterhin müßte die Schadenslokalisierung in einer großen Anlage rascher erfolgen. Man sollte aber ganz nüchtern feststellen, daß dies ein wesentlicher Erfahrungsgewinn ist, der nur an einer Maschine wie der KNK zu gewinnen ist, und nicht durch Papierstudien und Laborversuche erreicht werden kann.

Sowohl die langen Perioden des Dauerbetriebes bei 100 % Last als auch die bisher erreichten Abbrände zeigen, daß die beiden aufgetretenen Brennstabfehler (zwei Elemente mit je einem defekten Stab) keine systematische Ursache haben können.

Welchen Abbrandzustand haben wir bisher erreicht ?

Von den neun bisher eingesetzten Brennelementen haben fünf einen wegen der für die Testzone sehr flachen Leistungsverteilung nahezu identischen Spitzenabbrand in Kernmitte zwischen 64.000 und 65.000 MWd/t<sub>SM</sub> erreicht, d.h. insgesamt  $211 \times 4 = 844 + 166 = 1010$  Brennstäbe haben dieses Abbrandniveau.

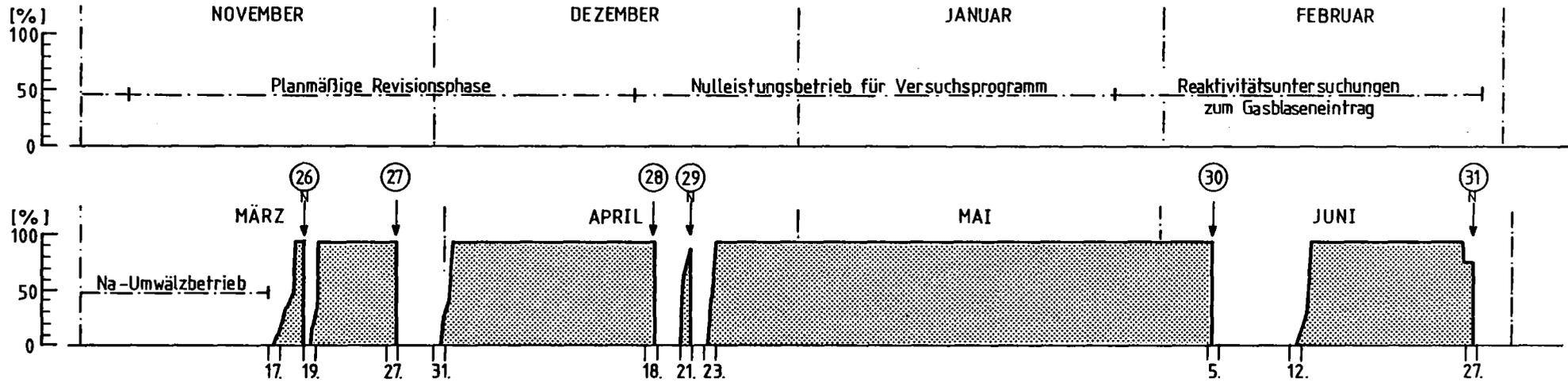
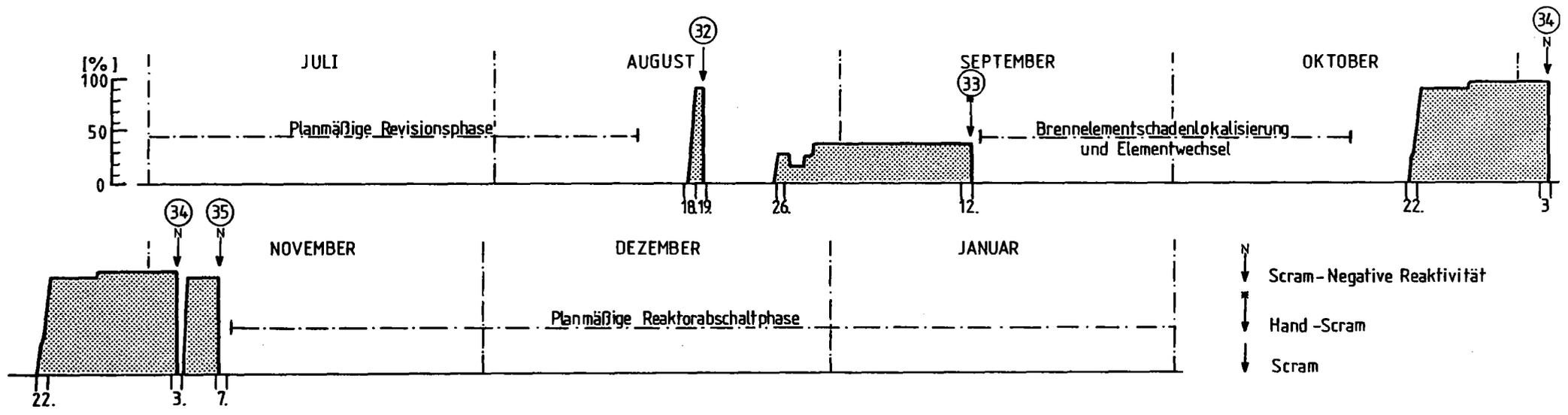


Abb. 5:

# KNK II/1 BETRIEBSDIAGRAMM 1980



Typische Einzeldaten zum Zeitpunkt 27.08.1981 (planmäßige Abschaltung):

		KNK II/1	Vergleich SNR-300/ Mk Ia
Vollasttage	VLT	273	-
Abbrand +)	at/o	6,9	-
	MWd/kgSM	65,0	65,0
Neutronendosis +)	n/cm <sup>2</sup> ( 0.1 MeV)	4.5.10 <sup>22</sup>	11.10 <sup>22</sup>
Materialbeanspruchung +)	dpa-NRT	20	53
	dpa-F	30	80
zu erwartendes Schwellen +) 1.4970, 450°C	$\Delta V/V$ %	0,3	2,5

+)

maximaler Stababbrand in Kernmitte  
NRT = M.J. Norgett, M.T. Robinson, I. Torrens

Der Leistungsbetrieb wurde am 28.10.1981 nach Auswechseln eines Absorberbündels wieder aufgenommen.

#### Literaturverzeichnis

- [1] J. Höchel, H. Mayer: Entwicklung und Betrieb von Brennelementen für natriumgekühlte Brutreaktoren in Deutschland. Atomkernenergie - Kerntechnik, Bd. 36 (1980), S. 264 - 270.
- [2] P. Verbeek, H. Többe, N. Hoppe, B. Steinmetz: Liquid - Metal Fast Breeder Reactor Fuel Rod Performance and Modeling at High Burnup. Nuclear Technology, vol. 39, July 1978 (p. 167-185).
- [3] H. Mayer, B. Steinmetz: Wechselwirkung zwischen Auslegung und Fertigung von Brennstäben am Beispiel KNK. Konf. Charakterisierung und Qualitätskontrolle von Kernbrennstoffen, Karlsruhe, Juni 1981.
- [4] G. Brudermüller et al.: 18 Days KNK-II Operation with a Failed Fuel Element Based on In-Pile Loop Experiments. ANS/ENS Topical Meeting on Reactor Safety Aspects of Fuel Behaviour, Sun Valley (ID), USA, Aug. 1981.

Das Referenzkonzept  
zur Entsorgung der KNK II

G. Schnetgöke

Kernforschung Karlsruhe GmbH  
Projekt Schneller Brüter  
7500 Karlsruhe 1, Postfach 3640  
Bundesrepublik Deutschland

Zusammenfassung

Das Referenzkonzept der KNK-Entsorgung bietet die vom Gesetzgeber geforderte Vorsorge. Nach diesem Konzept lagern die abgebrannten Brennelemente ca. 9 bis 12 Monate zur Abfuhr der Nachzerfallswärme in dem KNK-eigenen BE-Lager, bevor sie in einem Waschvorgang von anhaftendem Natrium gereinigt und in speziellen BE-Büchsen verpackt werden. Die beladenen Büchsen werden zum MZFR transportiert, dessen Brennelementlager zur Aufnahme von zwei KNK-II-Kernladungen umgerüstet wird. Durch dieses Zwischenlager werden die Wartezeiten zwischen der Ausladung der Elemente aus der KNK und der Vereinzelung in den Heißen Zellen überbrückt. Nach der Vereinzelung werden die Brennstäbe in Brennstab-Büchsen verpackt, die sich im Aufbau und in der Geometrie von der BE-Büchse wesentlich unterscheiden. Nach einer erneuten Zwischenlagerung der zerlegten Brennelemente im MZFR werden zwei Kernladungen 1986 nach Marcoule transportiert und wiederaufgearbeitet. Die Rückführung der Produkte erfolgt in Form von Pu-Oxyd und Uranyl Nitrat.

Abstract

The reference concept of the KNK back end fuel cycle ensures the provisions required by the legislator. According to this concept the spent fuel subassemblies are stored in the KNK subassembly storage facility for about 9 - 12 months in order to remove the decay heat before they are freed from the attached sodium in a scrubbing step and subsequently packed into special subassembly cans. The loaded cans are transferred to the MZFR reactor whose fuel subassembly storage facility is being modified in order to be capable of accepting two KNK-II core charges. By this intermediate storage facility the waiting periods are bridged between the withdrawal of the subassemblies from KNK and the singulizing in the Hot Cells. After singulization the fuel rods are packed into fuel rod cans which differ greatly from the subassembly cans as regards their geometry. Following another intermediate storage of the dismantled subassemblies in the MZFR reactor two core charges will be transported to Marcoule in 1986 and reprocessed there. The products will be returned as plutonium oxide and uranyl nitrate.

Nach § 9a Abs. 1 AtG hat derjenige, der Kernkraftwerke errichtet, betreibt, stilllegt oder beseitigt, dafür zu sorgen, daß anfallende radioaktive Reststoffe (und dazu gehören insbesondere die bestrahlten Brennelemente) schadlos verwertet oder als radioaktive Abfälle geordnet beseitigt werden.

Für die Entsorgung eines Kernkraftwerkes ist daher vom Antragsteller und Betreiber rechtzeitig eine ausreichende Vorsorge zu treffen und nachzuweisen.

Diese Vorsorge wurde für KNK durch ergänzende technische Anlagen-Einrichtungen und durch entsprechende Vertragsabschlüsse mit Dritten getroffen.

Das Referenzkonzept der KNK-II-Entsorgung besteht aus folgenden 4 Phasen (s. Abb. 1):

- |     |  |                                    |
|-----|--|------------------------------------|
| dem | - Abklingen                                |                                    |
|     | - Waschen und                              |                                    |
|     | - Einbüchsen der Elemente                  | in der KNK                         |
| der | - Zwischenlagerung                         | im MZFR                            |
| der | - Vereinzelung der Elemente zu Brennstäben | in den Heißen Zellen               |
| und |  |                                    |
| der | - Wiederaufarbeitung des Brennstoffes      | in Frankreich, d.h.<br>in Marcoule |

Zur Entsorgung kommen:

- 1 Zentralelement
- 6 Elemente der Kranzzone
- 22 Elemente der Treiberzone
- 5 Brutelemente
- 5 Absorber der Regeltrimmstäbe
- 3 Absorber der Zweitabschalteinrichtung

---

42

Im normalen Betriebsablauf, d.h. ohne BE-Schaden, werden die Brennelemente nach Erreichen des Zielabbrandes von (355 VLT) aus dem Reaktor genom-

men und im KNK-eigenen Brennelement-Lager abgesetzt zum Abklingen der Strahlung und Nachzerfallswärme.

Das BE-Lager befindet sich im Sicherheitsbehälter, wodurch die Elemente vor Einwirkungen von außen geschützt sind. Es ist zur Abfuhr der Nachzerfallswärme mit Natrium gefüllt und besitzt in einer drehbar gelagerten Kassette 53 Positionen für die auszubauenden Kernelemente (s. Abb.2).

Die Lagerung der Brennelemente im BE-Lager ist eine betriebliche Notwendigkeit, die:

- die verzugsfreie Entladung des Reaktorkerns ermöglicht,
- die erforderliche Abklingzeit für die weitere Handhabung der abgebrannten Brennelemente sichert, und
- die notwendige Flexibilität bei unvorhersehbaren Ereignissen während des Abtransportes oder der Weiterbehandlung im Rahmen des Brennstoffkreislaufes herstellt.

Nach etwa 9 - 12 Monaten Abklingzeit erfolgt der Transport vom Brennelementlager zur Na-Waschanlage, in der die Elemente von anhaftendem Natrium gereinigt werden.

Zum anschließenden Einbüchsen der Elemente in -dichte Büchsen sind 3 Komponenten erforderlich (s. Abb.3):

- die KNK-interne Brennelementtransportflasche
- die Einbüchsstation und
- der Transportbehälter.

Alle 3 Komponenten (Einzelgewicht ca. 20 t) werden zu einem ca. 12 m hohen Einbüchsturm zusammengebaut, der auf einer Lastverteilerplatte steht.

Die Lastverteilerplatte dient zur Begrenzung der spezifischen Bodenbelastung in der LKW-Schleuse und zur Aufnahme und Positionierung des Transportbehälters in Verbindung mit der Einbüchsstation. Die Tragkonstruktion enthält außerdem eine Teleskopspindel-Hubanlage für den Beladevorgang der BE-Büchse, d.h. zum axialen Verschieben der BE-Büchse im Transportbehälter.

Die Brennelementtransportflasche zählt zu den genehmigten Betriebseinrichtungen der KNK und damit nicht zu den neuen Komponenten der Entsorgung.

Die Einbüchsstation besteht im wesentlichen aus einer Kammer mit einer entsprechenden Abschirmung und einem Schließmechanismus für die BE-Büchsen.

Der Transportbehälter (Henschelflasche, H.Fl.) übernimmt:

- den Transport der KNK-Brennelemente auf dem Gelände des Kernforschungszentrums und
- über ein Vielnutprofil in der zentrisch angeordneten Beladebohrung die Halterung der Brennelement-Büchse während des Einbüchsvorganges.

Die Brennelement-Büchse ist ca. 2,5 m lang und hat im Schaft einen Durchmesser von 154 mm (s. Abb. 4). Der Kopfteil ist verstärkt und besitzt u.a. ein Außenvielnut-Profil, das in das Profil des Transportbehälters und der Schleusstation eingreift und damit eine Verdrehsicherung bildet. Die Abdichtung der BE-Büchse wird über einen Deckel mit Bajonettverschluß und einer Metalldichtung erreicht.

Der Büchsenfuß besitzt eine Möglichkeit, die Büchse beim axialen Vorschub im Transportbehälter an die Teleskopspindel-Hubvorrichtung anzukoppeln.

Für den Einbüchsvorgang wird der Transportbehälter auf einem Tieflader liegend in die LKW-Schleuse gefahren, geöffnet und mit einer leeren BE-Büchse beladen (s. Abb. 5). Anschließend erfolgt die Montage der Teleskopspindel-Hubvorrichtung an die Lastverteilerplatte. Der Behälter wird aufgerichtet, in die Aufnahmevorrichtung der Lastverteilerplatte gesetzt und gesichert. Dann erfolgt das Aufsetzen der Adapterplatte, der Einbüchsstation und der Brennelementtransportflasche. Nach dem Öffnen der Schieber wird das Brennelement mit dem Flaschenhubwerk in die Büchse abgelassen und die Büchse verschlossen. Die Abdichtung erfolgt über eine Metalldichtung, die über einen Bajonettverschluß plastisch verformt wird. Die so beladene Büchse wird mittels Hubvorrichtung in den Transportbehälter abgelassen und der Drehverschluß des Behälters geschlossen. Nach dem Verschließen aller übrigen Schieber werden die Brennelementtransportflasche,

die Einbüchsstation und die Adapterplatte abgehoben und abgestellt. Der geschlossene Transportbehälter wird aus der Lastverteilerplatte gehoben, auf dem Tieflader abgesetzt und in die horizontale Lage geschwenkt. Nach der erforderlichen Strahlenschutzprüfung wird der Transportbehälter zum MZFR gefahren und dort im BE-Lagerbecken unter Wasser entladen. Die Elemente werden in Lagergestelle mit insgesamt 70 Positionen abgesetzt.

Nachdem eine Kernladung im MZFR zwischengelagert ist, kann die vom Wiederaufarbeiter geforderte Vereinzelung der Elemente in den Heißen Zellen beginnen.

Die gebüchsten Elemente werden mit dem Transportbehälter (H.F1.) zu den Heißen Zellen und hier mittels einer Schleusstation in die Zelle 1 der Heißen Zellen transportiert (s. Abb. 6). Die Schleusstation besteht im wesentlichen aus einer fahrbaren Kammer mit Kugelverschluß und einem Rohr, das durch die geöffnete Drehschleuse in der Strahlenschutz-Tür der Zelle 1 hindurchragt und im vorderen Teil eine nach dem Doppeldeckel-Prinzip arbeitende Vorrichtung zum Öffnen und Schließen der BE-Büchse besitzt. Hinter der Schleusstation wird der beladene Transportbehälter (H.F1.) positioniert. Nach dem Öffnen der Kugelverschlüsse wird die BE-Büchse durch ein zuvor anmontiertes Spindelhubwerk am Ende des Transportbehälters bis in den Bereich des Doppeldeckelsystems geschoben. Beim Öffnen wird der BE-Büchsenkörper gegen den feststehenden Büchsendeckel verdreht. Nach dem Öffnen wird das Element mit Hilfe eines Manipulators in die Zelle gezogen und zerlegt.

Ein besonderes Problem stellte die Forderung des Wiederaufarbeiters dar, die vereinzelt Brennstäbe in verschweißten Phénix-Büchsen anzuliefern. Dieser Büchsentyp ist durch die Abmessungen für die Verpackung der Elemente nicht geeignet, so daß nicht nur zwei unterschiedliche Büchsen vorliegen sondern auch unterschiedliche Handhabungskomponenten zur Verfügung stehen müssen. Aus wirtschaftlichen Gründen werden entsprechende Adapter vorgesehen, die der Schleusstation und dem Transportbehälter die größere BE-Büchse vortauschen.

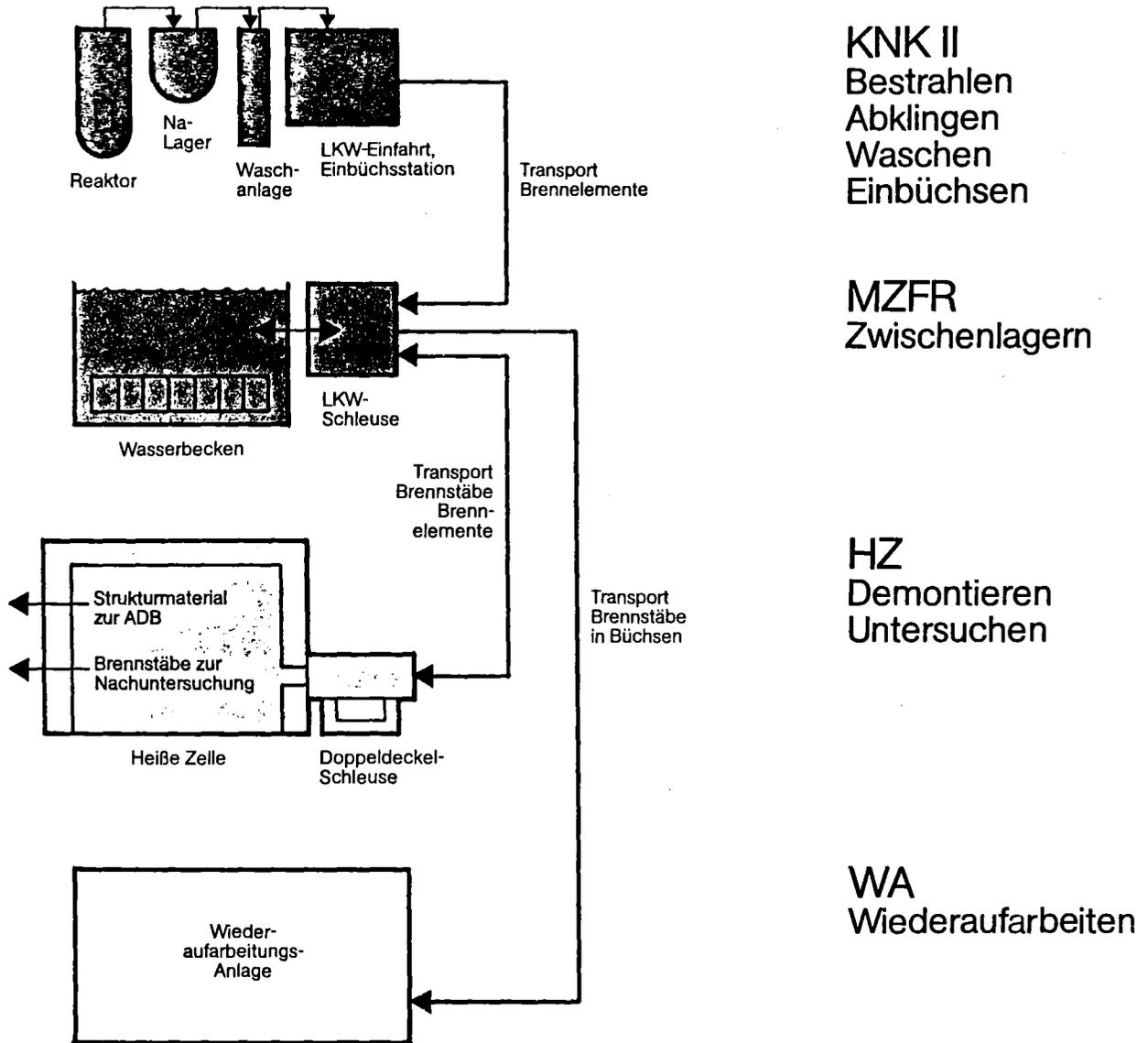
Nachdem das Element der Büchse entnommen wurde, wird die Schleusstation zurückgefahren, die Element-Büchse entfernt und gegen eine Stab-Büchse

Marke Phénix einschließlich Adapter ausgetauscht. Nach dem Beladen mit Brennstäben wird die Büchse in Schweißposition gebracht, der Deckel verschweißt, die Büchse mit den Adaptern mittels Hubspindelvorrichtung in den Transportbehälter gezogen und nach dem Verschließen des Behälters zum MZFR gefahren (s. Abb. 7). Im BE-Lagerbecken wird der Transportbehälter entladen.

Nach der Zerlegung werden die Brennstäbe in dieser Form bis 1986 zwischengelagert. Zu diesem Zeitpunkt ist die Wiederaufarbeitung von 2 Kernladungen in Marcoule geplant.

Die Auflösung des Brennstoffes erfolgt in dem noch im Bau befindlichen Headend TOR 1, das zum gegenwärtigen Zeitpunkt zu 75% fertiggestellt ist. (s. Abb. 8) 1984 wird die Anlage den heißen Betrieb aufnehmen. Die Extraktion wird in der angrenzenden Anlage SAP und die Konversion von Pu-Nitrat in Pu-Oxyd in der Cogema-Anlage UP 1 vorgenommen. Alle drei Anlagen liegen auf dem gleichen Betriebsgelände in Marcoule. Die Anlieferung der vereinzelt Stäbe aus den ersten beiden Kernladungen muß Anfang 1986 erfolgen, damit der für KNK reservierte Wiederaufarbeitungszeitraum genutzt werden kann.

Der Terminplan zeigt den Zusammenhang zwischen der Bestrahlungszeit der Elemente in der KNK und dem Wiederaufarbeitungszeitraum (s. Abb. 9). Bei einer Anliefermenge von 1.72 t für die ersten beiden Kernladungen und einer Anlagenkapazität von 1 t/Mon. wird der KNK-Brennstoff in ca. 2 Monaten aufgearbeitet sein. Die Rückführung der Produkte erfolgt in Form von Pu-Oxyd und Uranyl nitrat. Der Vertrag mit dem CEA, der außerdem eine Option für die Rücksendung des Wastes vorsieht, hat durch die Unterzeichnung der französischen und bundesdeutschen Regierung im August 1981 Gültigkeit erlangt. Der vorgegebene Terminablauf macht die Anlieferung der im Bau befindlichen Komponenten für den Einbüchsvorgang, die Vereinzelung und Zwischenlagerung für Anfang 1983 und die Zerlegung der Elemente in den Heißen Zellen ab Anfang 1984 erforderlich.



## Entsorgung von Brennelementen



Abb. 1

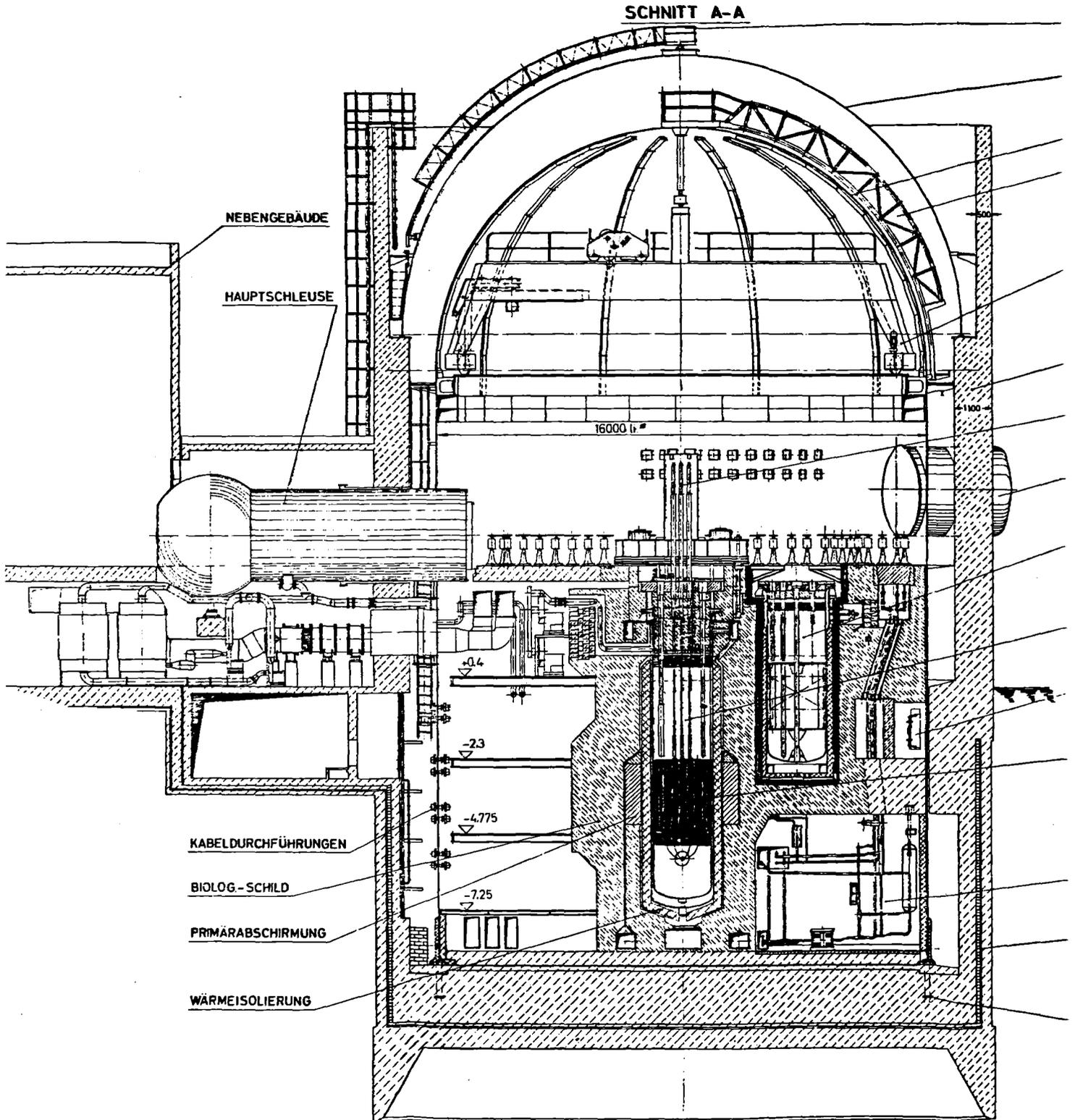
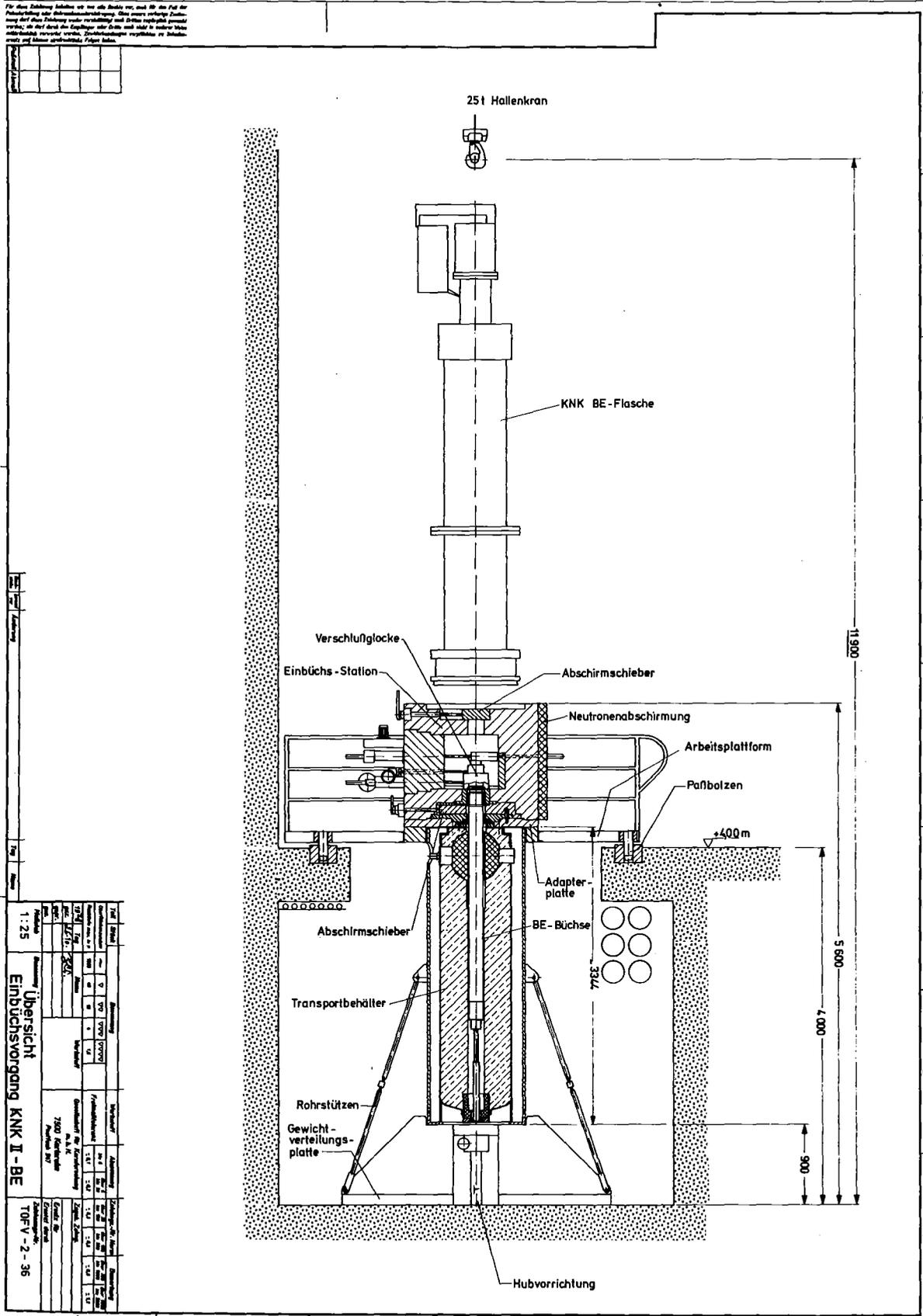


Abb. 2: KNK-Sicherheitsbehälter mit Reaktortank und BE-Lager

Für diese Zeichnung ist die Verantwortung für die Richtigkeit der Darstellung und die Einhaltung der technischen Zeichnungsregeln bei der Ausführung der Arbeit zu übernehmen. Die Verantwortung für die Ausführung der Arbeit ist dem Auftragnehmer zu überlassen. Die Verantwortung für die Einhaltung der technischen Zeichnungsregeln ist dem Auftragnehmer zu überlassen.



1:25		Übersicht Einbüchsvorgang KNK II - BE		TOF V - 2 - 36	
Zeichnungs-Nr.	100	Blatt-Nr.	1	Stand	1950
Proj.-Nr.	7500	Proj.-Namen	7500	Proj.-Namen	7500
Proj.-Namen	7500	Proj.-Namen	7500	Proj.-Namen	7500
Proj.-Namen	7500	Proj.-Namen	7500	Proj.-Namen	7500
Proj.-Namen	7500	Proj.-Namen	7500	Proj.-Namen	7500
Proj.-Namen	7500	Proj.-Namen	7500	Proj.-Namen	7500
Proj.-Namen	7500	Proj.-Namen	7500	Proj.-Namen	7500
Proj.-Namen	7500	Proj.-Namen	7500	Proj.-Namen	7500
Proj.-Namen	7500	Proj.-Namen	7500	Proj.-Namen	7500

Abb. 3

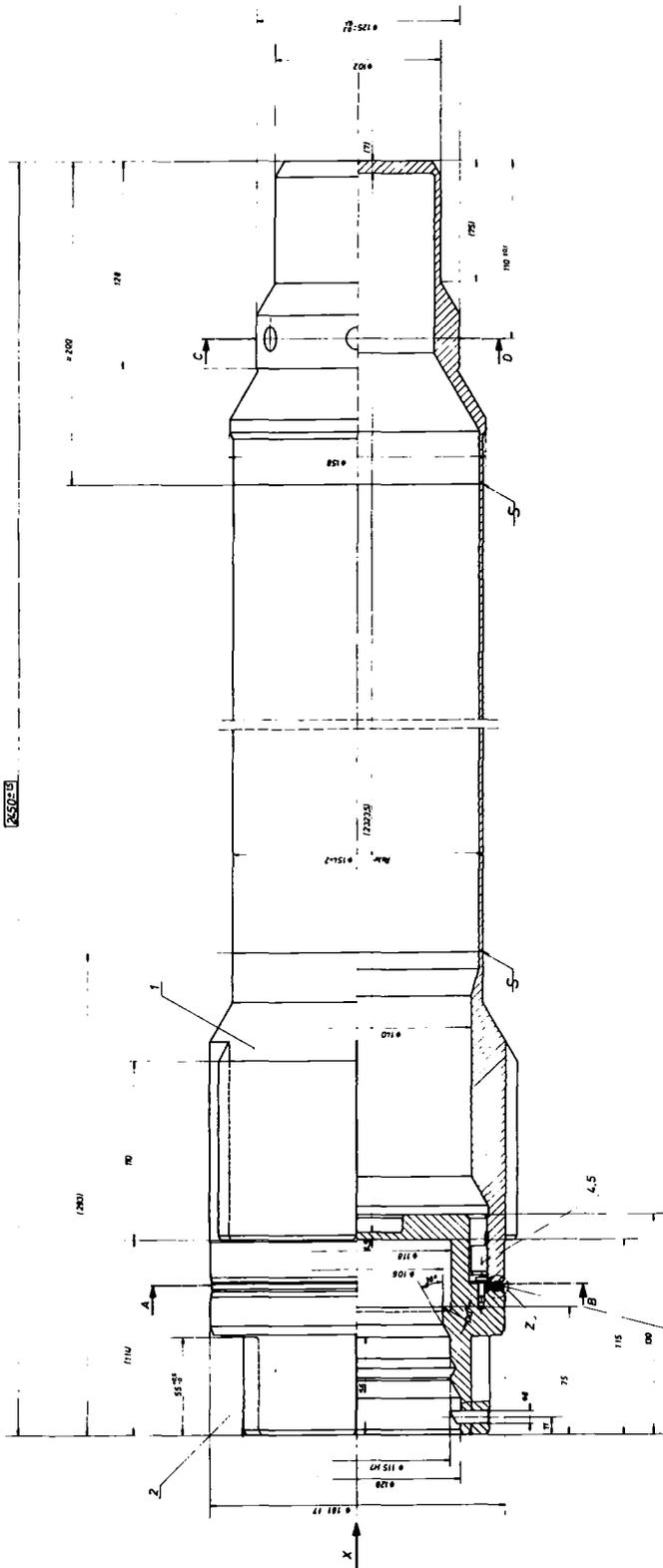
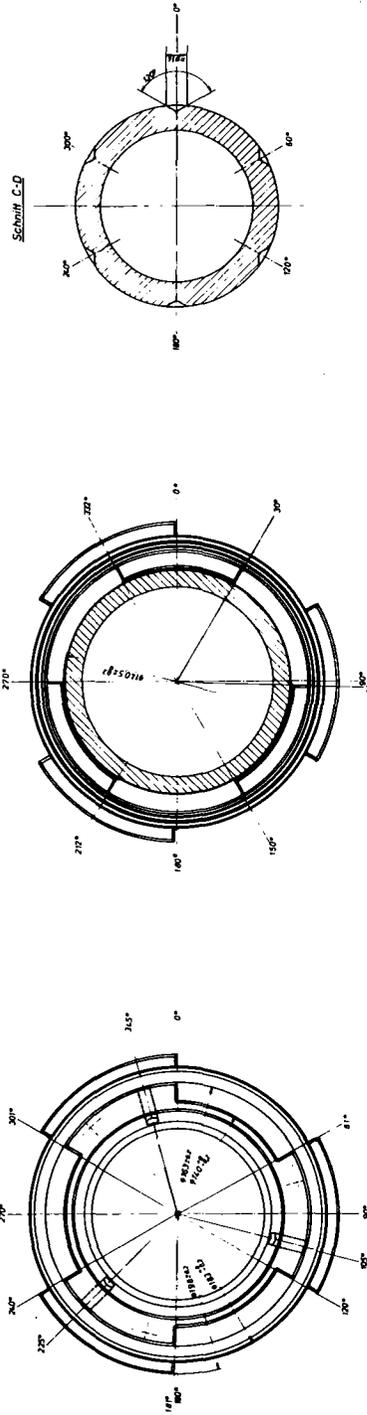


Abb. 4: KNK-II-Brennelement-Büchse

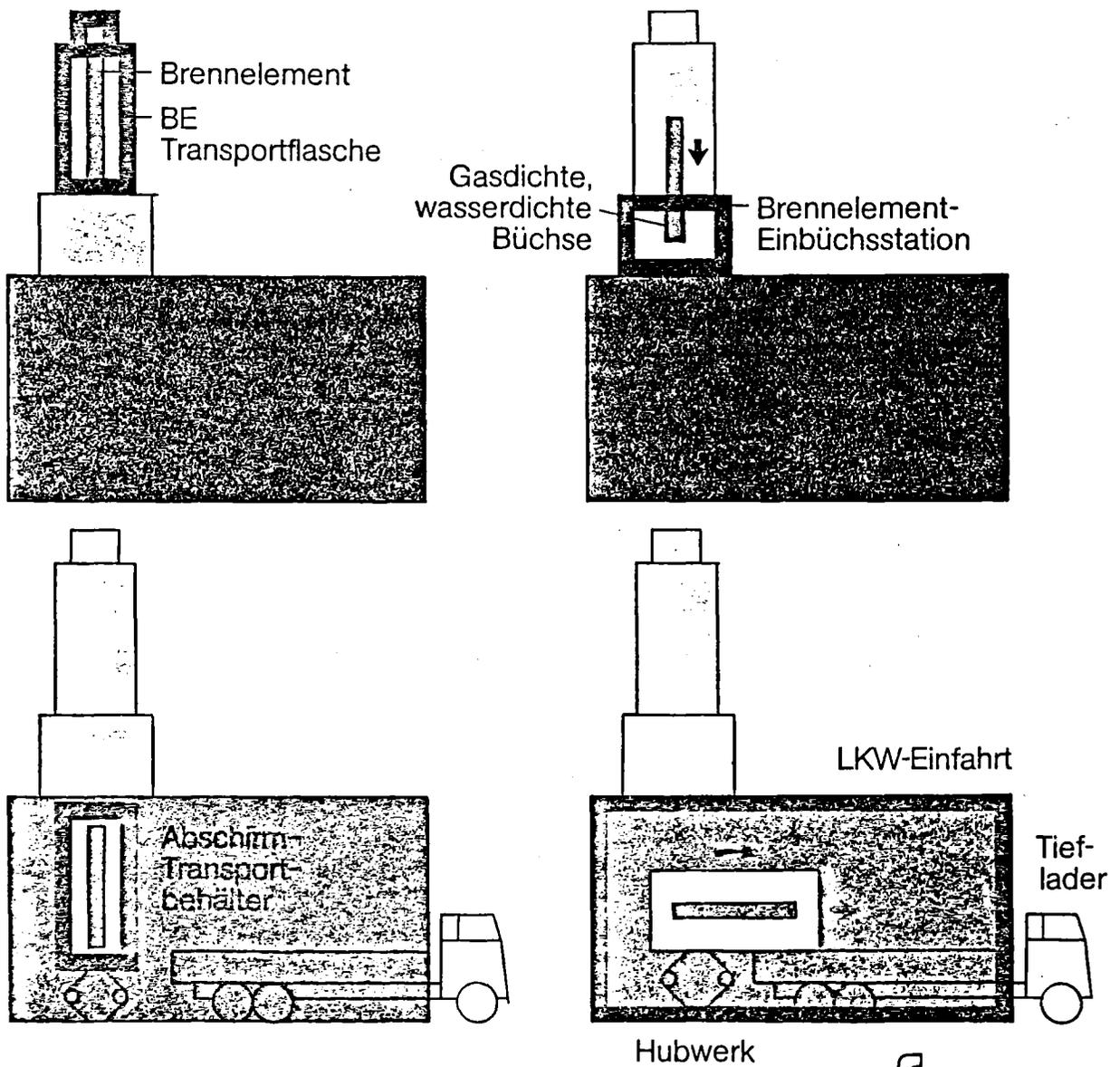


Prüfung und Abnahme nach Spz-Nr. 535-10489  
 Hersteller-Nr. PC 19 231

**NUR ZUR INFORMATION**

Stückliste	71032/1-0001/4	Nr. 7
Gezeichnet	71032/2-0001/3	
Geprüft		
Freigegeben		
Erreichte Stückzahl	Freie	
Bestellnummer	Brennelementbüchse	
Material		
NTG	71032-1/001/4	

Büchse im geschlossenen Zustand  
 (0° Büchse + 0° Deckel)



**Einbüchsen und Abtransport eines Brennelements**



Abb. 5

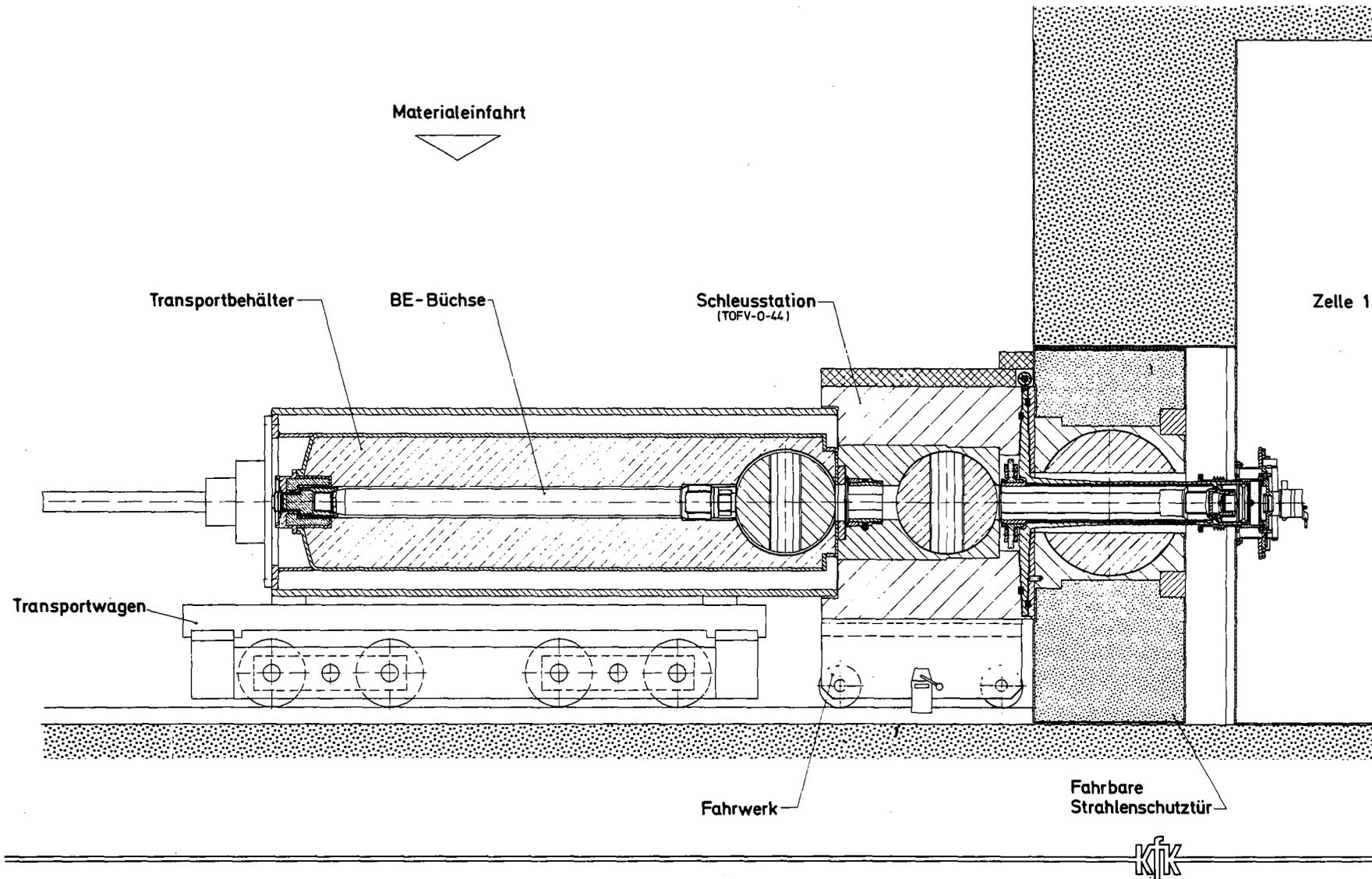


Abb. 6: Anordnung der Schleuskomponenten (M 1:10) zum Einbringen bestrahlter KNK-II-Brennelemente in die Heißen Zellen

TOFV-1-45

2.1.79 80  
2.1.79 80

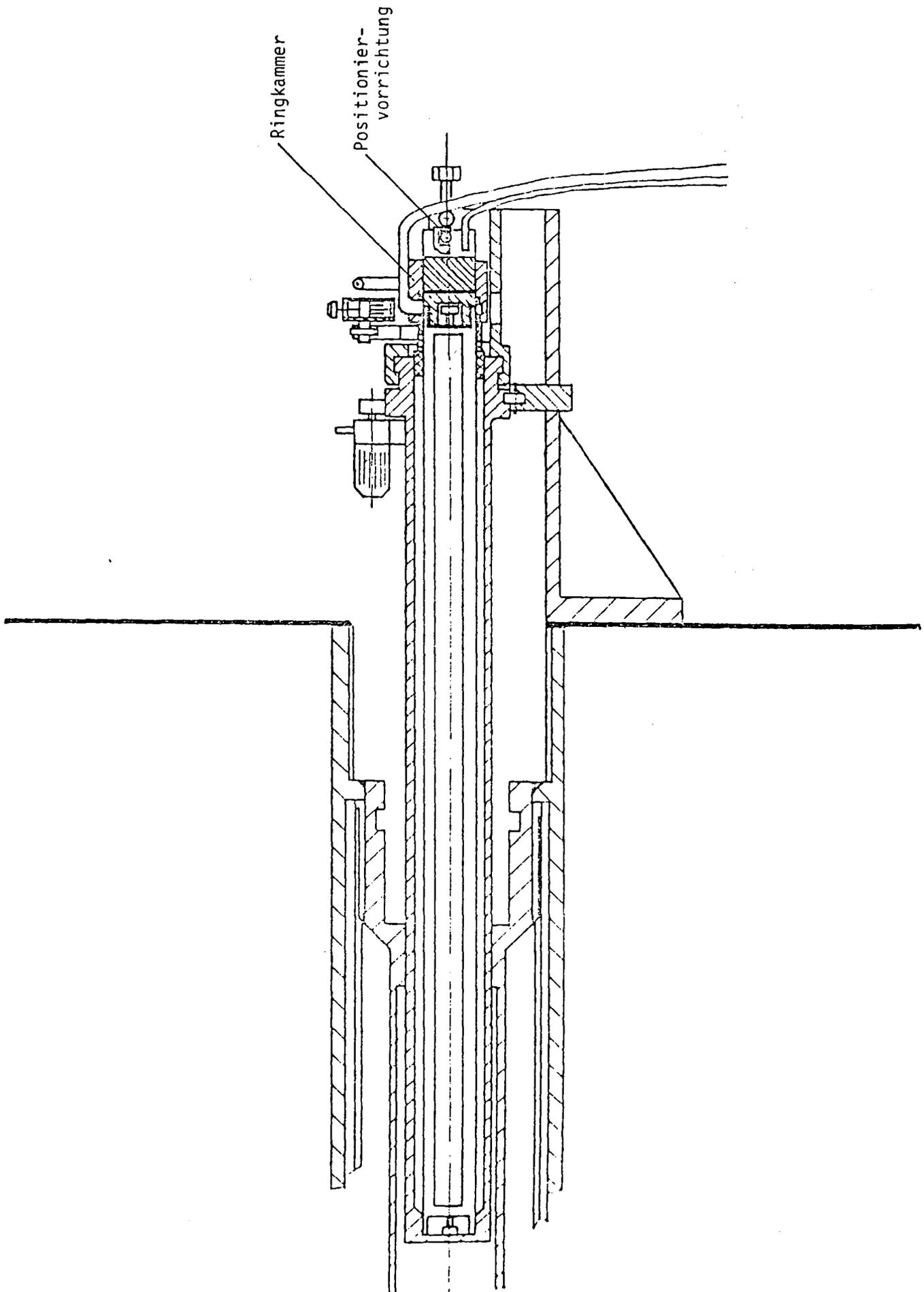
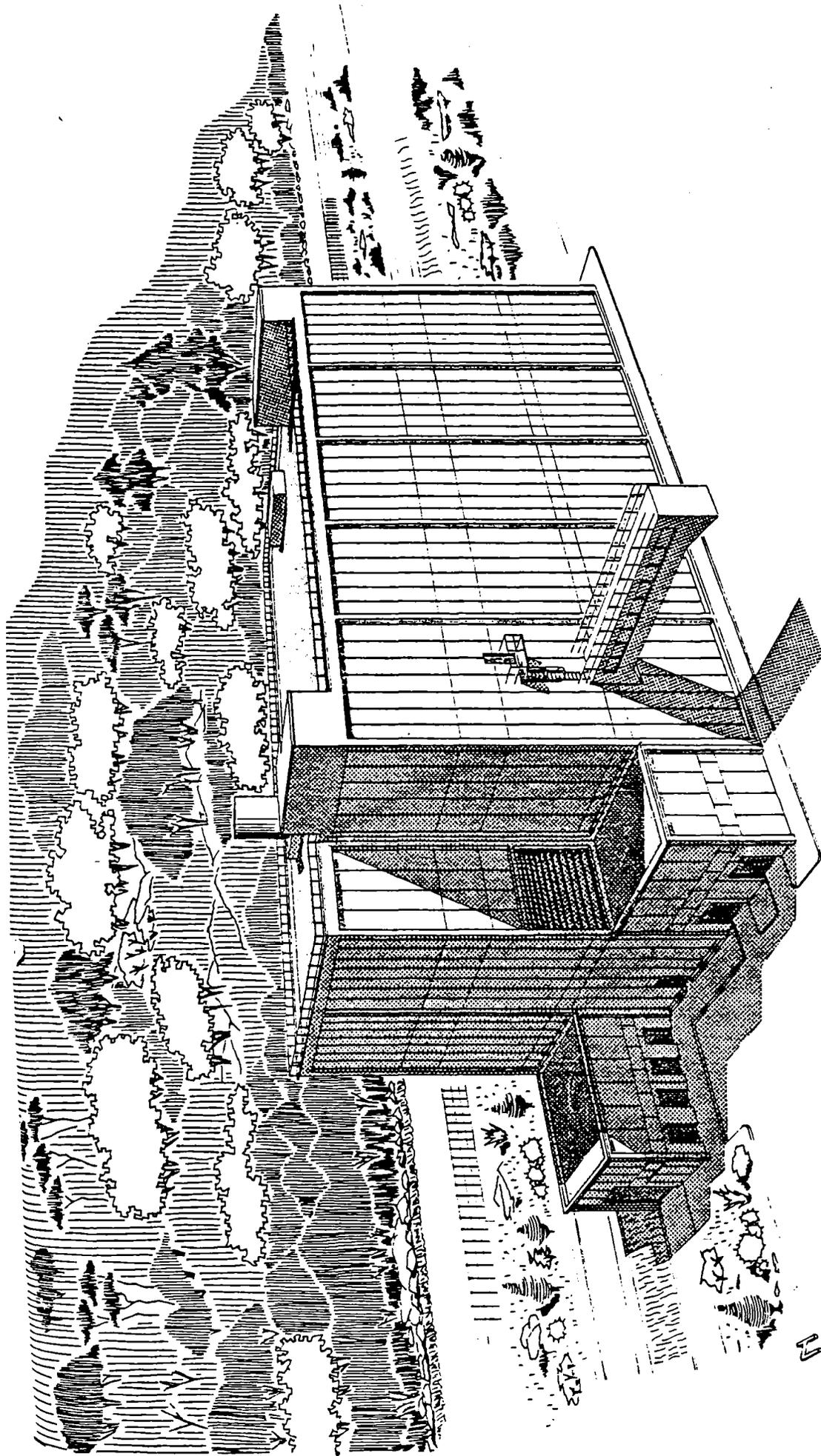
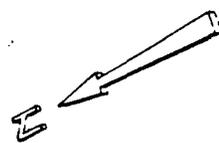


Abb. 7: Schweißvorrichtung für 103 mm-Büchse in den Heißen Zellen



TOR  
Perspective  
TOR

Abb. 8: Wiederaufarbeitungsanlage Marcoule  
Headend TOR 1



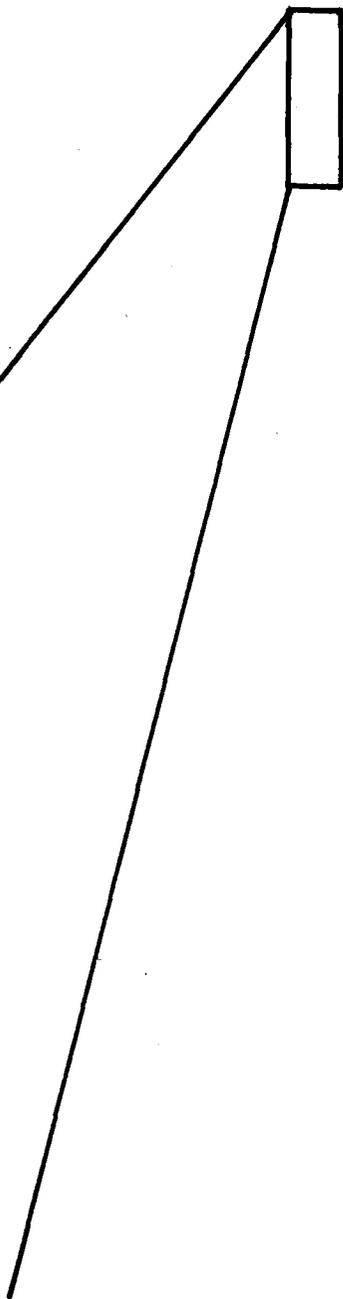


**Bestrahlungszeit**

KNK II / 1

KNK II / 2

KNK II / 3



**Wiederaufarbeitung**



**Terminplan**

## DIE ENTFERNUNG DES NATRIUMS VON BRENNELEMENTEN

K.Ch. Stade, H. Breitländer  
Kernkraftwerk-Betriebsgesellschaft m.b.H.

H.H. Stamm  
Institut für Radiochemie  
Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH

### Zusammenfassung

Zum Entfernen des anhaftenden Natriums von intakten, abgebrannten Brennelementen wurde bei KNK-I das Dampf-Inertgas-Verfahren eingesetzt. 66 Brennelemente (= 2904 Brennstäbe) mit einem mittleren Abbrand von 5800 MWd/t<sub>SM</sub> wurden von Dezember 1974 bis Februar 1975 nach einem Abklingen im Core von 4 bis 6 Monaten nach diesem Verfahren gereinigt. Die Natriumentfernung war vollständig; Brennelementschäden durch den Reinigungsprozeß traten nicht auf.

Zur Natriumentfernung von intakten Brennelementen des KNK-II und des SNR-300 ist das gleiche Verfahren vorgesehen. Obwohl mit dem Reinigen dieser Elemente noch keine Ergebnisse vorliegen, ist bei einer schonenden Prozeßführung nach den Erfahrungen von KNK-I und nach einem notwendigen Umbau der vorhandenen Waschanlage zu erwarten, daß eine ausreichende Reinigung erreichbar ist.

Bisher wurden 2 defekte Brennelemente (Abbrand: 17400 bzw. 48000 MWd/t<sub>SM</sub>) aus dem KNK-II Core entnommen und in den Heißen Zellen des KfK in die Einzelstäbe zerlegt. Eine partielle Entfernung des Natriums durch Abblasen mit heißem Argon erwies sich in diesen Fällen für die anschließende Zerlegung als ausreichend.

### Abstract SODIUM REMOVAL FROM FUEL ELEMENTS

The steam-nitrogen method was used for the sodium removal from undamaged KNK-I fuel elements. 66 fuel bundles (= 2904 fuel pins) with an average burn-up of 5800 MWd/t<sub>HM</sub> were cleaned using this method, four to six months after the final shut-down, during the time from December 1974 to February 1975. The sodium removal was complete; no defects originated from the cleaning procedure.

The sodium removal from KNK-II and SNR-300 fuel without cladding failures will be accomplished by the same process. At KNK-II, the existing plant has to be modified before KNK-II elements may be treated.

So far, two defective fuel elements (burn-up 17400 MWd/t<sub>HM</sub>, and 48000 MWd/t<sub>HM</sub>, respectively) have been removed from the KNK-II core. The limited sodium removal achieved by blowing with hot argon was sufficient for the following dismantling of these bundles in the KfK hot cell laboratories.

## 1. Einleitung

Wenn Brennelemente natriumgekühlter Reaktoren aus dem Kernverband oder aus einem natriumgekühlten Zwischenlager gezogen werden, haften an dem gezogenen Element unterschiedliche Mengen von Natriumresten. Während des Ziehvorgangs müssen die Elemente zur Abfuhr der Nachzerfallswärme (ca. 1,2 bis 5 KW pro Brennelement) gekühlt werden, was im allgemeinen mit einer Inertgasspülung erfolgt. Die nach solchen Spülungen am Element verbleibenden Restnatriummengen betragen bei KNK-I im Mittel  $48 + 15$  g pro Brennelement. Zum Vergleich: Beim japanischen Versuchsreaktor JOYO werden 50-60 g und beim amerikanischen Versuchsreaktor EBR-II 5-40 g pro Brennelement angegeben.<sup>1,2</sup>

Der Wiederaufarbeiter fordert für die ersten drei KNK-II-Kerne eine Zerlegung der abgebrannten Brennelemente in Einzelstäbe und den Antransport in gasdicht verschweißten "Phenix"-Büchsen. Das Zerlegen der KNK-II-Brennelemente erfolgt in den Heißen Zellen der KfK-KTB, nachdem die intakten Elemente zuerst im natriumgekühlten BE-Lager der KNK einige Zeit (z.B. 180 bis 200 Tage bei den Testzonenelementen mit einem Abbrand von ca.  $90\ 000\ \text{MWd}/t_{SM}$ ) weiter abgeklungen sind. Das Zerlegen einer großen Zahl von Elementen bei KTB/HZ und das anschließende, mehrjährige Zwischenlagern in gasdicht verschweißten Büchsen in einem Wasserbecken (KBG/MZFR) erfordern, daß anhaftendes Restnatrium vorher möglichst vollständig entfernt werden muß. "Möglichst vollständig" bedeutet, daß bei Wassereinbruch in die zur Lagerung verwendeten Büchsen keine Gefahr einer Natrium-Wasser-Reaktion besteht und die Wahrscheinlichkeit eines Korrosionsprozesses während der Lagerung der Einzelstäbe (bei KNK-II etwa bis 1986) mit der Folge eines Stabschadens möglichst gering ist.

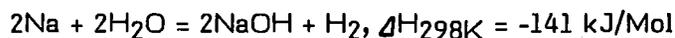
Bei der Natriumentfernung von defekten Brennelementen ist zu beachten, daß dabei die Gefahr eines Brennstoffaustritts möglichst gering bleibt und die Ergebnisse der meist angestrebten Nachuntersuchung solcher Elemente von dem Reinigungsprozeß nicht beeinflusst werden; dies kann u.U. bedeuten, daß auf ein wässriges Verfahren zur Natriumentfernung vor dem Zerlegen in die Einzelstäbe ganz verzichtet werden muß. Der dadurch erhöhte Aufwand in den Heißen Zellen (Schutzgas, größere Zugbeanspruchung beim Ziehen des BE-Kastens,...) ist in diesen Sonderfällen gerechtfertigt.

Die weltweit zur Natriumentfernung von intakten und defekten Brennelementen benutzten Methoden<sup>3</sup> sind in der Abb. 1 zusammengestellt. Sie sind in der Reihenfolge der Häufigkeit ihres Einsatzes genannt. Daraus geht hervor, daß das

Intakte Brennelemente	<p>I. <u>Dampf-Inertgas-Verfahren</u> : Ar oder N<sub>2</sub> (150°C)+ Wasserdampf (1bar, 100-120 °C), Spülen mit Deionat, Trocknen</p> <p>II. <u>Wassersprüh-Inertgas-Verfahren</u> : Wasser durch Düsen feinverteilt +N<sub>2</sub>+CO<sub>2</sub>, Spülen mit Deionat, Trocknen</p> <p>III. <u>Feuchtgas-Verfahren</u> : Ar mit H<sub>2</sub>O gesättigt, Spülen mit Deionat, Trocknen</p>	
Defekte Brennelemente	<p>I. <u>Abblase-Verfahren</u> : Abblasen mit heißem Inertgas (150 - 200°C)</p> <p>II. <u>Vakuumdestillation</u> : Normale oder oszillierende Vakuumdestillation bei 570-650°C und 40-400 Pa (0,3-3torr)</p> <p>III. <u>Flüssigmetall-Verf.</u> : Spülen mit Pb-Bi-Legierung</p>	
KBG	Methoden zur Natriumentfernung von Brennelementen	Abb.1

Dampf-Inertgas-Verfahren derzeit am häufigsten zur Reinigung intakter Brennelemente benutzt wird. Beim Reinigen defekter Brennelemente hingegen gibt es derzeit kein Verfahren, das eindeutig favorisiert wird.

Der Vorteil des Dampf-Inertgas-Verfahrens ist der geringe Zeitbedarf, das fast vollständige Entfernen des Natriums bis auf Reste in engen Spalten (z.B. an Abstandshaltern) und eine Dekontamination der Staboberflächen im Hinblick auf eine spätere, ungebüchste Zwischenlagerung in Wasserbecken. Nachteilig ist die Gefahr lokaler Überhitzungen durch die freiwerdende Wärme der chemischen Reaktion



der Anfall großer Mengen radioaktiven Abwassers und - bei Nichtbeachtung schonender Prozeßführung - die Gefahr von Brennelementschäden durch den Waschprozeß.

Das Wassersprüh-Inertgas-Verfahren (in Frankreich Referenzverfahren) führt zu niedrigen Prozeßtemperaturen, aber auch zu wesentlich längeren Reinigungszeiten (3-4 Tage gegenüber 4-5 h beim Dampf-Inertgas-Verfahren). Der Zusatz von  $\text{CO}_2$  bei dem Sprühverfahren soll das Abwasser neutralisieren und die Bildung von korrosivem Natriumhydroxid an der Reaktionsstelle verhindern. Die Reinigung enger Spalte nach diesem Verfahren wird durch eine  $\text{Na}_2\text{CO}_3$ -Krustenbildung zusätzlich beeinträchtigt. Eine Reduzierung des Abwassermengen wurde nicht beobachtet.

Das Feuchtgas-Verfahren ist ebenfalls eine sehr schonende Methode für den Reinigungsvorgang mit hohem Zeitbedarf. In Verbindung mit einem vorausgeschalteten Abblasen mit Inertgas läßt sich die Reinigungszeit jedoch auf 2-3 h verkürzen und das Verfahren auch für defekte Elemente mit "Leaker"-Schaden (d.h. ohne Natrium-Brennstoff-Kontakt) verwenden.<sup>2</sup>

Allen 3 Reinigungsverfahren ist gemeinsam, daß Natrium aus engen Spalten nur unzureichend entfernt wird.

Die Verfahren zur Entfernung des Natriums von defekten Elementen weisen noch ungelöste Probleme auf. Die Abblase-Methode entfernt das Natrium nicht vollständig. Dies kann ausreichend sein, wenn für anschließende Nachuntersuchungen eine vollständige Entfernung des Natriums nicht notwendig ist. Sollte nach dem Zerlegen eine Entfernung des Restnatriums von einzelnen Stäben gewünscht werden, so kann dies in den Heißen Zellen z.B. durch Abwischen mit einem säuregetränkten Schwamm erfolgen. Die Destillationsmethode<sup>4</sup> ist nur zuverlässig, wenn das benetzte Brennelement sauerstoff- und feuchtigkeitsfrei in den Destillationsbehälter überführt werden kann. Andernfalls muß vor Beginn der Vakuumdestillation der Destillationsbehälter mit frischem Natrium gespült werden. Die Beseitigung des abdestillierten Natriums und die Gefahr einer  $^{137}\text{Cs}$ -Kontamination der Anlage sowie Abgasprobleme machen dieses Verfahren aufwendig. Das Spülen bzw. Einbüchsen der defekten Brennelemente in eine Pb-Bi-Legierung<sup>3</sup> in der Sowjetunion ist nur zum Langzeit-Einschluß gedacht und wird nur der Vollständigkeit halber in Abb. 1 erwähnt.

Die folgenden Ausführungen konzentrieren sich auf den Stand der Technik zur Entfernung des Natriums von Brennelementen im deutschen Projekt Schneller Brüter (PSB).

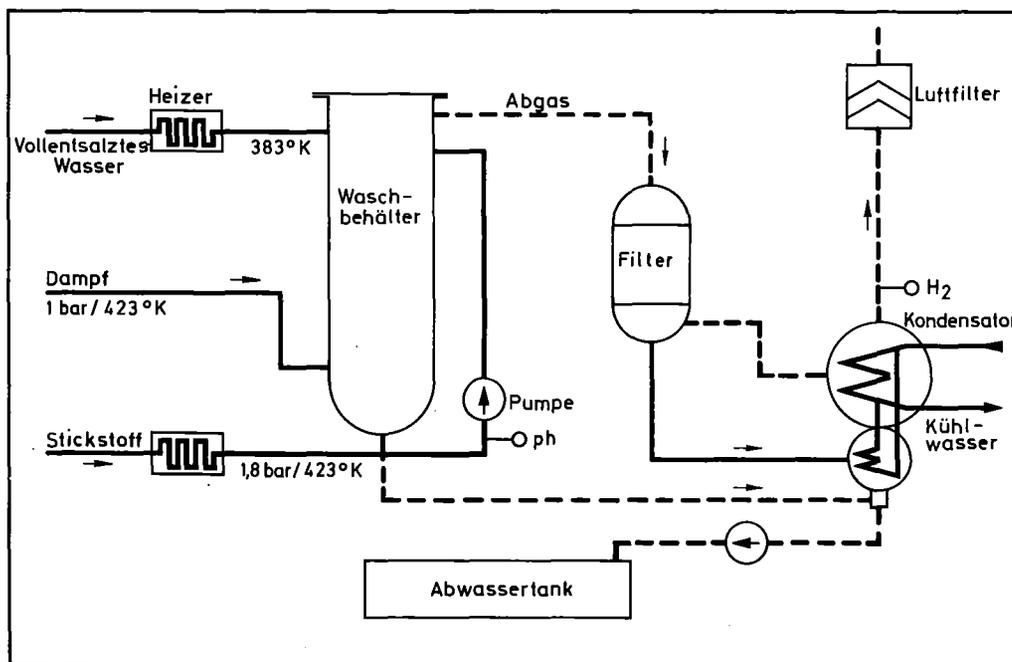


Abb. 2 Schema der KNK-Waschanlage

## II. Natriumentfernung von den KNK-I-Brennelementen

KNK verfügt über eine Waschanlage nach dem Dampf-Inertgas-Verfahren (Abb. 2)<sup>5</sup>. Sie besitzt 2 Waschbehälter, von denen einer mit einem Volumen von 0,65 m<sup>3</sup> nur für das Waschen von Core-Komponenten vorgesehen ist. Pro Waschvorgang kann darin ein Brennelement gewaschen werden. Da bis zum Ende des KNK-I-Betriebes keine schadhafte Brennelemente festgestellt wurden, konnten alle 66 KNK-I-Brennelemente sowie Absorber, Versuchsstopfen und Reflektorelemente nach diesem Verfahren gereinigt werden<sup>6,7,8</sup>.

Gegenüber den derzeitigen KNK-II-Brennelementen hatten die KNK-I-Elemente in Bezug auf die Anwendung der Dampf-Inertgas-Methode folgende Vorteile:

1. Das KNK-I-Brennelement (Abb. 3) bestand aus einem Innenmoderator, 2 Reihen von je 22 ringförmig angeordneten Brennstäben und einem Außenmoderator. Vor dem Waschen wurden Außenmoderator (im Reaktor) und Innenmoderator (in einer Beobachtungsstation) entfernt, wobei ein Teil des anhaftenden Natriums abgeblasen wurde bzw. abtropfte. Das aus Stäben, Abstandshalter,

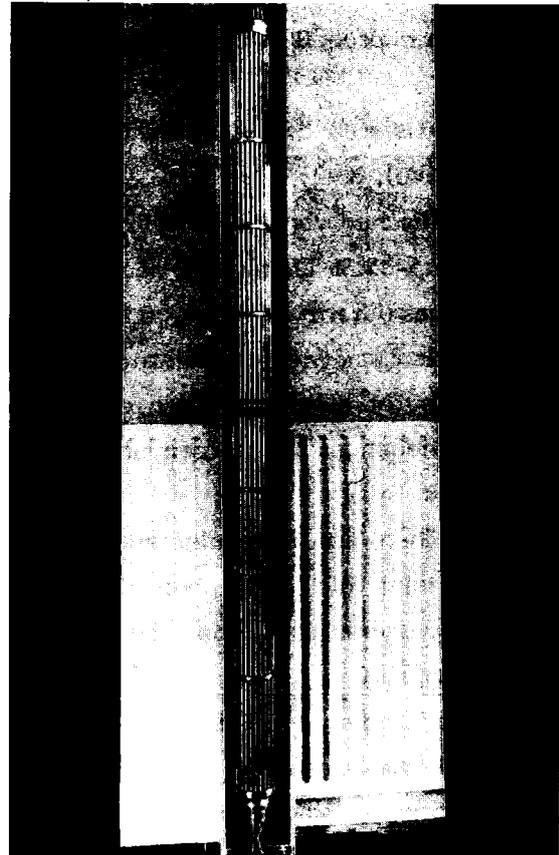


Abb. 3a und 3b

KNK-I-Brennelement

Kopf und Fuß bestehende "Rest"-Brennelement konnte in dem Waschbehälter von allen Seiten in ganzer Länge mit Naßdampf benetzt werden. Die sich bildende Natronlauge lief gut ab; örtliche Überhitzungen durch die Reaktionswärme wurden weitgehend vermieden.

2. Die niedrigen Abbrände der KNK-I-Elemente ( $3800 - 6700 \text{ MWd/t}_{\text{SM}}$ ) verbunden mit entsprechend niedrigem Spaltgasdruck und geringer Versprödung der

Hüllrohre gestatteten den Verzicht auf eine Zwischenlagerung im externen, natriumgefüllten Lager und eine großzügige Prozeßführung in Bezug auf den Ablauf der Dampfphase des Reinigungsverfahrens. Hinzu kam die niedrige Restzerfallswärme von 0,35 kW pro Brennelement.

Der Waschprozeß lief in folgenden Schritten ab:

- A. Inertisieren des Waschbehälters und Aufheizen mit trockenem  $N_2$  auf 150 °C ( $\leq 1$  Vol. %  $O_2$ ).
- B. Zumischen von leicht überhitztem Wasserdampf (3 bar, 180 °C) in 5 Schritten von 5-85 % Dampf und Kontrolle der Reaktion durch Wasserstoffmessung im Abgas (Grenzwert: 0,4 - 0,8 Vol. %  $H_2$ ).
- C. Spülen der Brennelemente mit vollentsalztem Wasser von 80 - 90 °C. "Spülen" bedeutet hier das Füllen des Waschbehälters mit vollentsalztem Wasser, anschließendes Umwälzen und zum Schluß Abpumpen in den Abwassersammel-tank.
- D. Sprühen des Brennelementes mit vollentsalztem Wasser. Mit "Sprühen" ist gemeint ein Absprühen des Elementes bei gleichzeitigem Abpumpen des Abwassers, sodaß das Element während des Vorgangs nicht in das Wasser eintaucht.
- E. Wiederholen des Spülens ("C") bis der pH-Wert des Spülwassers konstant blieb und die Gesamt-  $\gamma$ -Aktivität der letzten Spülwasserfraktion weniger als  $1,85 \times 10^8 \text{ Bq m}^{-3}$  ( $= 5 \times 10^{-3} \text{ Ci m}^{-3}$ ) betrug.
- F. Trocknen des Brennelementes mit warmem Stickstoff.

Mit 2 Elementen pro Tag wurden von Dezember 1974 bis Februar 1975 alle 66 KNK-I-Brennelemente gewaschen. Den Ablauf eines solchen Waschprozesses zeigt Abb. 4.

Alle 2904 Brennstäbe überstanden die Handhabungen und die Natriumentfernung ohne Hüllrohrschaden, sodaß sie in Spezialbehältern der Fa. Transnuklear ohne Kapselung in besonderen Büchsen zur Wiederaufarbeitungsanlage (C.E.A. Marcoule) transportiert werden konnten. Die vertraglich zugesicherte Natriumfreiheit zum Vermeiden einer Natrium-Wasser-Reaktion beim Fluten der Transportbehälter oder bei der Unterwasserentladung wurden eingehalten. Probleme ergaben sich aus der vertraglichen Forderung des Wiederaufarbeiters, u.a. nur dann Brennelemente als einwandfrei anzusehen, wenn die  $\beta$ - und  $\gamma$ -Aktivität des ablaufenden Spülwassers, mit dem die Transportgehälter vor dem Entladen geflutet wurden,  $3,7 \times 10^7 \text{ Bq m}^{-3}$  ( $= 10^{-3} \text{ Ci m}^{-3}$ ) nicht übersteigt. Um dieses Ziel bei möglichst

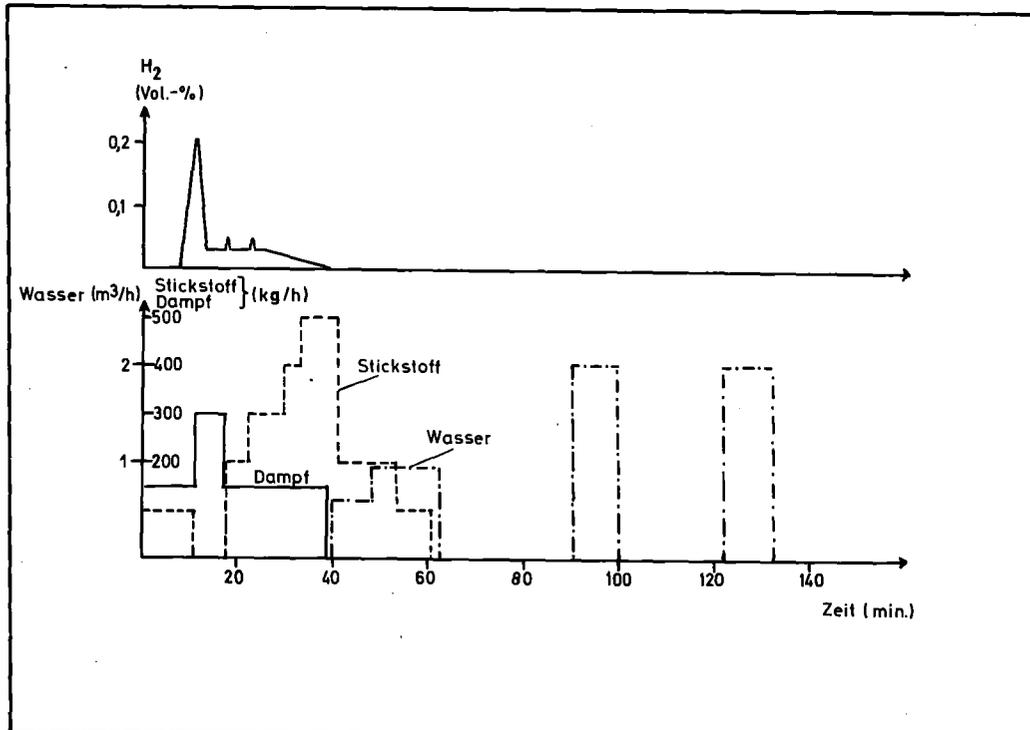


Abb. 4 Ablauf eines KNK-I BE-Waschprozesses

geringem Waschwasserverbrauch zu erreichen, erwies es sich als optimal, nach dem 1. Spülvorgang eine Sprühphase einzuschieben. Trotzdem konnte diese Aktivitätskonzentration auch nach 7 Spülvorgängen nicht unterschritten werden, sodaß im Hinblick auf die Abwassermenge eine untere Grenze der  $\gamma$ -Aktivität im letzten Spülwasser von  $1,85 \times 10^8 \text{ Bq m}^{-3}$  ( $= 5 \times 10^{-3} \text{ Ci m}^{-3}$ ) gesetzt wurde, die es zu unterschreiten galt. Bei 88 % aller Brennelementwaschvorgänge wurde dies nach 3 - 4 Spülvorgängen erreicht. Trotzdem stellte sich heraus, daß die  $\gamma$ -Aktivität des Flutwassers vor dem Entladen an der Wiederaufarbeitungsanlage um den Faktor 10 über den vertraglich spezifizierten Grenzwerten lag.

Ausführliche Untersuchungen von Proben aus allen Waschwasserfraktionen (mehr als 500 Einkanal-Messungen; 550 Gammaspektren mit Ge(Li)-Detektor und Multikanal-Gammaspektrometer) ergaben<sup>8</sup>, daß die Hauptmenge der Aktivität (97,5 %) bequem durch Filtration bereits mit einem Membranfilter von 8  $\mu\text{m}$  Porenweite

entfernt werden konnte, anschließendes Filtrieren durch Membranen geringerer Porenweite ergab weitere Abscheidung in Form eines dünnen, bräunlichen Niederschlages, vermutlich Eisen(III)-hydroxid. Bezog man die Aktivitäten der übrigen Radionuklide auf die Hauptaktivität  $^{182}\text{Ta}$ , so lagen die Nuklide ( $^{51}\text{Cr}$ ,  $^{54}\text{Mn}$ ,  $^{59}\text{Fe}$ ,  $^{58}\text{Co}$ ,  $^{60}\text{Co}$  und  $^{95}\text{Nb}$ ) im stets gleichen Verhältnis vor, unabhängig von der bei der Filtration verwendeten Porenweite der Membranen. Das zeigt, daß alle gefundenen Nuklide an dem amorphen Niederschlag gebunden waren (in der Radiochemie spricht man von "scavenger-Fällung"). Man kann daraus schließen, daß durch einen mechanischen Verfahrensschritt (Filtration, Zentrifugieren) die Hauptmenge der Aktivität abgetrennt werden und die Aktivitätsbeladung des Abwassers wesentlich reduziert werden kann. Die Effektivität dieses Verfahrensschrittes kann gegebenenfalls durch Zusatz von Filterhilfsmitteln weiter erhöht werden.

Die Abwassermenge läßt sich sicher reduzieren, wenn nach den einzelnen Spülschritten länger als (bei KNK-I-Elementen üblich) eine Stunde umgewälzt wird. Da der Behälter  $0,65 \text{ m}^3$  Inhalt hat und die Pumpe einen Maximaldurchsatz von  $1 \text{ m}^3 \text{ h}^{-1}$ , wurde der Inhalt des Behälters noch nicht einmal doppelt durchgesetzt, d.h. das ablaufende Spülwasser konnte noch garnicht homogen (pH, Aktivitäten) sein. Langsam verlaufende Vorgänge wie z.B. die "Hydrolyse" der Oberflächenschichten (Herauslösen von  $\text{Na}(^{22}\text{Na})$  aus den Korngrenzen; Zersetzung von in Na stabilen, gegenüber  $\text{H}_2\text{O}$  aber instabilen Oberflächen-Doppeloxyden,...) waren offenbar in der zur Verfügung stehenden Zeit noch nicht vollständig abgelaufen, sonst hätten in der nächsten Fraktion weder  $\text{Na}(^{22}\text{Na})$ , noch die Aktivierungsprodukte des KNK-Strukturwerkstoffes (1.6770) erneut auftreten können.

### III. Die Entfernung des Natriums von KNK-II-Brennelementen

#### III. 1. Defekte Brennelemente

Bis jetzt traten beim Betrieb mit dem KNK-II-Erstkern 2 Stabdefekte im Bereich der Testzone auf. Beide Elemente (Abbrand zum Zeitpunkt der Core-Entladung: 17400 bzw. 48000 MWd/t<sub>SM</sub>) wurden vor dem Abtransport in die Heißen Zellen der KfK 441 bzw. 275 Tage im natriumgekühlten Abklinglager an der KNK-Anlage zwischengelagert. Das Natrium wurde im Hinblick auf das anschließende Nachuntersuchungsprogramm nur teilweise durch Abblasen mit 180 °C heißem Argon (während des Ziehens aus dem Abklinglager in die KNK-Wechselmaschine) entfernt. Das Abblasen erfolgte ca. 45 Minuten lang mit einer Spülgasmenge von ca. 500 m<sup>3</sup> h<sup>-1</sup>. In den heißen Zellen zeigte sich, daß danach noch Natriumreste sowohl auf der Außenfläche des Hüllkastens als auch zwischen den Stäben im Bereich der Abstandshalter (Abb. 5) verblieben waren.



Abb. 5 Natriumreste an einem KNK-II-Brennelement nach Ziehen des Hüllkastens

Diese Natriumreste erschwerten die Entfernung des Hüllrohrkastens und das Ziehen der einzelnen Stäbe aus dem Waben- bzw. funkenerodierten Abstandshaltern. Soweit die weitere Verwendung einzelner Stäbe, etwa zur Wiederaufarbeitung in der Versuchsanlage MILLI oder für Blockadeversuche der MOL 7 C-Experimente, die weitergehende Entfernung des Restnatriums notwendig machte, erfolgte dies durch mehrmaliges Abwischen mit einem in verdünnter Ameisensäure bzw. verdünnter Essigsäure (pH ca. 2,5) getränkten Schwamm und anschließender Nachbehandlung mit einem wassergetränkten Schwamm. Nach dieser "Schwamm-Methode" konnten 17-18 Stäbe pro Tag gereinigt werden. Diese Methode ist für das Reinigen von Stäben einzelner defekter Brennelemente brauchbar, bei größeren Zerlegungskampagnen jedoch nicht zumutbar.

Es sei noch erwähnt, daß bei INTERATOM Versuche mit Dummy-Elementen zur Natriumentfernung nach der Methode der oszillierenden Vakuumdestillation<sup>4</sup> als mögliche Alternative für die Reinigung von defekten Brennelementen erfolgversprechend durchgeführt wurden. Wegen des hohen apparativen Aufwands und der erfolgreichen Zerlegung der beiden defekten KNK-II-Elemente ohne vollständige Natriumentfernung wird diese Methode für KNK-II im Projekt derzeit nicht weiter verfolgt.

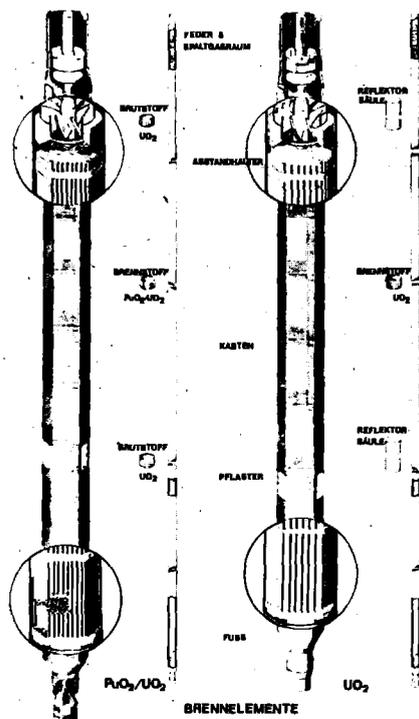


Abb. 6 KNK-II Brennelemente  
der Testzone (links)  
und der Treiberzone  
(rechts)

### III.2 . Intakte Brennelemente

Die Brennelemente der Test- und Treiberzone des KNK-II/1 Cores (Abb. 6) unterscheiden sich in Bezug auf den Prozeß der Natriumentfernung in folgenden Punkten grundlegend von den KNK-I-Brennelementen:

- A. Das Brennelementbündel besteht in der Testzone aus 166 bzw. 211 Stäben und in der Treiberzone aus 102 bzw. 121 Stäben; beide Bündel stecken in einem hexagonalen Hüllkasten. Das Natrium muß entfernt werden, bevor das Abziehen des Hüllkastens und die Zerlegung in die einzelnen Stäbe in den Heißen Zellen beginnt, da die Elemente vor der Zerlegung in mit Al-Ringen gedichteten Büchsen im Lagerbecken des Reaktors MZFR zwischengelagert werden müssen<sup>9</sup>. Da die Ertüchtigung dieses über 15 Jahre alten Lagerbeckens für diese Lagerung bereits genug Probleme aufwirft, müssen Natrium-Wasser-Reaktionen bei einem vom Gutachter unterstellten Undichtwerden der Büchsen absolut ausgeschlossen werden.
- B. Die Testzonenelemente haben Pu-U-Mischoxid als Brennstoff. Schäden durch den Natrium-Wasch-Prozeß oder durch die unterstellte Undichtigkeit im MZFR-Becken bei ungenügender Natriumentfernung können zu einer Pu-Kontamination führen.
- C. Der hohe Abbrand der zu reinigenden Brennelemente (ca. 90.000 - 100.000 MWd/t<sub>SM</sub> für die Elemente der Testzone) verbunden mit hohem Spaltgasdruck und erheblicher Versprödung des Hüllrohrwerkstoffes erfordert einen schonenden Reinigungsprozeß, der jede Gefahr von Schäden durch die Reinigung ausschließt. Außerdem ist die im Vergleich zu KNK-I höhere Restwärme (ca. 2,5 kW pro Brennelement) zu beachten.

Zum Reinigen der intakten Brennelemente steht bei KNK-II nur das beschriebene Dampf-Inertgasverfahren zur Verfügung. Für die mit Hüllrohrkasten versehenen KNK-II-Brennelemente muß die vorhandene Waschanlage umgebaut werden (Abb. 7). Dampf kann dann nicht nur über die bisherigen, senkrechten Dampfrohre, sondern auch wahlweise über den bisherigen Wassersprühling einströmen. Durch den Einbau eines Dichtringes in den oberen Bereich des Brennelementewaschbehälters wird der Dampfraum verkleinert und gleichzeitig der Dampfstrom bzw. der

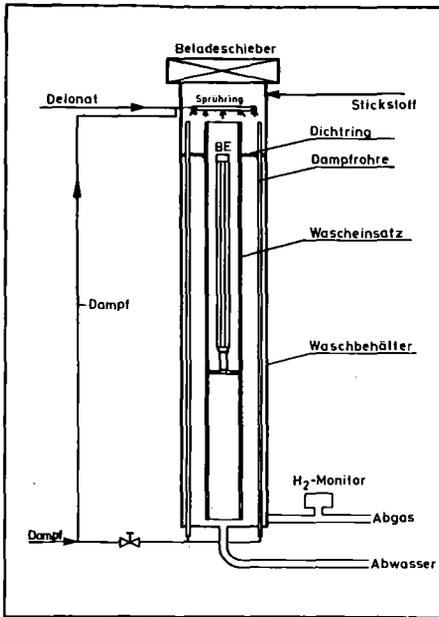


Abb. 7 Umgebauter Waschbehälter für KNK-II-BE

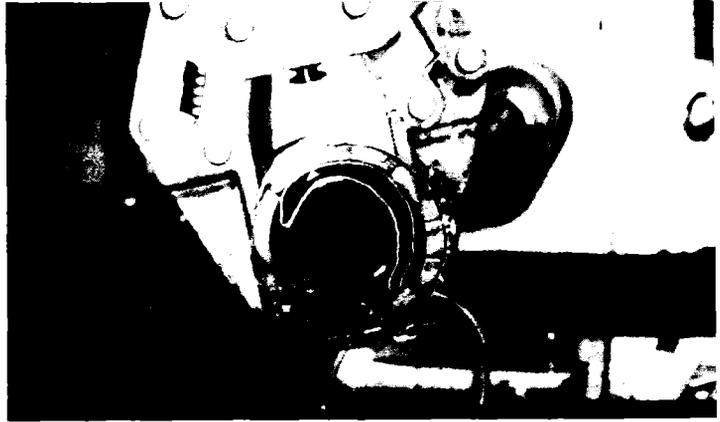


Abb. 8 Moderator-Hülldeformation nach dem Waschvorgang

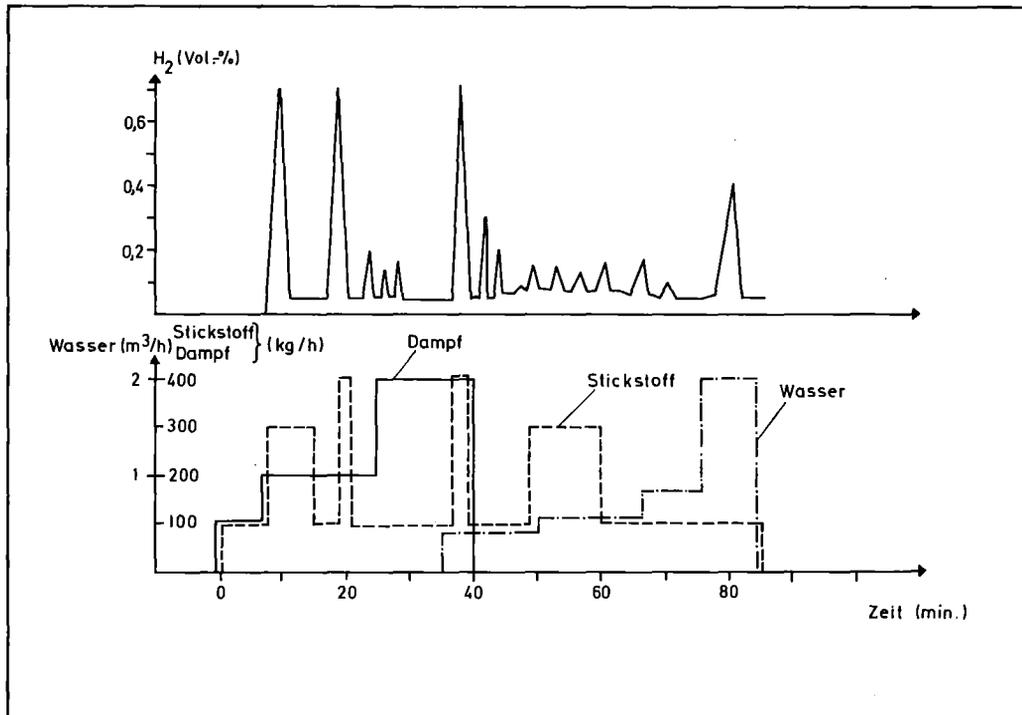


Abb. 9 Verlauf des Waschvorgangs einer Kernkomponente mit engen, natriumgefüllten Spalten (Außenmoderator KNK I) bei schneller und hoher Dampfzumischung

nachfolgende Spülwasserstrom zwangsgerichtet durch den Hüllrohrkasten des KNK-II-Elementes. Nach Freigabe vom TÜV wird dieser Umbau im Januar 1982 erwartet. Zur Führung des Waschprozesses der KNK-II-Brennelemente nach der Dampf-Inertgas-Methode liegen noch keine Erfahrungen vor. Berücksichtigt man die Erfahrungen von KNK-I (beispielsweise beim Waschen der Absorberelemente und der Außenmoderatoren), so ist wegen der vielen engen Spalten bei den KNK-II-Bündeln eine sehr schonende Steuerung der eigentlichen Dampfzumischung in der Dampfreinigungsphase unbedingt zu empfehlen. Wird das nicht beachtet, so zeigen Abb. 8 und Abb. 9 die möglichen Folgen. Es ist daher erforderlich, vor Beginn einer größeren Entladungskampagne mit dem KNK-II-Erstkern Versuchswaschungen mit 1 bis 2 Elementen der Treiber- oder Testzone zur Ermittlung der schonendsten Fahrweise durchzuführen.

#### IV. Natriumentfernung von den Brennelementen des SNR-300

Das Handhabungskonzept des SNR-300 für abgebrannte Brennelemente sieht vor, im Sieben-Monatszyklus ca. 1/3 des Kerns (= 70 Elemente) zu entladen und in natriumgefüllten Büchsen vom Reaktortank zum natriumgefüllten Brennelementlager (Kapazität: 210 Positionen) zu transportieren. Dort lagern die Elemente bis zu einer Restnachzerfallswärme von 2 kW pro Brennelement. Danach wird das Natrium entfernt und die Elemente ohne Büchsen in einem mit N<sub>2</sub> gekühlten Trockenlager (Kapazität: 202 Positionen) bis zu einer Restzerfallswärme von 1,5 kW zwischengelagert. Danach werden sie in mit Helium gefüllte Büchsen umgesetzt, in denen sie bis zum Transport zur Wiederaufarbeitungsanlage weiter gelagert werden. Vor der Lagerung im N<sub>2</sub>-gekühlten Trockenlager bzw. in den mit Helium gefüllten Büchsen muß das anhaftende Natrium entfernt werden. Dazu verfügt der SNR-300 gleichfalls über eine Waschanlage nach dem Dampf-Inertgas-Verfahren. Bezüglich Erfahrungen und Prozeßführung gilt das für KNK-II Gesagte. Ob die Entscheidung, die Prozeßführung zu automatisieren, richtig war, muß vorerst offen bleiben.

#### V. Zusammenfassung und Schlußfolgerungen

Das Dampf-Inertgasverfahren hat sich bei der Reinigung intakter KNK-I-Brennelemente bewährt. Die Natriumentfernung war vollständig; Brennelementschäden durch den Waschprozeß traten nicht auf. Die vertraglichen

Forderungen des Wiederaufarbeiters in Bezug auf Wasseraktivität bei Anlieferung der gewaschenen Brennelemente konnte nicht erfüllt werden. Bei schonender Prozeßführung ist zu erwarten, daß mit dem Dampf-Inertgasverfahren auch die intakten KNK-II- und die SNR-300-Brennelemente ohne die Gefahr von Folgeschäden durch den Waschprozeß gereinigt werden können.

Die bisherigen Erfahrungen mit defekten Brennelementen haben bei KNK-II gezeigt, daß auf eine vollständige Entfernung des Natriums vor der Zerlegung in den Heißen Zellen verzichtet werden kann. Falls für die anschließende Nachuntersuchung eine weitergehende Natriumentfernung von einzelnen Stäben erforderlich ist, genügt die "Schwamm-Methode". Dies gilt nicht für Behandlung und Lagerung defekter Brennelemente am SNR-300. Da der SNR-300 über keine Heiße Zelle zur Brennelementzerlegung verfügt, müssen defekte Brennelemente entweder über 180 Tage hinaus unter Natrium in Büchsen zwischengelagert oder eine andere Natriumentfernungsmethode (Vakuumdestillation?) dafür entwickelt werden.

Der Wiederaufarbeitungsvertrag für die KNK-II-Brennelemente verlangt u.a., daß die anzuliefernden Stäbe nur eine Außenkontamination von  $3,7 \times 10^3 \text{ Bq cm}^{-2}$  ( $= 10^{-7} \text{ Ci cm}^{-2}$ )  $\beta$ -Aktivität und  $3,7 \times 10^2 \text{ Bq cm}^{-2}$  ( $= 10^{-8} \text{ Ci cm}^{-2}$ )  $\alpha$ -Aktivität aufweisen dürfen. Aus den KNK-I-Erfahrungen ist die Möglichkeit zur Einhaltung dieser Grenzwerte, besonders für die  $\beta$ -Aktivität, fraglich. In diesem Zusammenhang gewinnt die Frage nach dem Verhalten der von Natrium befreiten Stäbe bei einer mehrjährigen Lagerung in gasgefüllten, dichten Büchsen in Gaslagern oder Wasserbecken an Bedeutung. Die Natriumkorrosion während des Reaktoreinsatzes der Brennelemente führt durch selektives Lösen von Legierungselementen aus dem austenitischen Hüllrohrwerkstoff zu einer ferritischen Struktur der Oberflächen-Grenzschicht auf austenitischem Grundmaterial. Dies bietet bei Spuren von Feuchtigkeit ideale Voraussetzungen für eine elektrochemische Korrosion. Diese Korrosion führt nicht zu einer Zerstörung des Hüllrohres während der angesprochenen Langzeitlagerung; sie ist aber die Ursache dafür, daß die genannten Grenzwerte für die Oberflächenkontamination praktisch nicht eingehalten werden können und eigentlich unrealistisch sind. Es wird daher empfohlen, dieses Langzeitverhalten zu verfolgen, etwa durch jährliche Stichproben einzelner Büchsen mit KNK-II-Brennstäben aus dem MZFR-Lager. Bei der Planung sollte das Durchführen solcher Stichproben in den Heißen Zellen mitberücksichtigt werden.

## VI. Literatur

- /1/ R. Mukaibo, Y. Matsuno, I. Sato, Y. Yoneda, H. Ito: Operational Experience of the Fuel Cleaning Facility of YOYO  
IAEA-IWGFR Specialists Meeting on "Sodium Removal and Decontamination"  
Richland, Washington, USA, February 14-16, 1978  
Report IAEA-IWGFR/23, 1978
- /2/ W.E. Ruther, C.F.R. Smith: EBR-II Experience with Sodium Cleaning and Radioactivity Decontamination  
IAEA-IWGFR Specialists Meeting on "Sodium Removal and Decontamination"  
Richland, Washington, USA, February 14-16, 1978  
Report IAEA-IWGFR/23, 1978
- /3/ J.M. Lutton, R.P. Colburn: Sodium Removal and Decontamination of LMFBR Components for Maintenance  
HEDL-SA-1807
- /4/ E.Büscher, W. Haubold, W. Jansing, G. Kirchner: Sodium Removal from Fuel Elements by Vacuum Distillation  
IAEA-IWGFR Specialists Meeting on "Sodium Removal and Decontamination"  
Richland, Washington, USA, February, 14-16, 1978  
Report IAEA-IWGFR/23, 1978
- /5/ H. Richard, K.Ch. Stade, H. Breitländer: Experience from Purification of Sodium-Wetted Components at the KNK-Facility  
Conf - 760503 - P2, 1976
- /6/ K.Ch. Stade: Operating Experience with Cleaning of Sodium-Wetted Components at KNK Nuclear Power Plant  
IAEA-IWGFR Specialists Meeting on "Sodium Removal and Decontamination"  
Richland, Washington, USA, February, 14-16, 1978
- /7/ H.H. Stamm, K.Ch. Stade: Corrosion Product Behaviour in the Primary Circuit of the KNK Nuclear Reactor Facility  
IAEA-IWGFR Specialists Meeting on "Fission and Corrosion Product Behaviour in Primary Circuits of LMFBR's"  
Dimitrovgrad, USSR, September 8-11, 1975  
Report IAEA-IWGFR/7, 1976
- /8/ H.H. Stamm, H.D. Hanke, K. Nolte, H. Clauss:  
unveröffentlichter Bericht (1975)
- /9/ G. Schnetgöke: Das Referenzkonzept zur Entsorgung der KNK-II  
Seminar "Technologische Fragen des Brüterbrennstoffkreislaufs"  
KfK, 15. Oktober 1981

Zerlegen von Brennelementen  
mit Gitterabstandshaltern

G. Bestenreiner

INTERATOM  
Bergisch Gladbach 1

Zusammenfassung

Für die Wiederaufarbeitung des bestrahlten Brenn- und Brutstoffes der Brennelemente ist derzeit vorgesehen, die von den Strukturbauteilen befreiten Brennstäbe einzeln oder gruppenweise einer Stabschere zuzuführen. Die so gewonnenen Stababschnitte werden anschließend im Auflöser ausgelaugt.

Im folgenden Beitrag werden die für die Zerlegung von Brennelementen mit gitterförmigen Stababstandshalterungen bekannten Randbedingungen aufgezeigt und der Zerlegeablauf für die Mk Ia und Mk II Brennelementtypen des SNR 300 erläutert.

Abstract

For the reprocessing of the irradiated fuel- and fertile material from the spent subassemblies it is foreseen to chop the single pins (or a small number of pins) before putting them into the dissolver. The dismantling of the subassemblies i.e. the removal of the fuel and blanket pins from the structure is the preparatory work for the subsequent chemical treatment.

In this contribution the dismantling procedure for SNR-300 Mk Ia and Mk II subassemblies equipped with grid spacers is explained.

## 1. Einleitung

Für die Wirtschaftlichkeit der Schnellbrüter-Baulinie ist die Wiederaufarbeitung des in den abgebrannten Kernelementen vorhandenen Brenn- und Brutstoffes besonders wichtig. Die Zerlegung der Brennelemente für die nachgeschaltete mechanische Zerkleinerung der Brennstäbe bzw. Auflösung des Brenn- und Brutstoffes ist der erste Schritt des Wiederaufarbeitungsprozesses.

Am Beispiel eines Brennelementes der Erstbeladung des Schnellen-Natriumgekühlten-Brutreaktors in Kalkar (SNR 300 Mk Ia) bzw. am Beispiel des weiterentwickelten Mk II Brennelement-Typs werden der Aufbau dieser Kernelemente, deren betriebsbedingte Verformungen nach dem Reaktoreinsatz und das bei Interatom entwickelte Zerlegeverfahren erläutert.

## 2. Aufbau der Schnellbrüter-Brennelemente

Die Abbildung 1 zeigt ein SNR 300 Mk Ia Brennelement.

### 2.1 Äußere Struktur

Im Gegensatz zu den Brennelementen der Druckwasserreaktoren ist das Brennstab- bzw. Brutstabbündel eines Schnellbrüterkernelementes von einem sechseckigen Hüllkasten umgeben. Oben bzw. unten wird dieser Hüllkasten durch ein Kopf- und ein Fußteil begrenzt. Kopf, Hüllkasten und Fuß sind z.B. durch Stiftverbindungen miteinander verbunden.

Äußere Hauptabmessungen:	Länge	3700 mm
	SW Hüllkasten	~ 110 mm
	SW Pflaster	115 mm

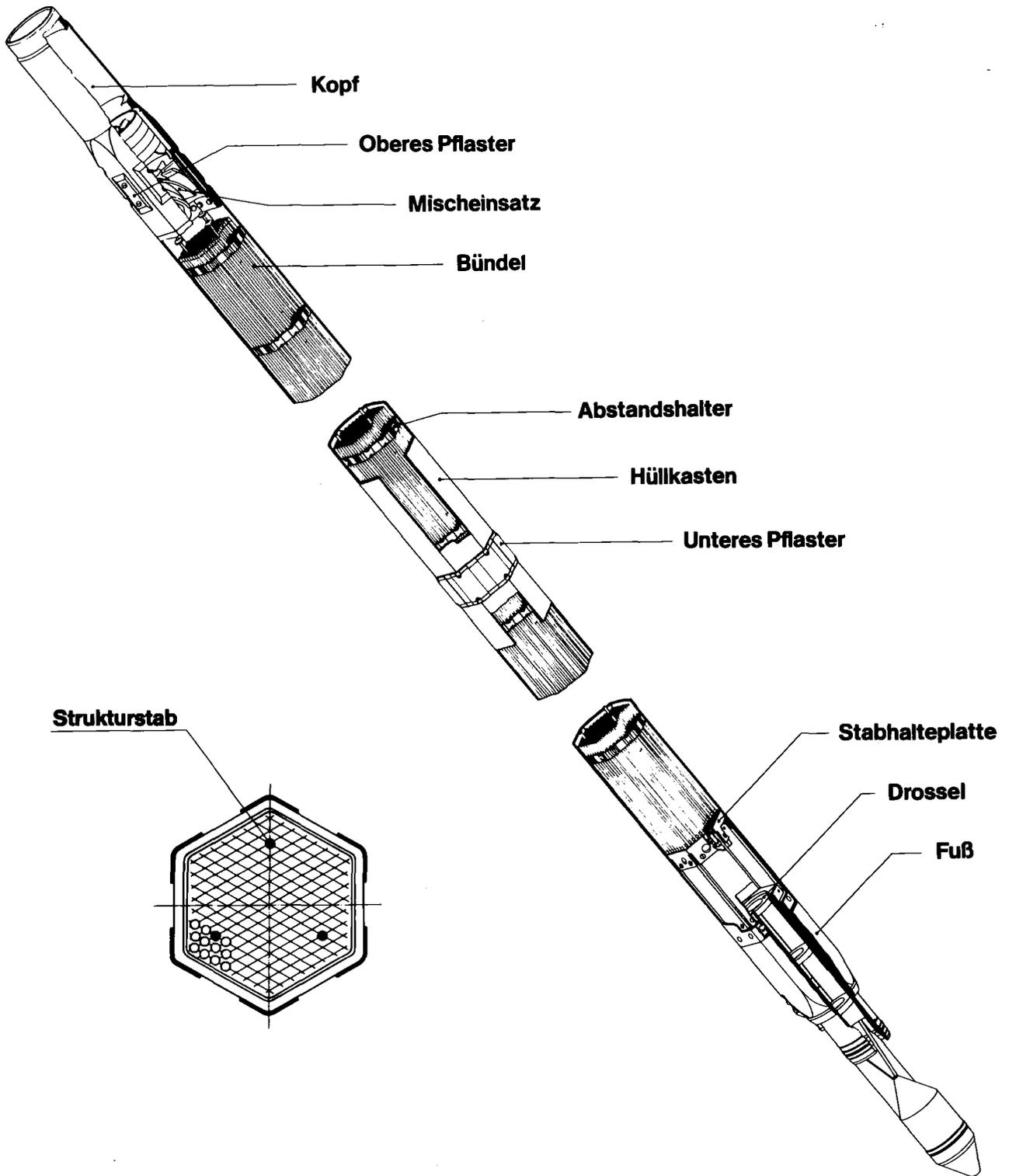


Abb. 1: SNR 300 Mk Ia Brennelement

## 2.2 Bündelaufbau

Das Brennstabbandel selbst setzt sich aus einer Vielzahl parallel angeordneter, dünner Brennstäbe zusammen, die durch gitterförmige Abstandshalter auf einen minimalen bzw. maximalen Abstand gehalten werden.

Bei den Brennelementen der Erstbeladung des SNR 300 (Mk Ia) sind diese Abstandshaltegitter durch 3 Strukturstäbe, die Brennstabpositionen einnehmen, in ihrer axialen Lage festgelegt. Bei den sogenannten Mk II-Brennelementen konnte durch eine weiterentwickelte Bündelkonstruktion d.h. durch die Einführung von funkenerodierten Abstandshaltern, die mit Strömungsschürzen am Hüllkasten befestigt sind (Abb. 2), das Betriebsverhalten verbessert werden. Dies äußert sich z.B. in einer Reduktion der Temperaturgradienten über dem Stab- und dem Bündelquerschnitt. Die im Mk Ia-Brennelement notwendigen Struktur-

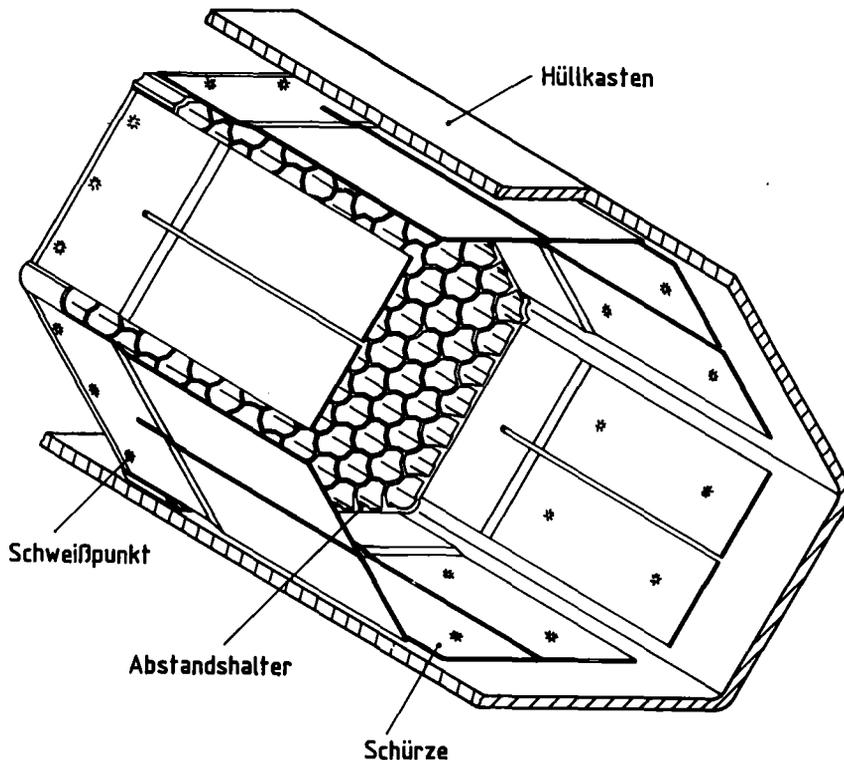


Abb. 2: SNR 300 Mk II, Funkenerodierter Abstandshalter im Hüllkasten befestigt

stäbe zur Halterung der Gitterabstandshalter können durch diese Maßnahme entfallen. Alle Zellpositionen im Bündelquerschnitt stehen für Brennstäbe zur Verfügung.

Die Brennstäbe werden an ihrem unteren Ende in einer Stabhaltevorrichtung gegen axiale Bewegungen und Verdrehung gesichert. Diese Stabhaltevorrichtung - und somit das gesamte Stabbündel - ist am Elementfuß befestigt.

Diese kurze Beschreibung der für den SNR 300 vorgesehenen Brennelementtypen zeigt nur deren Zustand zu begin-of-life auf. Der Zustand der Kernelemente am Ende ihrer Einsatzzeit (end-of-life) unterscheidet sich jedoch hiervon deutlich.

### 3. Reaktorspezifische Elementverformungen

Die in einem Schnellen Reaktor auftretenden hochenergetischen d.h. schnellen Neutronen bewirken nennenswerte, bleibende Veränderung der Geometrie der im aktiven Bereich angeordneten Bauteile. Sie schwellen und kriechen. Das bedeutet der Hüllkasten, die Abstandshalter und die Brennstäbe verändern in Abhängigkeit von der Entfernung zur Kernmitte ihre Ausgangsgeometrie. Ihr Querschnitt vergrößert sich und sie werden länger (Abb. 3). Der Elementkopf und Elementfuß sind aufgrund ihrer Entfernung von der aktiven Zone hiervon nicht betroffen, sie behalten ihre Ausgangsgeometrie bei. Durch Neutronenflußgradienten über den Bündelquerschnitten treten an den einzelnen Flanken eines Hüllkastens unterschiedliche Längungen auf, die somit zusätzlich zu Verbiegungen der Elemente führen.



Abb. 3: Verformung eines Brennelementes nach Reaktoreinsatz

In der folgenden Tabelle sind für ein Mk II-Brennelement aus dem Kernzentrum nach einem Abbrand von 80 000 MWd/to SM oder 90 dpa charakteristische Geometrieänderungen dargestellt.

Längenänderung ca.	10 - 15 mm
Kopfauslenkung ca.	5 - 10 mm
Vergrößerung des Stabdurchmessers ca.	0,21 mm

Für die Entwicklung von Zerlegeverfahren sind ferner betriebsbedingte Änderungen der Materialeigenschaften wie z.B. Versprödung der Werkstoffe und Änderungen der Reibeigenschaften zu beachten.

#### 4. Die Zerlegung von Brennelementen mit gitterförmigen Stababstandshaltern

Das bei Interatom entwickelte Zerlegekonzept ist in seinen wesentlichen Grundzügen für die Mk Ia und für die Mk II Brennelemente gleich. Es sieht vor, alle Brennstäbe eines Bündels in einem Arbeitsschritt nach unten aus der Struktur zu ziehen. Die örtlich unterschiedlichen Verformungen der Bauteile führen dazu, daß sich die Brennelemente keinesfalls mehr so leicht zerlegen lassen, wie sie montiert werden konnten.

Würde man keine Maßnahmen zur Erleichterung der Zerlegung treffen, so ließen sich die Brennstäbe nur unter erheblichen Zugkräften mit ihrem Schwellbauch durch die außerhalb des hohen Flusses liegenden Abstandshalter ziehen. Deshalb müssen schon in der Konstruktion Maßnahmen ergriffen werden, die eine Zerlegung erleichtern.

Die wesentliche Maßnahme besteht darin, die Zellkreisdurchmesser der unteren Abstandshalter, sie liegen außerhalb des aktiven Bereichs und werden daher durch die Neutronenstrahlung nur wenig oder gar nicht verformt, soweit zu vergrößern, daß es möglich wird, die im aktiven Bereich aufgeweiteten Brennstäbe aus der Bündelstruktur zu ziehen. (Abb. 4)

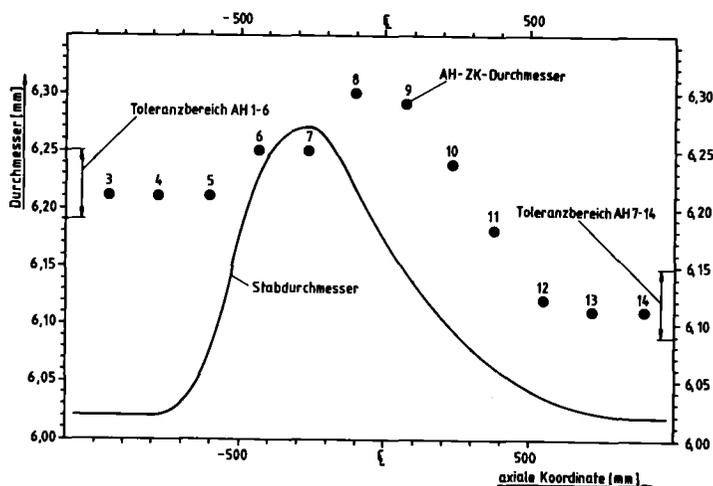


Abb. 4: SNR 300 Mk Ia  
Stab- und Zellkreisdurchmesser nach Bestrahlung

Hiermit sind die Voraussetzungen geschaffen, daß ein Zerlegekonzept entwickelt werden konnte, das eine Entfernung der Brennstäbe aus der Struktur bei geringstmöglichem Zeitaufwand ermöglicht.

#### 4.1 Die Zerlegung der Mk Ia- Brennelemente

Nachdem das abgebrannte Brennelement aus dem Transportbehälter in die Zerlegezelle übernommen worden ist, wird es von einem Schwerlastmanipulator in den Wagen der Zerlegevorrichtung gelegt und durch schraubstockähnliche Klammervorrichtungen festgehalten. Mit diesem Wagen kann jede Stelle des Elementes unter eine Bügelsäge gefahren werden. Im ersten Schritt der Zerlegung wird der Elementfuß durch einen Schnitt kurz unterhalb der Stabhalteeinrichtung vom Hüllkasten getrennt. Dadurch werden die Strukturstabbefestigungen freigelegt und danach die Befestigungsmuttern mit einer einfachen Übersetzungszange abgezwickelt. Anschließend wird das Element soweit verfahren, daß der Elementkopf durch einen Schnitt durch den Hüllkasten kurz oberhalb des Bündels abgetrennt werden kann.

Eine Haltevorrichtung fixiert nun die drei Strukturstäbe des Skeletts an ihrem oberen Ende gegenüber dem Hüllkasten. Damit ist das Skelett, bestehend aus den 3 Strukturstäben und den 14 Abstandshaltern, fest mit dem Hüllkasten verbunden. Am unteren Ende des Bündels wird an der Stabhalteplatte ein Greifer eingehängt, der außerhalb des Wagens an der Zerlegevorrichtung befestigt ist. Im nächsten Schritt fährt der Wagen mit dem Hüllkasten und dem Skelett vom Stabbündel weg und zwei Aufnahmeschalen nehmen das kontinuierlich freiwerdende Stabbündel auf. Ein Sägeschnitt durch die Stabhalteplatte löst die Stabbefestigungen (Abb. 5). Dann liegen die Brennstäbe ohne weiteres Strukturmaterial vor und können in der Wiederaufarbeitungsanlage zerkleinert und dem Auflöser zugeführt werden.

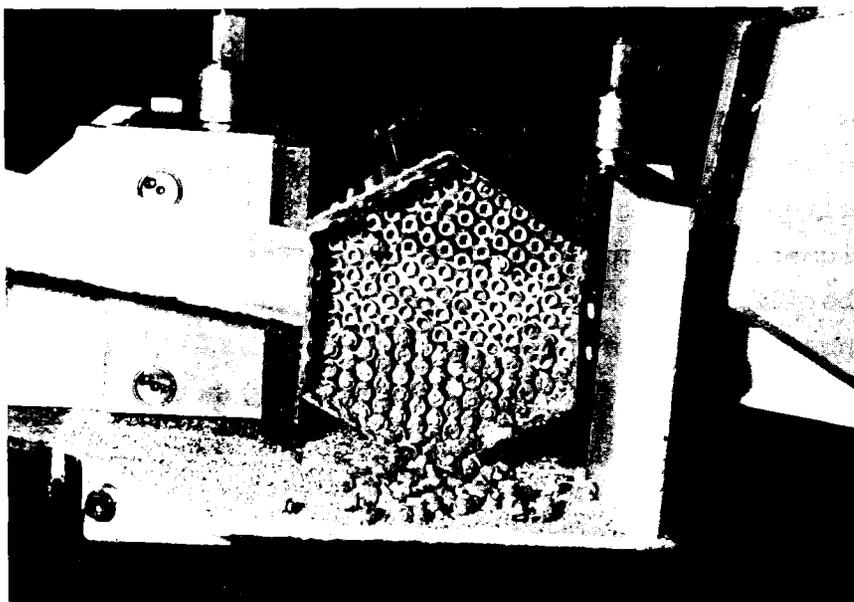


Abb. 5: Lösen der Stabbefestigung

#### 4.2 Die Zerlegung der Mk II-Brennelemente

Das fortschrittliche Mk II Brennelementkonzept ermöglicht es, daß einige der vorher für das Mk Ia Konzept gezeigten Zerlegeschritte entfallen können. So wird bei diesem Element, nachdem es im Wagen der Zerlegevorrichtung abgelegt und geklammert wurde, nur der Fuß vom Hüllkasten durch einen Sägeschnitt getrennt.

Anschließend wird sofort mit Hilfe eines Greifers das Stab-  
bündel aus dem Hüllkasten gezogen. Das kontinuierlich frei-  
werdende Bündel wird, wie auch beim Mk Ia Element, von zwei  
Aufnahmeschalen aufgenommen. Die Abstandshalter verbleiben  
im Hüllkasten, da sie mittels der Strömungsleitschürzen fest  
mit diesem verbunden sind. Im letzten Arbeitsschritt wird die  
Stabbefestigung durch einen zweiten Sägeschnitt gelöst. Die  
Brennstäbe liegen jetzt ebenfalls ohne weiteres Strukturma-  
terial vor und können in der Wiederaufarbeitungsanlage zerklei-  
nert werden.

#### 4.3 Versuchstechnische Absicherung

Die Untersuchung und Erprobung der einzelnen Verfahrensschritte  
wie z.B.:

- Trennen des Kopfes und Fußes vom Hüllkasten
- Ziehen aufgeweiteter Brennstäbe durch nicht verformte Ab-  
standshalterzellen
- Einfluß der Elementverbiegung auf die Zugkräfte
- Einfluß der Oberflächenrauigkeiten auf die Zugkräfte
- Lösen der Stabbefestigungen
- Konstruktion und Erprobung von Hilfsvorrichtungen usw.

erfolgte bei INTERATOM im Rahmen eines umfangreichen F+E Pro-  
grammes.

Die so gewonnenen Erkenntnisse führten zur Überprüfung des  
Gesamtablaufes durch mehrere Zerlegeversuche an reaktorspezi-  
fisch verformten Brennelementattrappen im Originalmaßstab. Die  
Übertragbarkeit der Ergebnisse aus Einzelversuchen und deren  
Zusammenwirken bei der Zerlegung eines gesamten Elementes konn-  
te bestätigt werden.

Die Verfahrensabläufe, die eingesetzten Werkzeuge und Vorrich-  
tungen sind unter Berücksichtigung der bekannten Betriebsbe-  
dingungen Heißer Zellen, wie Fernbedienung, Einsatz einfacher  
und robuster Werkzeuge ausgewählt worden. Somit ist die Über-  
tragbarkeit der vorliegenden Ergebnisse in die Praxis voll ge-  
währleistet.

## 5. Schlußfolgerung

Schon das SNR 300 Mk Ia Brennelement mit seinen an Strukturstäben befestigten Gitterabstandshaltern erlaubt eine einfache Zerlegemethode zur Freilegung der Brennstäbe für die nachgeschaltete Zerhackung und Wiederaufarbeitung.

Für das weiterentwickelte Mk II-Brennelement, bei dem die Gitterabstandshalter am Hüllkasten befestigt sind, konnte auch das Zerlegeverfahren noch weiter vereinfacht werden, so daß eine äußerst zeit- und kostengünstige Zerlegung dieses Elementtyps ermöglicht wird. Besonderer Wert wurde bei der Zerlegung beider Elementtypen auf die Minimierung der anfallenden Strukturteilmolumina im Auflöser gelegt.

So können als Ergebnis dieser Zerlegung nach dem Interatom-Verfahren die Brennstäbe ohne weiteres Strukturmaterial, wie Hüllkastenabschnitte und Abstandshalter, dem Auflöser zugeführt werden.

Die Zerlegung und Nachuntersuchung des ersten und zweiten defekten  
KNK II-Brennelements

H. Enderlein  
W. Kathol  
Kernforschungszentrum Karlsruhe  
Hauptabteilung Kerntechnische Betriebe  
Kernforschungszentrum Karlsruhe  
Projektleitung Schneller Brüter

Zusammenfassung

Der Vortrag behandelt die Zerlegung und Untersuchung der ersten beiden defekten Brennelemente aus der KNK II. Der Aufbau der Zerlegevorrichtung und die Vorgehensweise bei der Zerlegung der BE's und der Stabvereinzelung werden beschrieben. Die Untersuchungen der Einzelstäbe haben das Hauptziel, den oder die defekten Stäbe zu identifizieren und die Schadensursachen zu erklären. Die wichtigsten dabei angewendeten Untersuchungsschritte werden aufgezeigt, ebenso einige gefundene Ergebnisse. Schließlich werden Verbesserungen an einer zweiten geplanten Zerlegevorrichtung beschrieben.

Abstract

The report contained the dismantling and the post irradiation examination of the two first defective fuel elements of the KNK II-reactor. The construction of the dismantling device and the process of dismantling of the fuel elements are described. The main aim of the examination of the fuel pins is to find the defective pin and to establish the cause of the pin damage. The most important steps for this are shown, also a few of the results. Finally improvements to a planned second dismantling device are described.

## 1. Einleitung

Die Heißen Zellen in Karlsruhe sammelten in den 60er und 70er Jahren Erfahrungen mit dem Zerlegen von Brennelementen aus dem FR2, dem MZFR und dem KNK I. Die Stabzahl dieser Elemente war nicht sehr groß, sie konnten ohne besondere Hilfsvorrichtungen zerlegt werden.

Die Demontage von KNK II-Elementen mit über 200 Stäben pro Element war auf diese Art jedoch nicht mehr möglich. Deshalb begann 1978 die Konstruktion von speziellen Geräten zur Vermessung und Zerlegung dieser BE's sowie zur Nachuntersuchung der Einzelstäbe.

Der erste BE-Schaden trat jedoch noch während der Konstruktion dieser Vorrichtung im April 1979 auf. Nach Entnahme des Defekt-BE's aus dem Reaktor wurde im August 79 bei der zuständigen Aufsichtsbehörde der Antrag auf Genehmigung der Nachuntersuchung in unseren Heißen Zellen gestellt, dem schließlich im Juli 80 nach Erzeugung von rund einem Ordner voll Akten stattgegeben wurde. Diese Prozedur war notwendig, weil die Betriebsgenehmigung der Heißen Zellen auf den Umgang mit max. 10 kg Spaltstoff beschränkt ist, das Element jedoch ca. 18 kg enthält.

Die Zwischenzeit bis zur Erteilung der Genehmigung wurde dazu genutzt, die noch nicht abgeschlossene Konstruktion der Zerlegevorrichtung in Richtung einer Vereinfachung hin zu überarbeiten, um ihre Fertigung beschleunigen zu können. Die Vorrichtung wurde im Mai 80 fertiggestellt, in den Heißen Zellen schloß sich eine 6-wöchige Erprobung mit einem BE-Dummy an.

## 2. Zerlegung des Brennelementes

Bild 1 zeigt den schematischen Aufbau eines KNK II-Brennelementes der Testzone. Es ist 225 cm lang und enthält 211 Einzelstäbe von 6 mm  $\varnothing$  und 156 cm Länge.

Das Zerlegekonzept sieht vor, den Hüllkasten vor der Stabvereinzelnung abzuziehen. Dazu werden zuerst 12 verschweißte Querstifte, die den Hüllkasten mit der Stabhalteplatte verbinden, entfernt. Danach wird der Hüllkasten mit dem Kopf vom Stab-Bündel über die 8 Abstandshalter abgezogen. Nach Entfernen von 12 Schrauben zwischen Stabhalteplatte und Fußteil wird das Fuß-

teil vom Bündel getrennt.

Die Stäbe selbst sind mit der Stabhalteplatte verschraubt, die Befestigungsmuttern mit den Endstopfen der Stäbe verschweißt. Zur Vereinzelung der Stäbe werden die einzelnen Muttern mit dem Gewindestück der Endstopfen in axialer Richtung abgebohrt, danach ein Stab nach dem anderen etwa 50 mm nach oben ausgestoßen und von oben aus dem Stabverband herausgezogen.

Um den gesuchten Stabschaden nicht durch Reaktionen des Rest-Natriums zu verändern, wurden die Defekt-Elemente lediglich mit einem trockenen Gasstrom abgeblasen. Hüllkasten und Stäbe sind infolgedessen mit den Abstandshaltern durch nicht abgetropftes Na verklebt; die gesamte Zerlegung und Schadenssuche muß unter Intergas erfolgen.

Die Zerlegevorrichtung (Bild 2) wurde bei KfK entworfen und gefertigt. Sie ist 510 cm lang und belegt dadurch 2 der 3 Arbeitsplätze der Eingangszelle.

Im Prinzip besteht sie aus einem Grundgestell mit einem längsverfahrbaren Schlitten, der über zwei Hydraulikzylinder bewegt wird, und 2 festen Widerlagern an beiden Enden des Grundgestells. Auf dem Schlitten wird das BE beim Abziehen des Hüllkastens am Fuß, beim Ziehen der Einzelstäbe an 2 Abstandshaltern gespannt und längsbewegt. Beim Stabziehen stützt sich das BE außerdem axial über 6 Strukturstäbe seines Skeletts auf die Vorrichtung ab. An den Widerlagern sind senkrecht stehende Koordinatentische befestigt. Auf einem der Tische wird wechselweise die Bohrvorrichtung zum Abbohren der Muttern und der Bolzen zum Ausstoßen der Stäbe angebracht, auf dem anderen die Spannzange zum Festhalten des jeweils ausgedrückten Stabes. Das Bündel wird für jeden Stab zweimal gegen den ersten Tisch gefahren zum Bohren und Ausstoßen, danach zum gegenüberliegenden Tisch, wo der hervorstehende Stab gespannt wird. Beim Zurückfahren zum ersten Tisch wird dieser Stab aus dem Verband herausgezogen. Beide Tische werden motorisch in die Koordinaten der Achse des jeweiligen Stabes gefahren mit Hilfe einer digitalen Steuerung.

Die Zerlegung des 1. Brennelementes begann im September 80. Alle Einzelschritte liefen wie geplant ab. Insbesondere funktionierte die Zerlegevorrichtung auf Anhieb einwandfrei.

Der Hüllkasten löste sich vom Bündel, nachdem 15 min lang eine Kraft von 660 kp aufgebracht wurde. Beim 2. BE waren es 10 min bei 750 kp. Seine Zerlegung begann im August 81. Diese unerwartet hohen Kräfte sind durch das anhaftende Restnatrium bedingt. Es wirkt wie ein Klebstoff und verursacht offensichtlich eine Kraft-Zeit-Korrelation: Je höher die aufgebrauchte Zugkraft, umso kürzer die Wartezeit bis zum Moment des Losreißen.

Bilder 3-5 zeigen das Abbohren der Muttern, das Ausstoßen und das Ziehen der Stäbe.

Die Druck- und Zugkräfte können über eine Druckmeßdose gemessen werden. Die Ausstoßkraft für einen Stab lag zwischen 9 und 12 kp, die Zugkraft beim Ziehbeginn betrug 1,5 kp.

Temperaturmessungen ergaben

am Hüllkasten des unzerlegten Elementes max. 95<sup>0</sup>C beim 1., 135<sup>0</sup>C beim 2. BE, im Stabbündel mit abgezogenem Hüllkasten max. 144<sup>0</sup>C bzw. 230<sup>0</sup>C, an Einzelstäben max. 5 K über Raumtemperatur beim 1. BE.

### 3. Nachuntersuchung der Einzelstäbe und Untersuchungsergebnisse

Nachuntersuchungsschritte zum Auffinden der Stabschäden und zur Analyse der Schadensursache sind

I an allen Stäben:

1. Visuelle Inspektion der Stäbe im Bündel  
(danach Vereinzeln und Reinigen der Stäbe)
2. Visuelle Inspektion der vereinzelt Stäbe
3. Lecktest im Silikonölbad nach Beaufschlagung mit Außendruck  
(nur beim 1. BE)
4. Hot-dry-sipping-test )
5. Gewichtsbestimmung ) (nicht für alle Stäbe des 1. BE's)

II an Defektstäben und weiteren ausgewählten Stäben:

6. Röntgenprüfung
7.  $\gamma$ -Spektrometrie
8. geometr. Dimensionskontrolle
9. Wirbelstrommessung
10. Messung der Spaltgase
11. Metallografische Untersuchung
12. REM-Untersuchung

Zur visuellen Inspektion der Stäbe im Bündelverband zeigen die Bilder 6 und 7 typische Ansichten. Die Menge an anhaftendem Natrium war beim 2. BE geringer als beim 1., offensichtlich auf Grund der höheren Temperaturen. Ein Defektstab wurde bei diesem Untersuchungsschritt nicht gefunden. Auch beim 2. Schritt, der visuellen Inspektion der vereinzelt Stäbe, wurde der Defektstab des 1. BE's trotz intensiver Suche nicht entdeckt. Dafür brachte dieser Schritt ein anderes sehr wesentliches und überraschendes Ergebnis.

Alle Brennstäbe des 1. defekten Elementes NY 208 BN zeigen jeweils auf der Höhe der Abstandshalter Reibmarken unterschiedlicher Größe und unterschiedlicher Form (Bild 8). Zur statistischen Erfassung wurden die Reibmarken in Intensitätsklassen aufgeteilt (Bild 9). Die Zuordnung zu den einzelnen Abstandshalterebenen ergab, daß die Intensität der Reibmarken bei den drei oberen Abstandshaltern deutlich größer als bei allen übrigen ist, wobei die Marken am dritten Abstandshalter von oben am intensivsten sind.

Am Brennstab OB 142 - 3. AH-Ebene von oben - fand sich die nach visueller Inspektion größte Reibmarke. Mit einem Rauigkeitsmeßgerät wurde ihre Tiefe zu  $120\ \mu\text{m}$  bestimmt (Bild 10). Die entsprechende Messung der um  $120^\circ$  versetzten Marke der gleichen Ebene zeigt Bild 11. Metallografische Schliffe durch die größte Marke wiesen dagegen nur Materialabtragungen bis zu  $80\ \mu\text{m}$  auf (Bild 12). (Die Auslegungs-Wandstärke der Hüllrohre ist  $350\ \mu\text{m}$ ). Ein Schnitt durch eine andere Reibmarke läßt anstelle einer Materialabtragung eine Auftragung eines anderen Werkstoffs erkennen (Bild 13). Das Hüllrohr des zugehörigen Stabes ist aus dem Werkstoff 1.4970, der Abstandshalter aus 1.4981 gefertigt.

Das 1. defekte Brennelement ist im Gegensatz zu allen übrigen Elementen des Erstcores KNK II mit "Wabenabstandshaltern" ausgerüstet. Die Konstruk-

tion dieses Abstandshaltertyps ist in Bild 14 zu erkennen. Da die Abstandshalter aus den gleichen bzw. ähnlichen Werkstoffen wie die Hüllrohre bestehen, sind an den Abstandshalternoppen, die die Hüllrohre berühren, den Reibmarken entsprechende Verschleißerscheinungen aufgetreten (Bild 15). Die Vermessung der Zellkreis-Innendurchmesser ergab maximale Vergrößerungen um 0,4 mm beim 3. Abstandshalter von oben.

Die Abtragungen an Stäben und Abstandhaltern haben ihre Ursache in Vibrationen der Stäbe, deren maximale Amplituden in Höhe des 3. Abstandshalters von oben liegen müssen. Zusätzliche Drehbewegungen der Stäbe traten dabei nicht auf.

Der Inspektion schloß sich eine Dichtheitsprüfung an, bei der je 5 Stäbe in einem auf 150°C aufgeheizten Rezipienten von außen mit 30 bar Argon eine Stunde lang beaufschlagt wurden. Danach wurden sie rasch in ein Silikonölbad gelegt, das ebenfalls auf 150°C aufgeheizt war. Ein kleines Leck zeigt sich dabei durch Blasenbildung an, ein größeres wird zuvor bei der visuellen Inspektion entdeckt. Das Druckgas wurde beim Entspannen zusätzlich über eine Ionisationskammer geleitet, die einen Austritt von Spaltgas anzeigen sollte, es wurde also eine Art sipping-test durchgeführt. Das anhaftende Silikonöl wurde anschließend trocken abgewischt.

Die Prüfmethode des Blasentestes wurde bereits mehrfach erfolgreich angewendet, ihre Brauchbarkeit wurde auch jetzt an einem Dummy mit einem Testleck nachgewiesen. Bei den 211 Stäben des KNK-Elementes versagte sie jedoch; es wurde kein Leck gefunden.

Parallel dazu wurde an 32 bereits geprüften Stäben, die zur Wiederaufarbeitung in der MILLI bestimmt waren, der Spaltgasdruck gemessen. Dabei stellten sich zwei der Stäbe als drucklos heraus; beim Auftrennen der Stäbe wurde im Spaltgasraum eines Stabes eingedrungenes Natrium festgestellt (Bild 16). Damit wurde vorher nicht gerechnet. Nun war es verständlich, warum der Blasentest negativ verlaufen war. Er wurde zwar bei Temperaturen durchgeführt, die oberhalb der Natrium-Schmelztemperatur lagen, aber das reichte offensichtlich nicht aus, um Natrium-Reaktionsprodukte, die sich im Stabinneren gebildet hatten und das Leck verklebten, zu schmelzen. Inzwischen hatte eine Wägung des Stabes eine Gewichtszunahme um 4,8 g ergeben, damit war eine zweite Indikationsmethode zur Entdeckung von defekten Stäben gefunden worden.

Auf Grund der negativen Erfahrungen mit der Dichtheitsprüfung wurde schließlich beschlossen, alle noch für einen weiteren Defekt in Frage kommenden Stäbe einem sipping-test bei höheren Temperaturen, und zwar bei 400 bis 500°C, zu unterziehen (Bild 17). Jeweils 15 Stäbe werden dabei in einem Rezipienten aufgeheizt, das Gas im Rezipienten abgesaugt, zunächst in einer Kühlfalle gesammelt und danach über eine  $\gamma$ -Durchflußmeßkammer geleitet. Ist deren Meßrate infolge Kr 85, das aus einem Leck ausgetreten ist, deutlich höher als der Nulleffekt, so wird die Messung mit der Hälfte der Stäbe wiederholt usw., bis der defekte Stab erkannt ist. Parallel dazu findet eine Gewichtskontrolle der Einzelstäbe statt.

Der hot-sipping-test wird in Frankreich seit 1972 bei der Prüfung von Rapsodie-Brennelementen erfolgreich angewendet.

Mit dem sipping-test und der Gewichtskontrolle wurden keine weiteren Defektstäbe entdeckt.

Einige Anstrengungen bereitete es noch, den genauen Ort des Lecks am Defektstab zu finden. Weder eine abermalige detaillierte visuelle Inspektion, noch eine Wirbelstrommessung, noch eine Innendruckprüfung bei 450 bar und 220°C brachten den gewünschten Erfolg. Erst beim versuchsweisen sipping-test brach das Leck infolge der höheren Prüftemperaturen durch austretendes Natrium auf (Bild 18).

Es ist ein Riß in Umfangsrichtung über etwa ein Viertel des Hüllrohrumfanges im oberen Bereich der Brennstoffsäule, 5 mm unterhalb des 3. Abstandshalters von oben, an einem Stab der 3. Reihe von außen. Die offene Rißfläche beträgt etwa 0,4 mm<sup>2</sup>.

86 Brennstäbe wurden geröntgt, da auf einer ersten Röntgenaufnahme Leerstellen innerhalb der Brennstoffsäule festgestellt worden waren. Von diesen 86 Brennstäben wiesen 6 Spalte von 5 bis 10 mm, 34 Stäbe Spalte kleinerer Breite zwischen den Brennstoffpellets auf. In den Brutstoffsäulen waren keine Spalte vorhanden (Bilder 19 und 20). Bei 9 Stäben waren Brennstoffpellets zerstört.

Für die Untersuchungsschritte 7, 8, 9, 11 und 12 der Tabelle wurden nur noch 6 Stäbe, darunter der Defektstab, ausgewählt. Die bemerkenswertesten Ergebnisse dieser Untersuchungen waren

- bei der  $\gamma$ -Spektrometrie des Defektstabes eine Cs-Ansammlung im Spaltgasraum, 44 % des Cs fehlen in der Bilanz des Stabes,

- bei der geometr. Dimensionskontrolle des Defektstabes eine schmale Durchmessererweiterung um ca. 20  $\mu\text{m}$  im Defektbereich,
- bei der Wirbelstrommessung zahlreiche Anschläge, die noch nicht gedeutet werden können. Hier stehen die Heißen Zellen noch am Anfang der Beherrschung dieser Untersuchungsmethode.
- Die metallografische Untersuchung ist erst bei 2 der 6 Stäbe abgeschlossen, der Defektstab ist in Arbeit. Bild 21 zeigt Veränderungen an den Korngrenzen des Brennstoffes im Defektstab durch das eingedrungene Natrium, Bild 22 Hüllrohr-Innenkorrosion bis maximal 100  $\mu\text{m}$  Tiefe. Als Vergleich dazu zwei "normale" Ergebnisse: In Bild 23 ein typischer Querschnitt durch einen der 6 Brennstäbe, in Bild 24 die zugehörige  $\alpha$ -Autoradiografie.
- REM-Analysen haben noch nicht begonnen.

Das 2. Defekt-BE wurde im August und September 81 zerlegt, die reine Demontagezeit betrug 110 Stunden. Sie muß im Hinblick auf die "große Entsorgung" durch Einsatz einer verbesserten Zerlegevorrichtung und Änderung der Zerletechnik auf etwa 20 Stunden reduziert werden.

Der erste Blick nach dem Ziehen der ersten Stäbe galten evtl. vorhandenen Reibmarken. Auch hier wurden Reibmarken gefunden, die infolge des Einsatzes von funkenerodierten Abstandshaltern mit quasi-Linienberührung anders aussehen als beim 1. Bündel (Bild 25). Ihre Intensitätsverteilung und Tiefe scheint jedoch der des 1. BE's zu entsprechen.

Bereits der zweite Blick erbrachte einen Defektstab. Er wurde bei der Durchführung des 2. Untersuchungsschrittes der Tabelle entdeckt, bei der visuellen Inspektion des 3. vereinzelt Stabes. Es handelt sich diesmal um einen Außenstab (Bild 26), der Schaden ist ins Bündelinnere gerichtet. Der Defekt besteht aus einem 30 mm langen Längsriß mit ca. 20  $\text{mm}^2$  Öffnungsfläche etwas über der Mitte der Brennstoffzone, zwischen den Abstandshaltern 5 und 6. Ein weiterer ca. 30 mm langer Längsriß (Bild 27) mit 100  $\text{mm}^2$  Öffnungsfläche befindet sich unterhalb der Mitte der Brennstoffsäule zwischen den Abstandshaltern 4 und 5.

Sipping-Test und Gewichtsbestimmung sind an 175 der restlichen 210 Stäbe durchgeführt, ohne weitere Ergebnisse zu bringen.

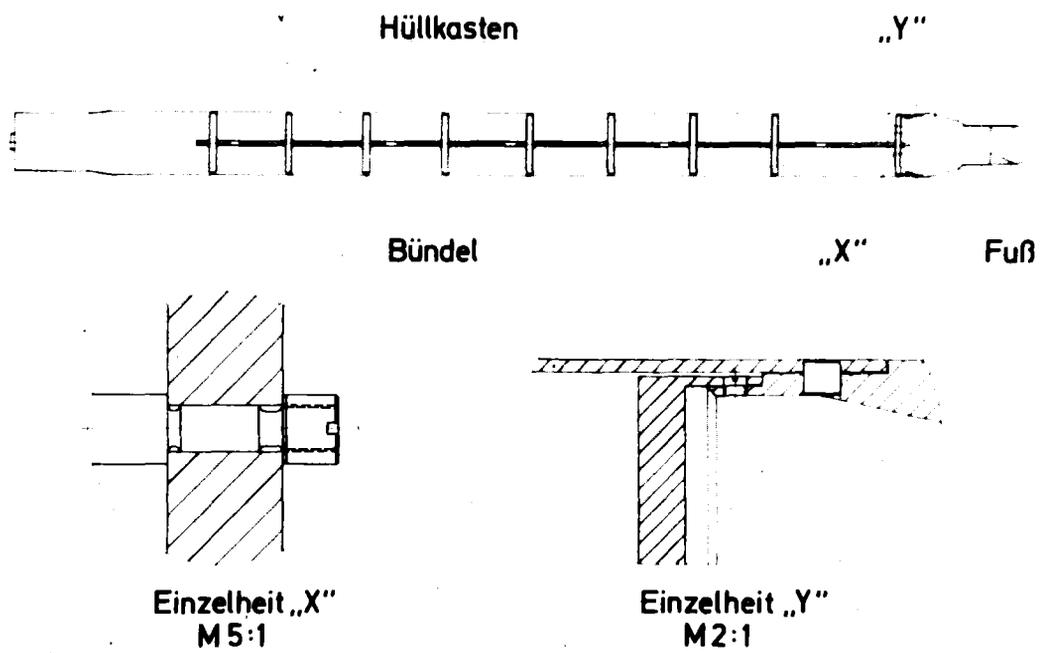
#### 4. Verbesserungen der gegenwärtigen Zerlegetechnik

1984 beginnt die Zerlegung der Elemente des gesamten Erst- und Zweitkernes der KNK II in unseren Heißen Zellen, einschließlich der Nachuntersuchung ausgewählter Stäbe. Der Abbrand der Elemente wird mindestens 7 at.% betragen.

Zur Reduzierung der Zerlegezeiten ist eine neue Zerlegevorrichtung in Planung mit folgenden Verbesserungen:

- Ansteuerung der Stabachsen über einen Rechner
- Zusammenbau aus einzelnen Baugruppen. Bei Nichtgebrauch ist eine schnelle Zerlegung möglich, um für anderes benötigten Zellenraum zu gewinnen
- mechanischer Antrieb wegen geringerer Baulänge und höherer Zuverlässigkeit in der Zelle
- Bewegungsmöglichkeiten des Elementes auch in der y-Koordinate, um einen Laserstrahl zum Trennen der Hüllkästen mit einsetzen zu können.

Eine weitere Beschleunigung bei der Zerlegung von unbeschädigten BE's läßt sich erreichen, indem auf das Abziehen des Hüllkastens verzichtet wird und als erstes zwei Trennschnitte durch Kopf und Stabhalteplatte vor der Stabvereinzelung vorgenommen werden. Das zerstörungsfreie Demontieren mit anschließendem Ausbohren der Stäbe kann dann entfallen, und anstelle von Einzelstäben können Stabreihen oder sogar das ganze Bündel aus Hüllkasten und Abstandshaltern gezogen werden. Die Vorgehensweise hängt vom Typ des Brennelementes ab und von den speziellen Untersuchungen, die daran vorgenommen werden sollen.



KNK II - Testelement

Bild 1: Schematischer Aufbau eines KNK II-Brennelementes der Testzone

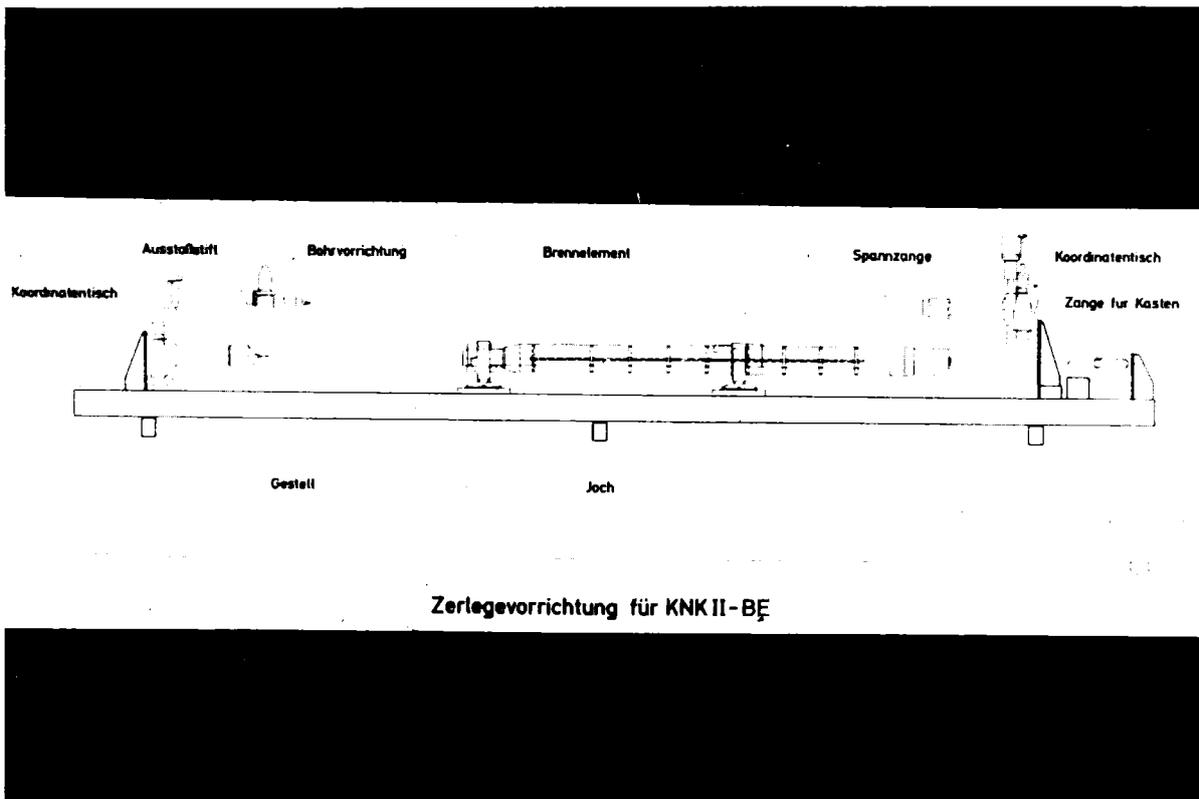


Bild 2: Schematischer Aufbau der Brennelement-Zerlegevorrichtung

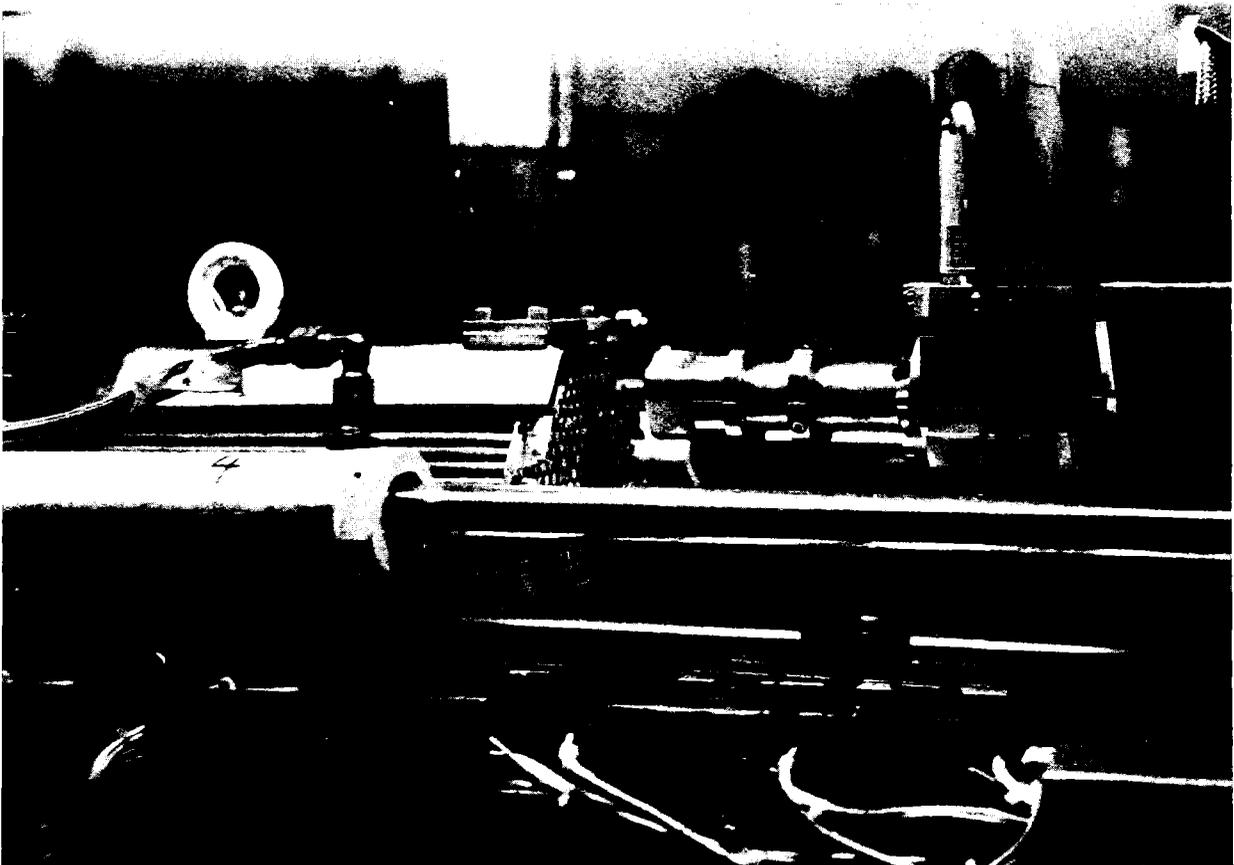


Bild 3: Abbohren der Befestigungsmuttern der Einzelstäbe auf der Zerlegevorrichtung



Bild 4: Ausstoßen der Einzelstäbe aus dem Stabverband auf der Zerlege-  
vorrichtung

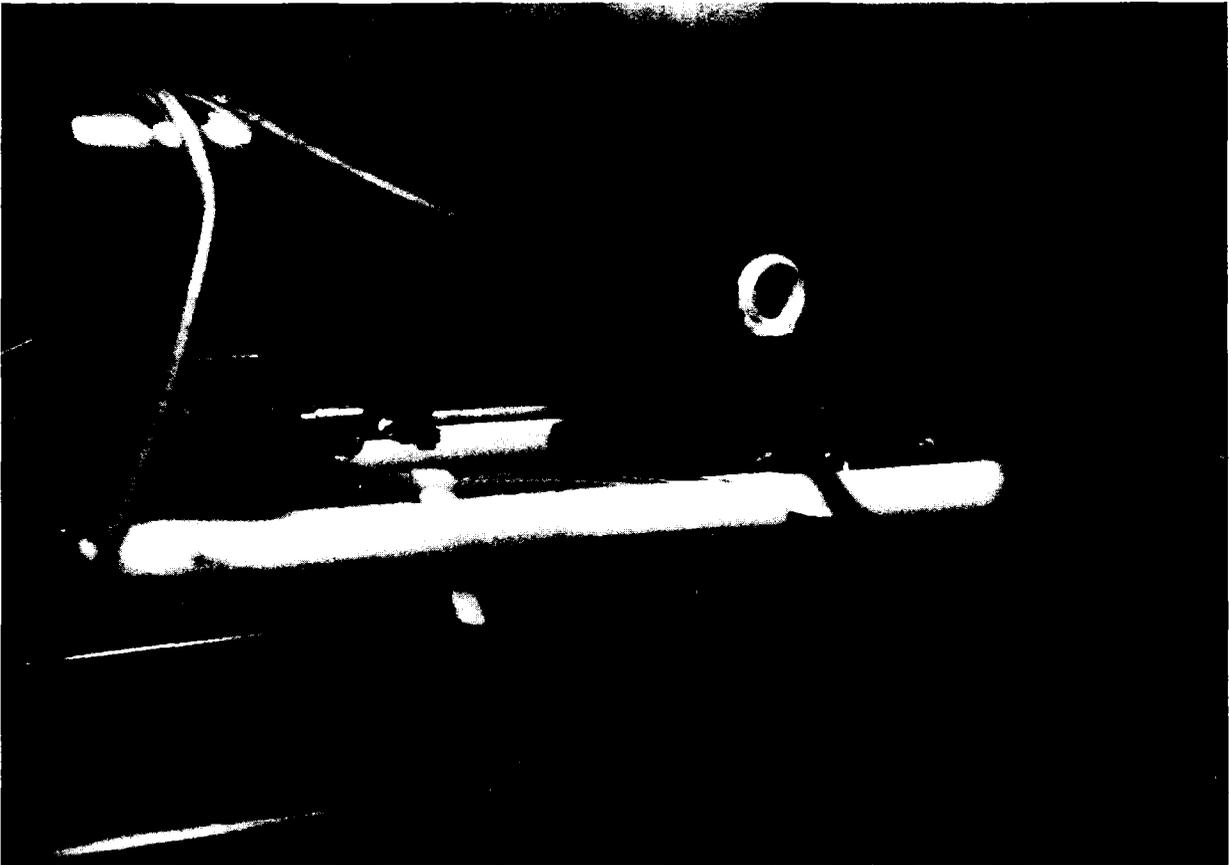


Bild 5: Ziehen eines Einzelstabes aus dem Stabverband auf der Zerlegevorrichtung

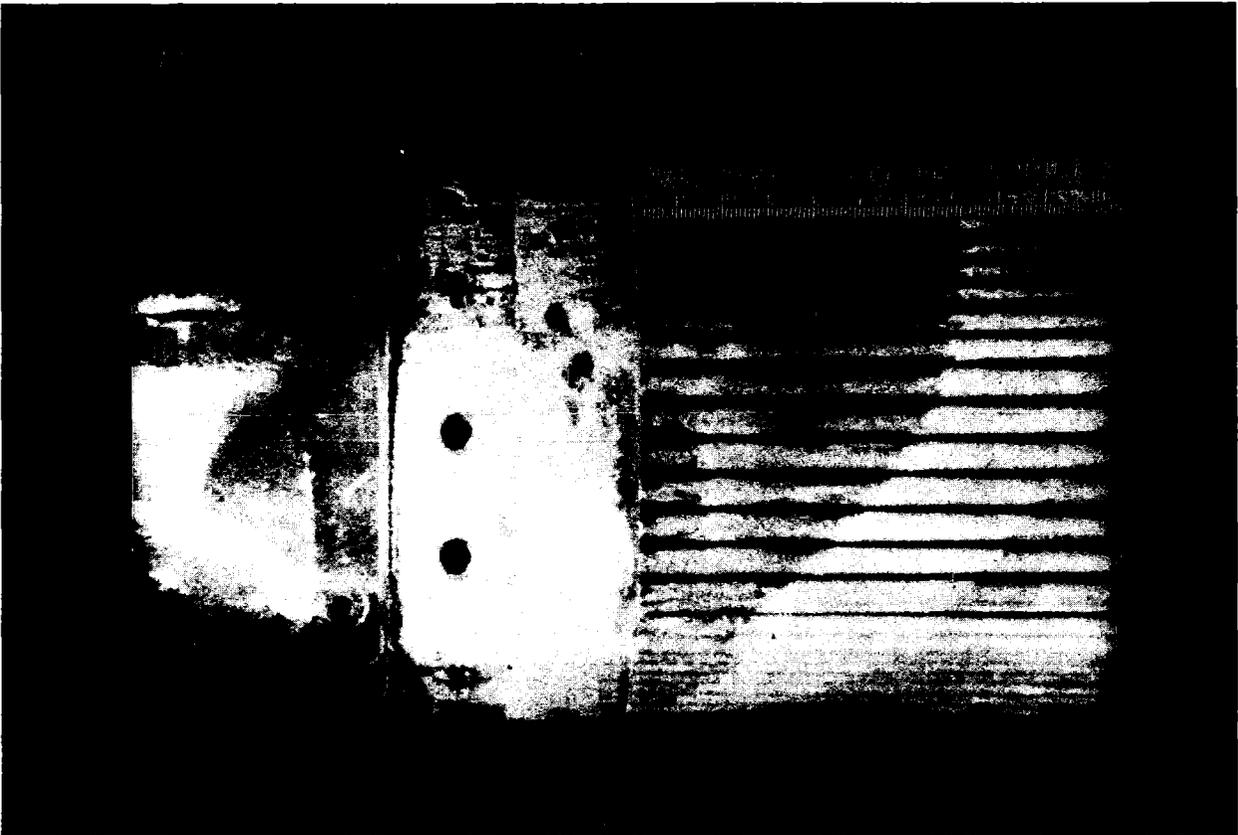


Bild 6: Ausschnitt aus dem Stabbündel des 1. Defekt-BE's mit anhaftendem Natrium nach Abziehen des Hüllkastens

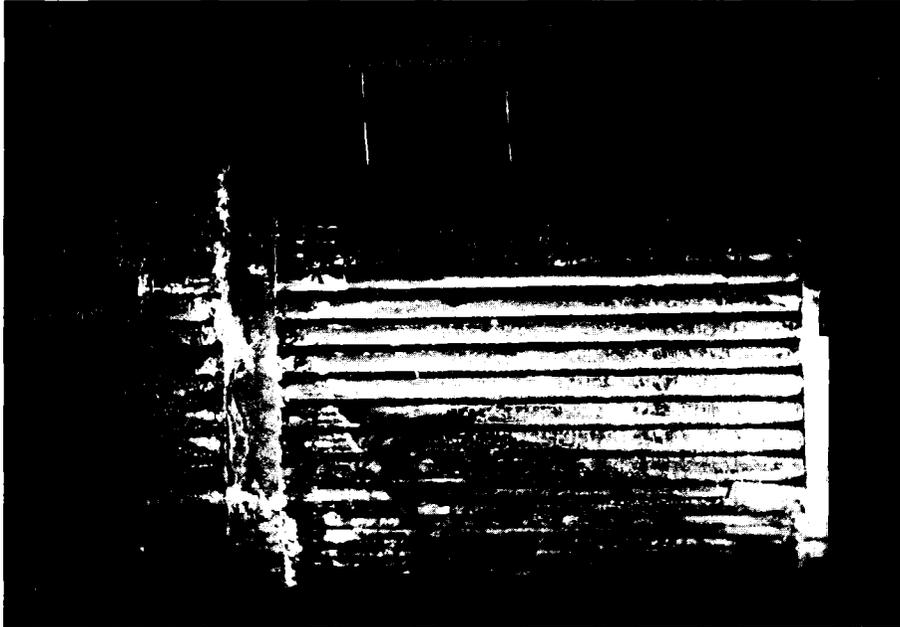


Bild 7: Ausschnitt aus dem Stabbündel des 2. Defekt-BE's mit anhaftendem Natrium nach Abziehen des Hüllkastens

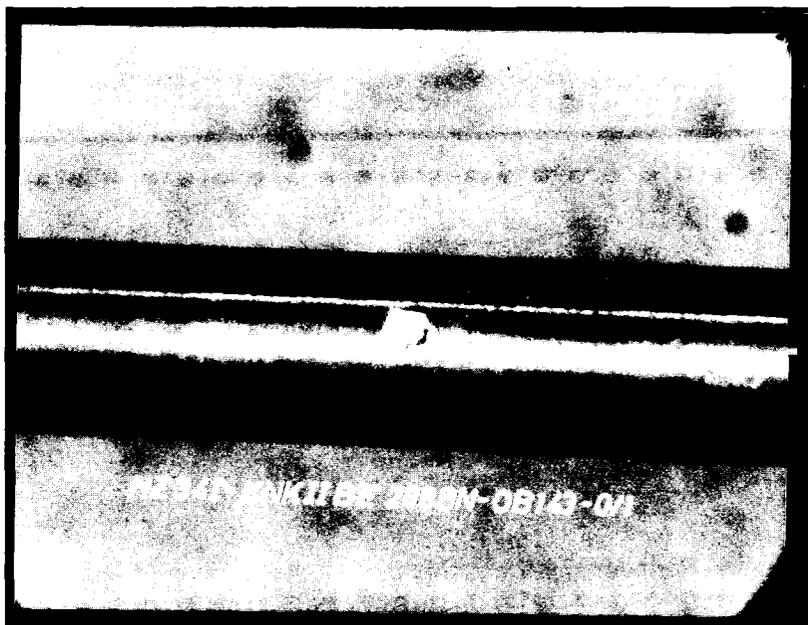


Bild 8: Reibmarke an einem Stab des 1. Defekt-BE's

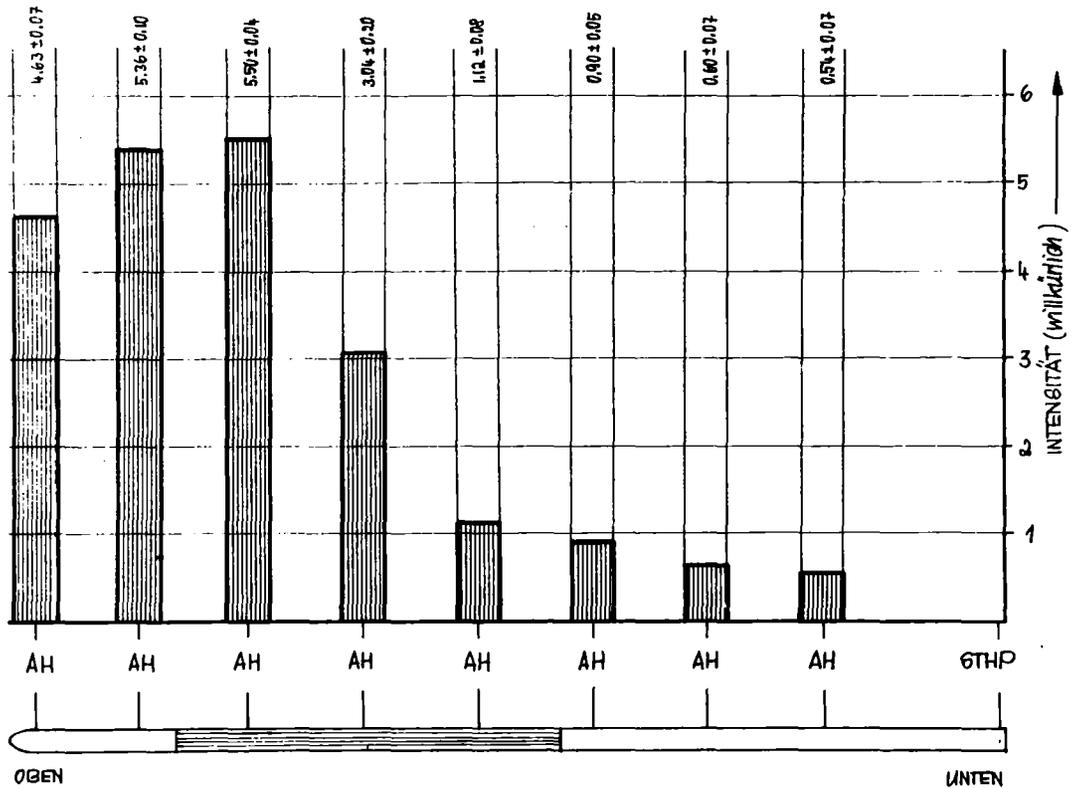


Bild 9: Verteilung der Intensitätsklassen der Reibmarken auf die acht Abstandshalter

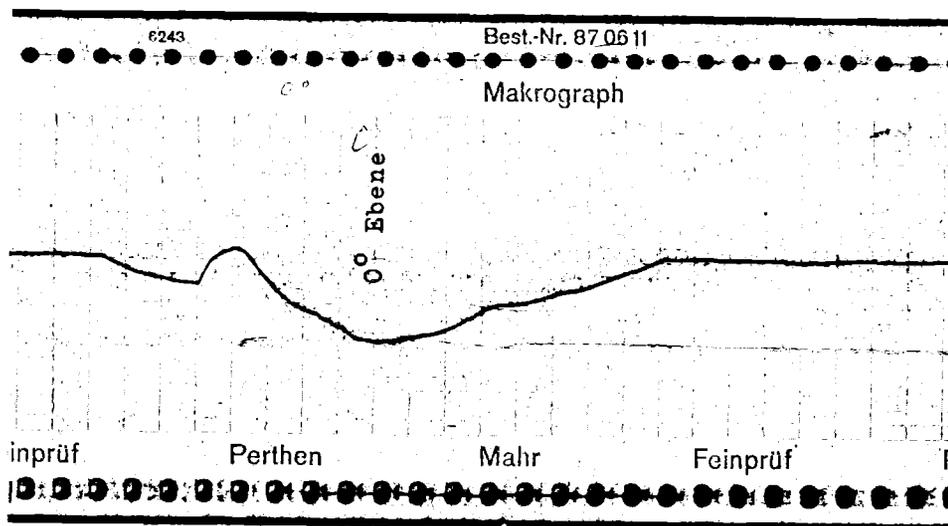


Bild 10: Profil der größten Reibmarke an einem Stab des 1. Defekt-BE's, in Umfangsrichtung abgetastet. Vergrößerung 1:1000

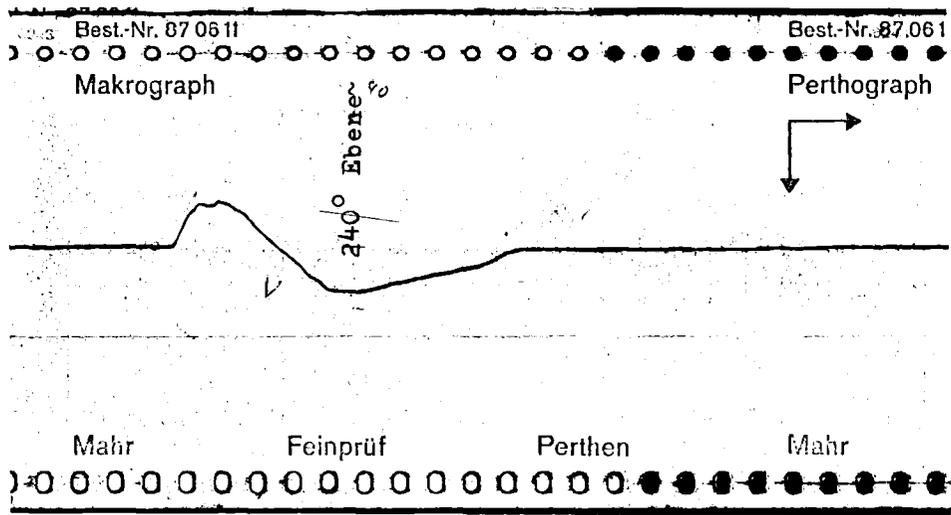


Bild 11: Profil der gegenüber Bild 10 um  $120^{\circ}$  versetzten Reibmarke am gleichen Stab



Bild 12: Metallografischer Schliff durch die Reibmarke von Bild 11

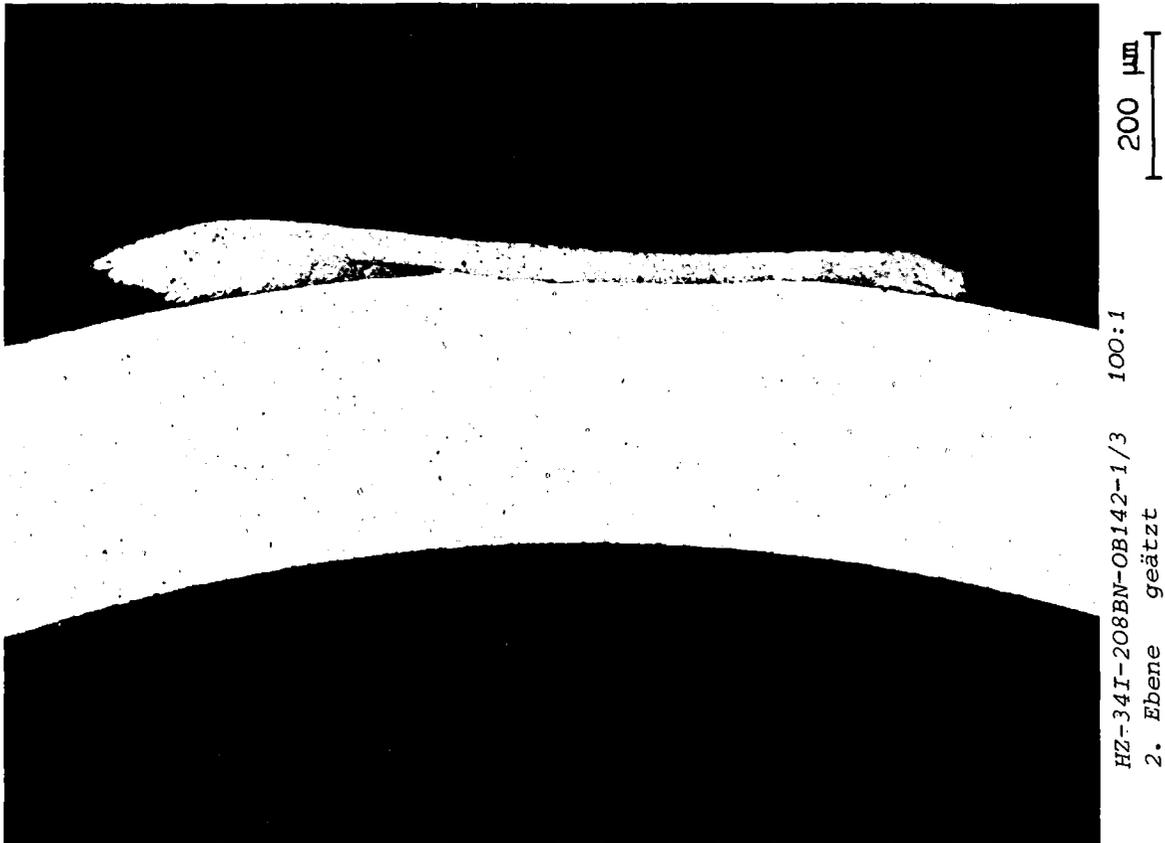


Bild 13: Met. angeätzter Schliff durch eine Reibmarke in gegenüber Bild 11 anderer Höhe des gleichen Stabes

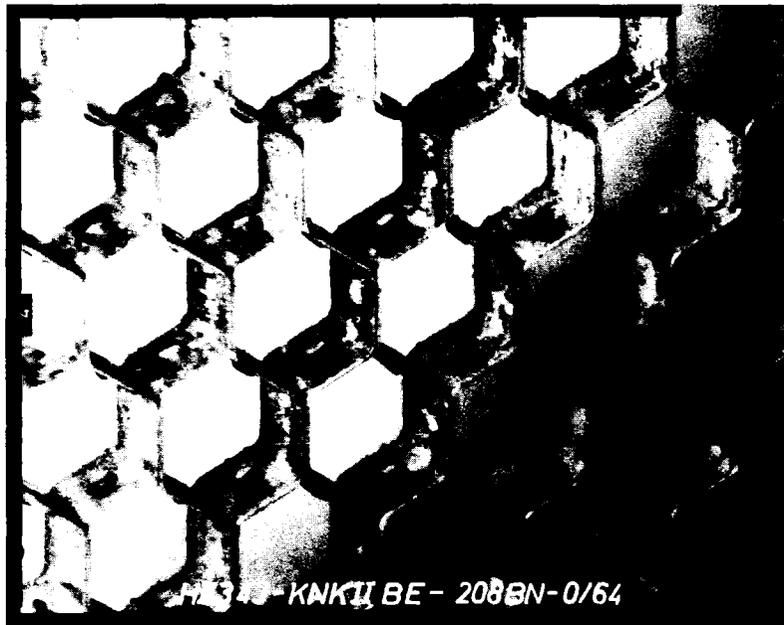


Bild 14: Ausschnitt des 3. Abstandshalters von oben vom 1. Defekt-BE

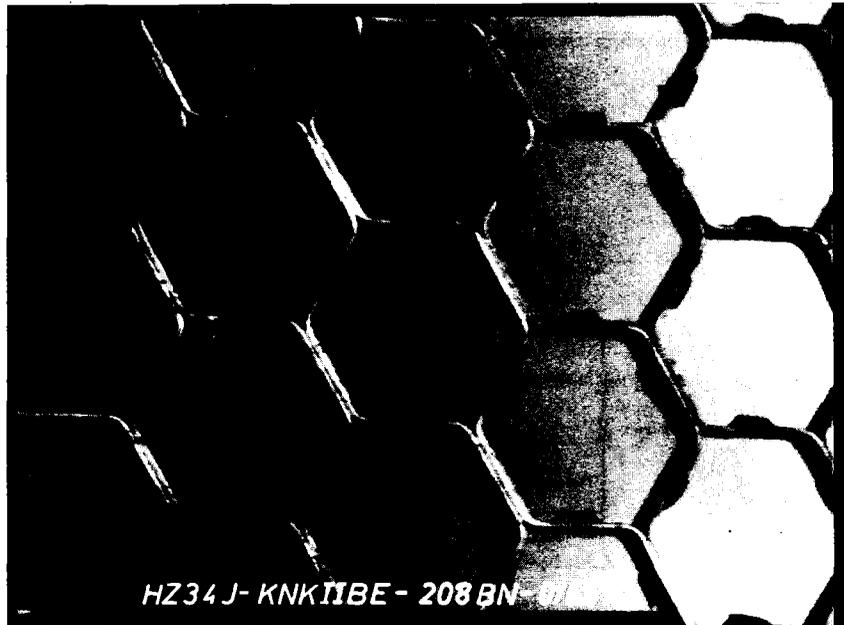


Bild 15: Ausschnitt des 3. Abstandhalters von oben vom 1. Defekt-BE mit abgeschliffenen Noppen

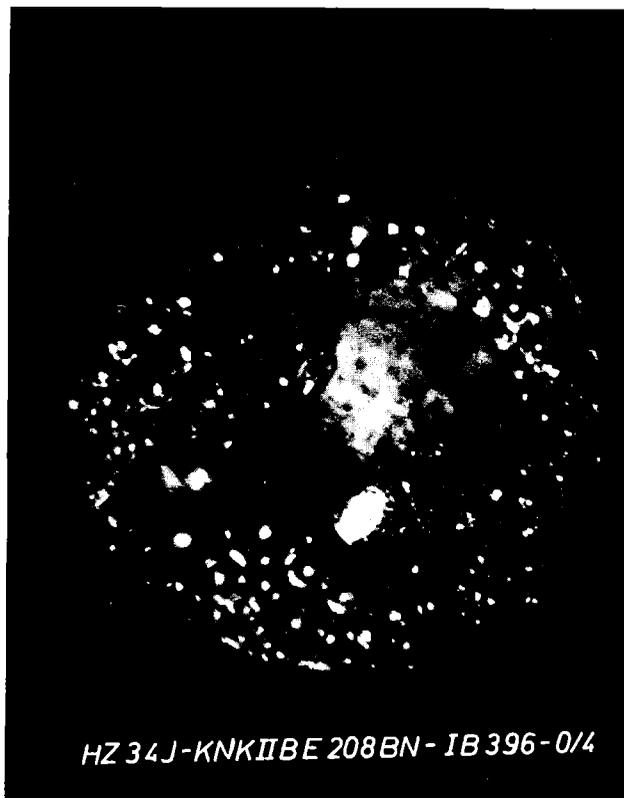
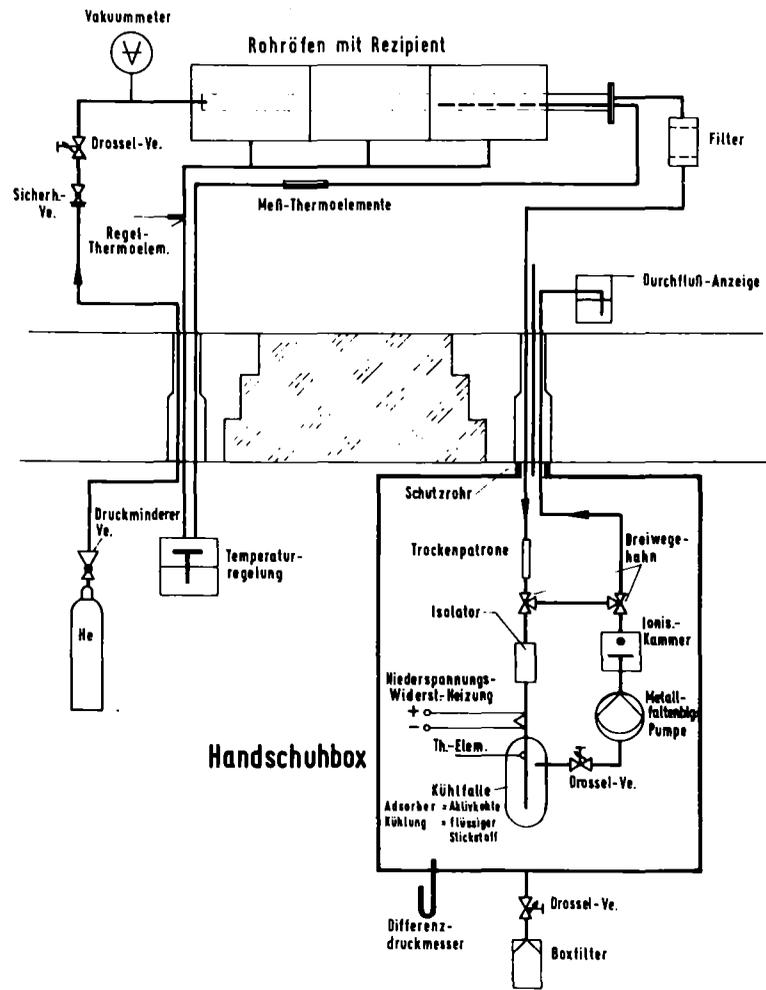


Bild 16: Aus der Schnittfläche des Defektstabes austretendes Natrium



Schema des „hot dry sipping Testes“ in Zelle 4  
für KNK 2 Brennstäbe

Bild 17: Schema des hot-dry-sipping-Testes



Bild 18: Riß im Defektstab des 1. Defekt-BE's. In 6 mm Abstand davon eine Reibmarke des 3. Abstandshalters von oben



Bild 19: Betatron-Aufnahme von 2 Stäben mit Leerstelle von 10 mm Länge in der Spaltstoffsäule eines Stabes

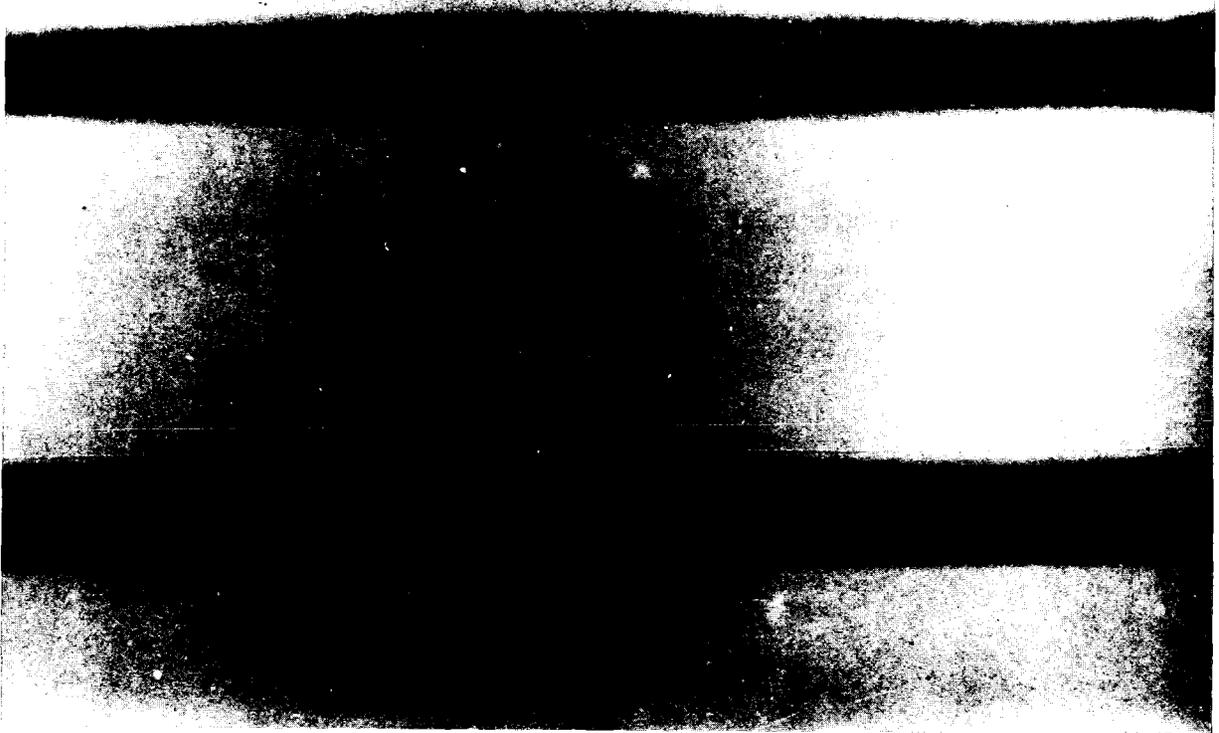


Bild 20: Betatron-Aufnahme von 2 Stäben mit zerstörtem Brennstoff-  
pellet

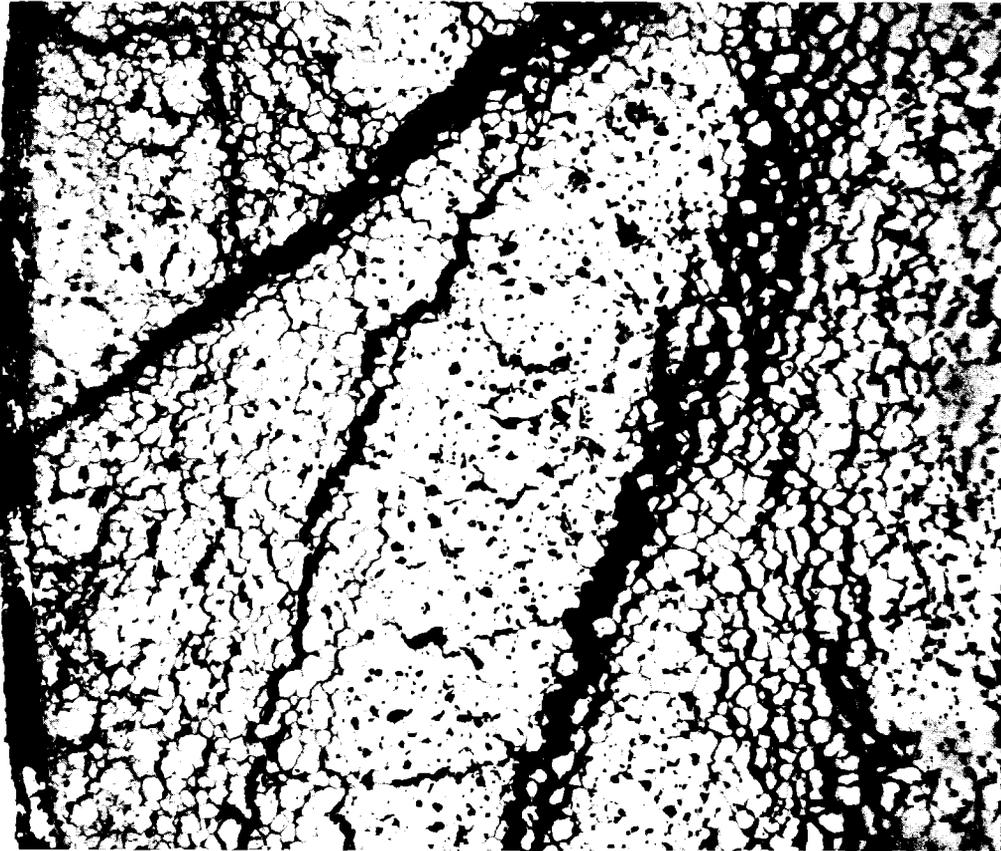


Bild 21: Ausschnitt aus einem metallografischen Querschliff durch den Defektstab des 1. BE's. Das Bild zeigt Veränderungen der Korngrenzen des Brennstoffes durch eingedrungenes Natrium, zwischen den Körnern Reaktionsprodukt des Natriums mit dem Brennstoff

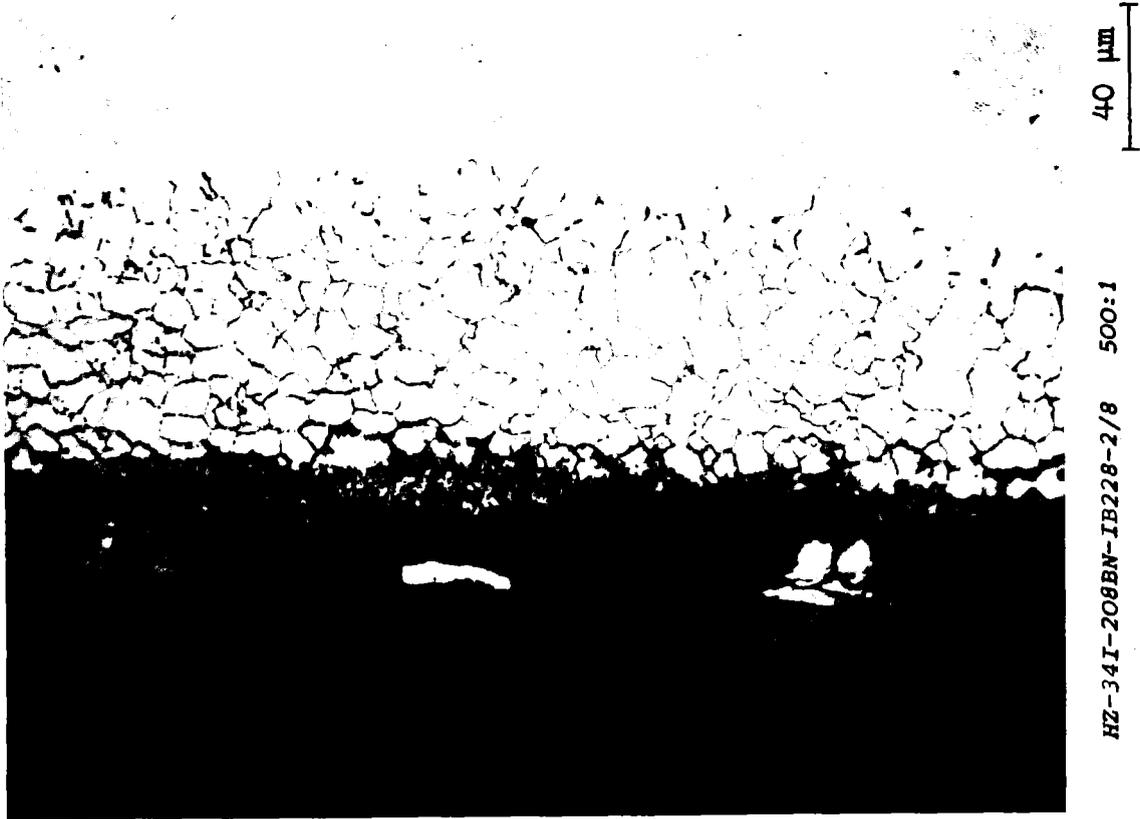


Bild 22: Korrosion an der Hüllrohr-Innenseite eines Stabes aus dem 1. Defekt-BE

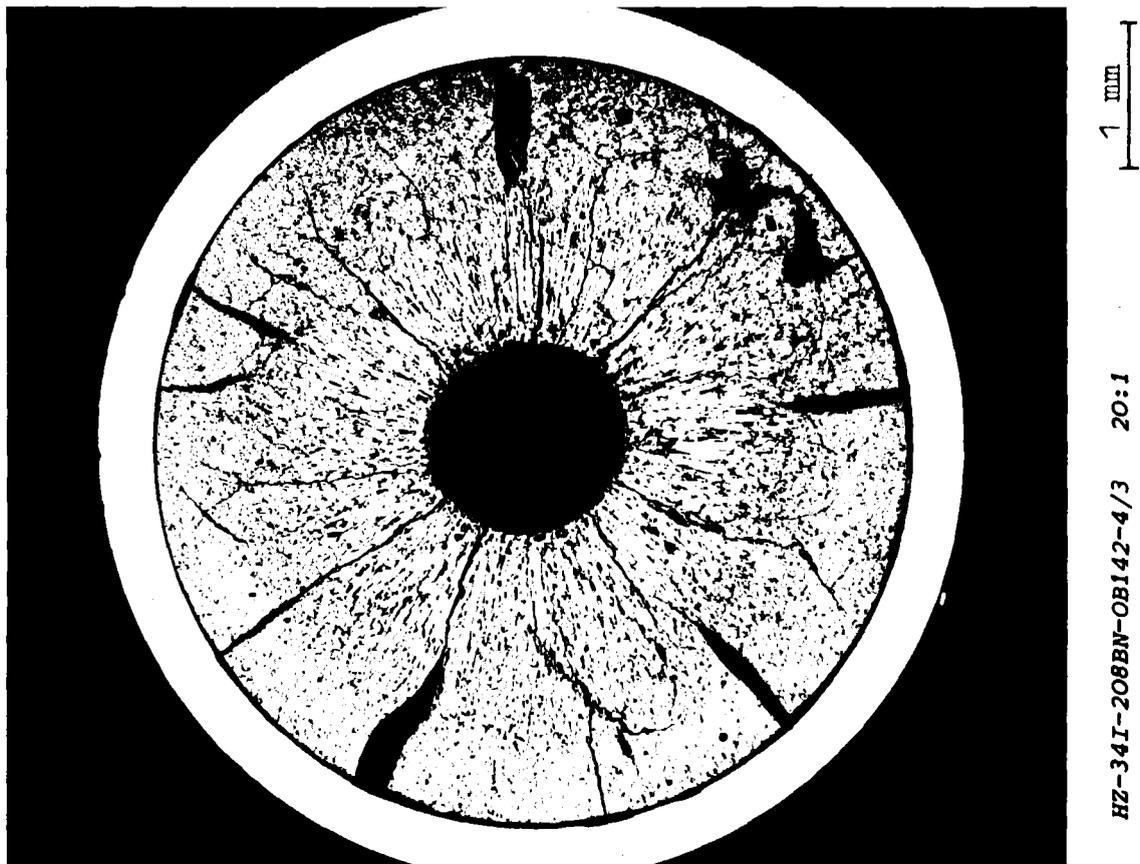


Bild 23: Metallografischer Querschliff durch einen der Brennstäbe des 1. Defekt-BE's

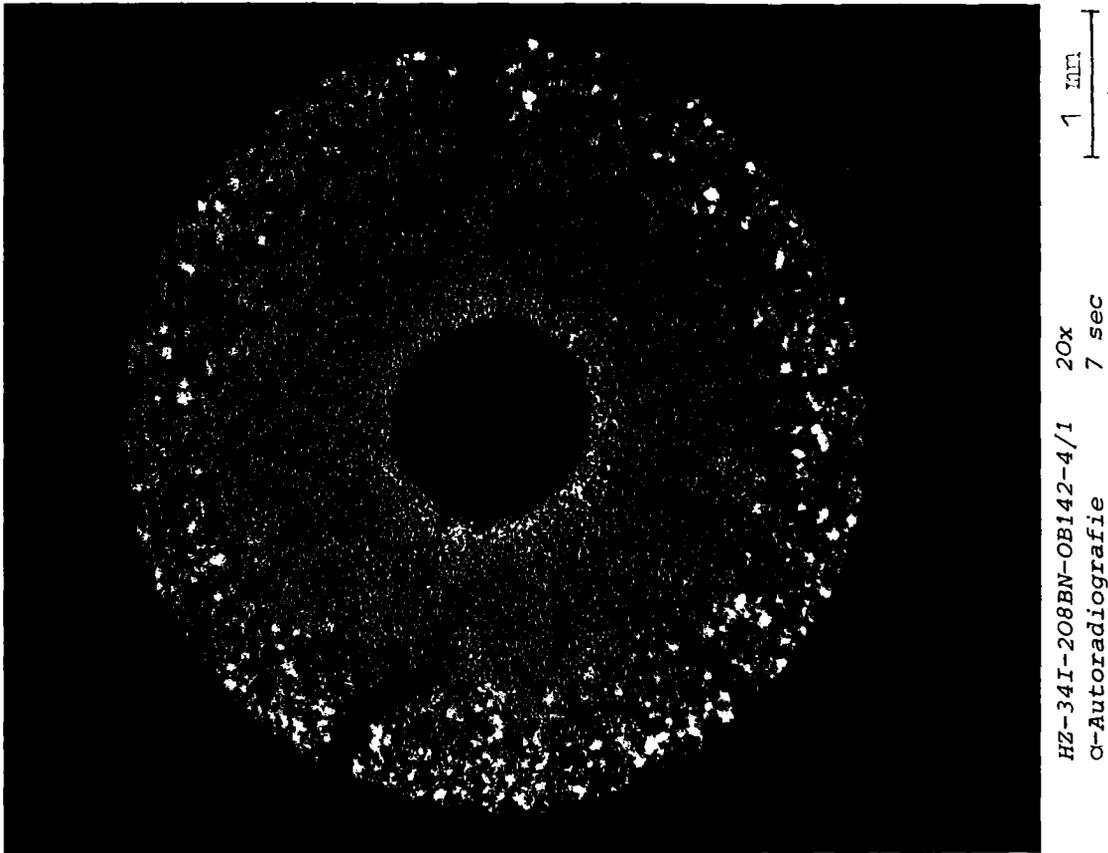


Bild 24:  $\alpha$ -Autoradiografie des Querschliffes aus B. 23.  
Die Pu-angereicherten Zonen erscheinen hell

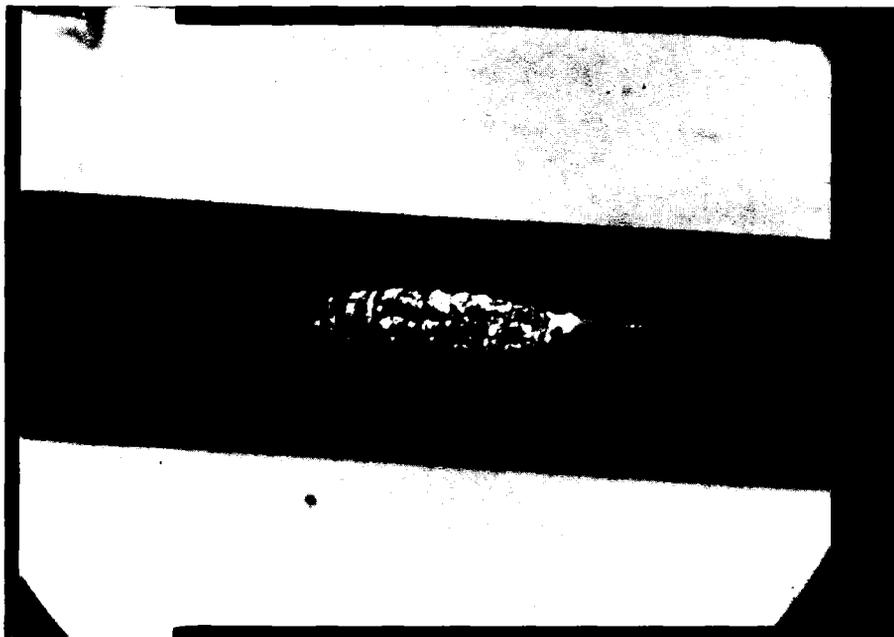


Bild 25: Reibmarke in Höhe des 3. Abstandshalters von oben an einem  
Stab des 2. Defekt-BE's

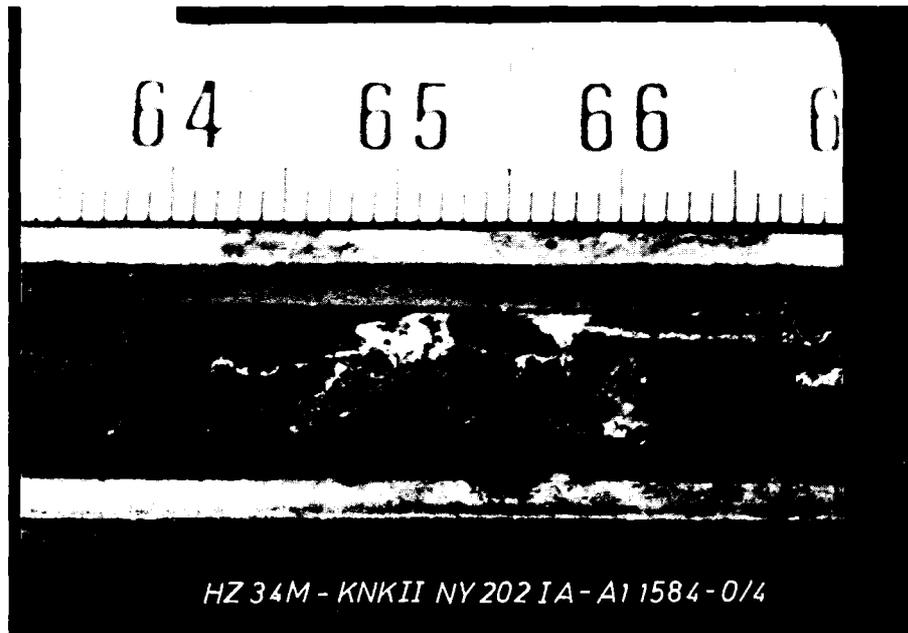


Bild 26: Riß im Defektstab des 2. Defekt-BE's



Bild 27: Zweiter Riß im Defektstab des 2. Defekt-BE's

Verfahren und Erfahrungen zur  
Wiederaufarbeitung von Schnellbrüterbrennstoffen

W. Ochsenfeld  
Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH  
Institut für Heiße Chemie  
Postfach 3640, D-7500 Karlsruhe

Zusammenfassung

Ein Vergleich von nichtwässrigen und wässrigen Wiederaufbereitungsverfahren wird in der Einführung gegeben.

Die für die Wiederaufarbeitung von Schnell Brüter Brennstoff relevanten Daten werden zusammengefaßt. Die Effekte verschiedener Core- und Blanket-Mischungen und Kühlzeiten auf die Wiederaufarbeitung werden betrachtet. Die Möglichkeiten zur Beherrschung der erhöhten Radiolyseeffekte bei kürzeren Kühlzeiten von SBR-Brennstoff werden diskutiert.

Versuche mit SBR-Brennstoff in der Laboranlage MILLI werden zusammengefaßt.

Abstract

A comparison of non-aqueous and aqueous reprocessing processes is given in the introduction.

Data relevant reprocessing of FBR-fuels are compiled. The effects of mixing core and blankets and of different cooling times are compared with those of treating LWR-fuel. Possibilities of overcoming the effects of enhanced radiolysis at short cooling times are discussed.

Experiments with irradiated FBR-fuel in the MILLI facility are summarized.

Es wurde angeregt, im Rahmen meines Beitrages auch kurz auf den Stand der nichtwässrigen Wiederaufbereitungsverfahren einzugehen.

Es mag wohl nicht allgemein bekannt sein, daß wir im Institut für Heiße Chemie in den ersten Jahren, von 1961 bis 1965, neben Extraktionsuntersuchungen ein breitgefächertes Versuchsprogramm verschiedener nichtwässriger Verfahren (Abb. 1) hatten:

- Verflüchtigung durch Chlorierung, und später Teilnahme an Fluorierungsversuchen der CNEN MoI
- Air-ox-Verfahren
- Salzschnmelzen, und später Verfolgen der belgischen Arbeiten mit Nitrat-Schnmelzen
- Mitarbeit eines Wissenschaftlers an dem "Skull Reclamation"-Verfahren der Metallschnmelzen in Argonne, USA.

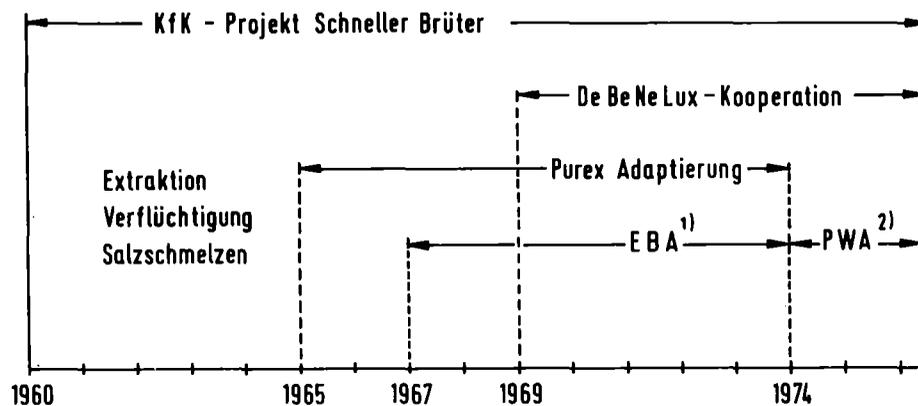


Abb. 1

1) EBA - Entwicklungsprogramm Brennstoff-Aufarbeitung

2) PWA - Projekt Wiederaufarbeitung und Abfallbehandlung

Wie Sie sehen, waren im Institut nicht nur gute Literaturkenntnisse auf verschiedenen Gebieten vorhanden, sondern es wurde auch - im Rahmen der Gegebenheiten - an verschiedenen Verfahren experimentell gearbeitet.

Auch für wässrige Extraktionsverfahren wurden zu dieser Zeit verschiedene Extraktionsmittel untersucht, wie Dibutyläther weiterhin Quarternäre- und Tertiäre-Amine bevor man sich dann 1965 ausschließlich dem PUREX-Verfahren zuwandte.

### Argumente für nichtwässrige Verfahren

Welches waren die erwarteten Vorteile, die die Untersuchungen der nichtwässrigen Verfahren rechtfertigten? (Tab. 1).

In der Tabelle 1 sind die erwarteten Vorteile und möglichen Nachteile dieser Verfahren zusammengefaßt.

#### Tab. 1: Nichtwässrige Verfahren

##### Erwartete Vorteile:

1. Prozeßschritte weniger, manchmal einfacher.
2. Kurze Kühlzeiten möglich.
3. Raumbedarf - abgeschirmt - geringer.
4. Konversionsschritte vermeidbar.
5. Abfall-Volumina kleiner.
6. Festabfall direkt anfallend.
7. Kritikalität. Abwesenheit von Neutronenmoderatoren und Reflektoren.

##### Nachteile:

1. Entwicklungsstand gering.
2. Hohe Temperaturen erforderlich,  
Handhabung schwierig.
3. Niedrige Dekontaminationsfaktoren  
(Folge: Fernbediente Refabrikation)  
Ausnahme: Fluorid-Verflüchtigung.
4. Plutonium-Ausbeute oft ungenügend.
5. Massenbegrenzung wegen Kritikalität.

Vergleich verschiedener Wiederaufbereitungsverfahren

Tab. 2: Vergleich PUREX - Trockene Verfahren

	<u>PUREX</u>	<u>Trockene Verfahren</u>
<u>Verfahren:</u>	wässrig, Extraktion kontinuierliches Verfahren.	<ol style="list-style-type: none"> <li>1 <u>Metall-Schmelzen</u> (EBR) chargenweise.</li> <li>2 <u>Verflüchtigung durch Fluorierung kontinuierlich?</u></li> <li>3 <u>Air-ox</u>: Behandlung abwechselnd mit O<sub>2</sub> und H<sub>2</sub>. Freisetzung der flüchtigen Spaltprodukte. Kontinuierlich möglich. Nach einigen Zyklen wässrige Pu-Rückgewinnung doch nötig.</li> </ol>
<u>Reinigungseffekt</u>	: DF 10 <sup>7</sup> - 10 <sup>8</sup>	<ol style="list-style-type: none"> <li>1 Gering, Pu-Verluste beträchtlich.</li> <li>2 10<sup>6</sup>, Pu-Verluste beträchtlich.</li> <li>3 Nur flüchtige Spaltprodukte, geringe Pu-Verluste.</li> </ol>
<u>Pu-Verluste</u>	: Pu < 2 %	
<u>Refabrikationsverfahren</u>	: Industriell angewendet. Für SBR-BE lokale Abschirmung nötig.	<ol style="list-style-type: none"> <li>1 Nur Metalle, Pilot-Maßstab.</li> <li>2 Etwas ungünstiger als nach PUREX.</li> <li>3 Fernbediente Refabrikation, nicht entwickelt, teuer.</li> </ol>
<u>Technischer Entwicklungsstand</u>	: Seit 25 Jahren industriell für LWR angewendet. Für SBR anwendbar.	<ol style="list-style-type: none"> <li>1 In Pilot-Maßstab EBR II für metallische Brennstoffe. Wegen der Pu-Verluste im Schmelztiegel zusätzlich "Skull-Reclamation" entwickelt.</li> <li>2 Im kleinen Pilot-Maßstab in der USA, UdSSR, Frankreich, Belgien Instabilität von PuF<sub>6</sub>, Pu-Verluste. Kritikalitätsproblem.</li> <li>3 Air-ox nur Labormaßstab. Bei größeren Durchsätzen Wirbelschicht oder Drehofen, Kritikalitätsfragen, Aerosolabtrennung und Ru im Abgas unerwünscht.</li> </ol>

In der Tabelle 2 ist ein Vergleich des PUREX-Verfahrens mit den drei am weitesten entwickelten und erfolgversprechendsten nichtwässrigen Verfah-

ren - der Metallschmelze, der Fluorierung und dem Air-ox-Verfahren - versucht worden.

Die Metallschmelzen sind für metallische Brennstoffe geeignet. In den USA wurde das Verfahren für EBR II-Brennstoffe angewandt. Die Anlage war für fernbedienten, chargenweisen Betrieb ausgelegt. Zur Rückgewinnung der beträchtlichen (20 %) Plutoniumverluste im Tiegelmateriale mußte ein zusätzlicher - nicht einfacher - Schnitt, das sogenannte "Skull Reclamation" entwickelt werden.

Heute wird eine Salzschnmelzen-Raffination (Molten Salt Refining) für die Reinigung von Plutonium-Metall in industriellem Maßstab in Rocky Flats, USA, verwendet. Allerdings erfordert dieser Prozess auch einen aufwendigen wässrigen Nebenprozeß zur Plutonium-Rückgewinnung aus den Salzschnrückständen. Das Americium wird aus den Salzschnrückständen durch Ionenaustausch abgetrennt.

Von den Verflüchtigungsverfahren seien hier nur zwei erwähnt: die Fluorierung und das Air-ox-Verfahren.

Mit der Fluorierung kann man durch Verflüchtigung der Hexafluoride des Urans und Plutoniums in einem Schritt hohe Dekontaminationsfaktoren ( $10^7$  bzw.  $10^5$ ) erreichen, zum Unterschied gegenüber den anderen Verfahren mit geringeren Dekontaminationsfaktoren. Entscheidend für Brüter-Brennstoffe ist jedoch, daß Plutoniumhexafluorid instabil ist, sich leicht in weniger flüchtige Verbindungen zersetzt, die sich an den Wänden und in den Rohren der Anlage ablagern. Dies führt zu Verlusten und Kritikalitätsgefahr. Hinweisen sei noch auf Werkstoffprobleme, die sich infolge der Korrosivität des Fluors bei den notwendigen Reaktions-Temperaturen von  $\sim 400$  °C ergeben.

Im Air-ox-Verfahren werden durch abwechselnde oxidative (Sauerstoff) und reduktive (Wasserstoff) Behandlung des Brennstoffs bei erhöhter Temperatur gasförmige (Jod, Edelgase) und flüchtige (Cs, Ru) Spaltprodukte freigesetzt. Die erreichbaren Dekontaminationsfaktoren sind gering. Das an sich einfache Verfahren ist nur gekoppelt mit einer fernbedienten Refabrikation - die noch entwickelt werden müßte - anwendbar. Darüber hinaus ist nach einer gewissen - heute noch unbestimmten - Zahl von Zyklen des Brenn-

stoffs doch noch eine Reinigung und Abtrennung des Plutoniums nach einem wässrigen Verfahren notwendig.

### Das PUREX-Verfahren

Nach diesem kurzen Überblick über die nichtwässrigen Verfahren, möchte ich mich dem zur Zeit technisch einzig angewandten PUREX-Verfahren zur Wiederaufarbeitung mittels Flüssig-Flüssig Extraktion zuwenden.

Das PUREX-Verfahren wird für LWR-Brennstoffe seit langem in Anlagen bis zu 5 t/Tag betrieben. Für SBR-Brennstoff liegen Erfahrungen im Pilot-Maßstab in England, Frankreich und möglicherweise UdSSR vor, im Labor-Maßstab in den USA und in der Bundesrepublik Deutschland.

Aus Handhabungsgründen, weiterhin um die Bedingungen der Wiederaufarbeitung zu erleichtern schlagen wir vor, Core- und Axial-Blankets gemeinsam aufzuarbeiten. Die Menge des Brennstoffs gegenüber der des Cores allein wird dabei um etwa 66 % erhöht, gleichzeitig jedoch die Plutonium- und Spaltproduktkonzentration um ca. 37 % erniedrigt. Das radiale Blanket, mit geringer Pu-Konzentration (ca. 1,6 %) und geringem Abbrand, sollte am besten in einer Anlage für LWR-Brennstoffe aufgearbeitet werden. Bemerkenswert sei hier nur, daß die pro GW(e) jährlich zur Wiederaufarbeitung gelangende gesamte Brennstoff-Menge aus dem Brüter von 38 to etwa gleich der aus LWR anfallenden Menge von 34 to ( $\sim 34000$  MWd/t) ist.

### Vergleich SBR - LWR

Bei der Wiederaufarbeitung von Schnell-Brüter Brennstoff kann auf die Erfahrungen der LWR-Wiederaufarbeitung gebaut werden. Die wesentlichen Unterschiede gegenüber LWR-Brennstoffen sind die etwa 10 fache Pu-Konzentration und die - hauptsächlich durch die erwünschten kurzen Kühlzeiten bedingte - größere Strahlenbelastung des Extraktionsmittels. Die Exposition des Extraktionsmittels ist proportional der Radioaktivität der Brennstofflösung bei gleichbleibender Kontaktzeit.

Die Zerfallswärme des Gemisches von Core- und Axial-Blanket ist etwa 60 % bis 80 % höher als die eines LWR-Brennstoffs (Standard-Abbrand 34000 MWd/t) derselben Kühlzeit. Kürzung der Kühlzeit von 1 Jahr auf 160 Tage verdoppelt die Zerfallswärme (Tab. 3).

Tab. 3: Pu % und radioaktive Zerfallswärme nach Abbrand

	<u>SBR</u>			<u>LWR</u>
	Core	Core- und Ax.-Blanket	Core- und ges. Blanket	
Abbrand MWd/kg	77,5	48,5	33	34
Pu %	17,1	11,0	7,8	1
Therm. Leistung (W/kg) Kühlzeit				
30 d	137	85	58	47
90 d	78	48	33	27
160 d	55	34	23	19
365 d	28	17	12	11

Folgen der erhöhten Strahlung

Erhöhte Radioaktivität hat Folgen im 1. Extraktionszyklus. Die Zersetzungsprodukte - HDBP und H<sub>2</sub>MBP - des Tributylphosphats (TBP) bilden mit Spaltprodukten, hauptsächlich Zirkon und Ruthen, Verbindungen die zu Emulsionen und Ausfällungen in den Extraktoren führen können. Diese Ausscheidungen, auch "Crud" genannt, können mit chemischen Mitteln unterdrückt bzw. behoben werden. Beispielsweise durch hohe Beladung der organischen Phase oder durch Komplexierung des Zirkons mittels Fluorid-Zugabe. Beide Maßnahmen jedoch können bei nicht Einhalten der Betriebsgrenzen zu Störungen führen.

Am effektivsten ist die Anwendung von Extraktoren, die einerseits eine kurze Aufenthaltszeit, demzufolge geringe Strahlen-Exposition, andererseits eine leichte Entfernung eventueller Ausfällungen ermöglichen. Im 1. Extraktionszyklus wird man deshalb Pulskolonnen wählen, die eine etwa 4 mal kürzere Kontaktzeit und bei kontinuierlicher organischer Phase, d.h. der Phasengrenze am Boden der Kolonne, ein Absaugen solcher Ausscheidungen ohne Brennstoff-Verlust ermöglichen. Die Strahlenbelastung von 30 % TBP/Alkan errechnet sich in einer Pulskolonne von 20 cm Durchmesser und 1 Tonne pro Tag Durchsatz bei Kühlzeiten von 1 Jahr zu 0.07 Wattstunden pro Liter, mit einer Bildung von 5 mg HDBP/l. Bei 160 Tagen Kühlzeit

verdoppeln sich diese Zahlen. In unseren Versuchen in Misch-Absetzern der MILLI-Anlage wurden 5-20 mg HDBP/l im Extraktionsmittel nach dem 1. Zyklus bei Kühlzeiten zwischen 5 und 0.65 Jahren gefunden.

#### Geforderte Dekontaminationsfaktoren (DF)

Eine nicht fernbediente Refabrikation wie bisher vorausgesetzt, mit lokaler Abschirmung an kritischen Stellen, kann man von den jetzt für LWR-Brennstoffe gültigen Produkt-Spezifikationen auch für SBR-Brennstoff-Produkte ausgehen. Nach diesen Spezifikationen soll das Uran-Produkt pro g Uran  $< 0.5 \mu\text{Ci}$  (Zr95, Nb 95, Ru 103, Ru 106, Cs 137, Ce 144) und  $< 1500 \text{ dpm } \alpha$  enthalten.

Im Plutonium-Produkt werden pro g Pu  $< 40 \mu\text{Ci}$  (Zr 95, Nb 95, Ru 103, Ru 106, Cs 137, Ce 144) und 5000 dpm Am zugelassen.

Ein Vergleich der für diese Produkt-Spezifikation zu erreichenden  $\gamma$ -DF's nach 1 Jahr Kühlzeit zeigt, daß bei einer Core- und Axial-Blanket-Mischung für das Uran ein 1.4 fach höherer DF, für das Plutonium ein etwa 8 mal geringerer DF als bei LWR-Brennstoff (34000 MWd/t Abbrand) erforderlich wäre. Der geringere DF für das Plutoniumprodukt ist auf den etwa 10 fach höheren Plutoniumgehalt der SBR-Brennstoffe zurückzuführen und könnte schon in zwei Extraktionszyklen erreicht werden.

Für Uran sind die nötigen DF's in drei Extraktions-Zyklen voraussichtlich auch bei kürzeren Kühlzeiten zu erreichen, vorausgesetzt, daß durch die Wahl geeigneter Extraktoren (Kolonnen) die Schwierigkeiten durch Radiolyse vermieden werden.

#### Ergebnisse der Versuche in MILLI

In Versuchen mit hochabgebrannten Schnell-Brüter-Brennstoffen - leider hatten wir bisher nur Brennstoffe mit langen Kühlzeiten zur Verfügung - erreichten wir die gewünschten Uran-Produktspezifikationen in drei Extraktionszyklen.

In der Tabelle 4 sind die Daten der bisher in MILLI aufgearbeiteten Schnell-Brüter-Brennstoffe zusammengefaßt.

Tab. 4: Wiederaufarbeitung hochabgebrannter SBR-Brennstoffe in MILLI

MILLI		Brennstoff			Herkunft	Bemerkung
Kampagne	Jahr	Pu %	Abbrand MWd/kg	Kühlzeit a		
3	1972	15	50-60	7.5	Engl. <sup>1)</sup> - DFR	Pu an UKAEA Uang. an NUKEM
14	1979	30	54	5.2	Alkem - DFR	
14	1979	30	75	4.8	Belgonucl. - Mol	
16	1980	30	10-40	5-8	TU <sup>2)</sup>	Pu u. Uang. an TU
17	1981	30	13	1.9	KNK II	Pu u. Uang. zur Refabr.
18	1981/82	30	31	1	KNK II	Versuch vor- gesehen

1) Kopräzipitierter Brennstoff

2) Oxidierte Karbonitrid-Bestrahlungsproben

Alle anderen Brennstoffe mechanische PuO<sub>2</sub> + UO<sub>2</sub>-Mischungen 1. Fabrikation.

Bei diesen Versuchen wurden verschiedene Parameter untersucht: Die Auflösung mechanisch-gemischter und kopräzipitierter PuO<sub>2</sub>-/UO<sub>2</sub>-Brennstoffe, die Extraktion von unverdünntem Core mit 30 % bzw. 15 % PuO<sub>2</sub> im Brennstoff, Core- und Axial-Blanket-Mischungen mit etwa 10 % Pu, der 1. Extraktionszyklus als Kodekontaminationszyklus, d.h. ohne Pu-/U-Trennung, und Trennung im 1. Zyklus mit U(IV), Pu-/U-Trennung im 2. Zyklus elektrolytisch im Misch-Absetzer (MILLI-EMMA), die Reinigung des getrennten Urans bzw. Plutoniums von Spaltprodukten insbesondere von Neptunium. Dies alles hat für die Auslegung des Prozesses Bedeutung.

Eine bedeutsame Entwicklung unseres Instituts - mit ersten Patenten weltweit - sind die elektrolytischen Verfahren. Infolge der Instabilität und Empfindlichkeit der - inzwischen behobenen - Anfangsschwierigkeiten des im Jahre 1965 neuen Verfahrens der Pu-/U-Trennung mit U(IV) wurde die elektrolytische Reduktion für die Rückextraktion des Pu im Extraktor ent-

wickelt. Das in der MILLI 1972/73 in Gegenstromversuchen erarbeitete Verfahren wird zur Pu-/U-Trennung und zur Pu-Rückextraktion in den Pu-Reinigungszyklen auch gegenwärtig in MILLI eingesetzt. Die erreichten Trennungen sind günstiger als mit U(IV), die Verhältnisse im Extraktor sind durch Strom-Dosierung besser zu kontrollieren. Ein besonderer Vorteil des Verfahrens ist das Vermeiden fremder Reduktionsmittel. U(IV) muß üblicherweise zur Reduktion in etwa dreifachem Überschuß gegenüber der Pu-Menge zugeführt werden. Bei 10 % Pu im (Pu + U)Brennstoff-Gemisch bedeutet dies eine etwa 30 %ige Erhöhung des Uranstroms durch U(IV).

Die gereinigten Produkte aus der MILLI, das Plutonium und Uran, wurden meistens zur Refabrikation dem Brennstoffhersteller zur Verfügung gestellt.

Die Wiederaufarbeitung von Brennstoff aus dem ersten  
defekten KNK II-Brennelement in der MILLI

H.-J. Bleyl

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH

Institut für Heiße Chemie

Postfach 3640, D-7500 Karlsruhe

Zusammenfassung

Der Brennstoff aus 32 KNK II-Brennstäben wurde in der MILLI nach dem PUREX-Prozeß wiederaufgearbeitet. Zur Anwendung kamen 3 Extraktionszyklen: Kodekontamination, Uran-/Plutonium-Trennung und Uran-Feinreinigung. Die Produkte wurden zwecks Weiterverarbeitung zu neuem KNK II-Brennstoff an die Firmen Nukem und Alkem weitergegeben.

Abstract

In MILLI reprocessing of fuel from 32 KNK II-pins was carried out. 3 extraction cycles were applied: co-decontamination, U-/Pu-separation and purification of uranium. The products were shipped to refabrication of KNK II fuel by Nukem and Alkem companies.

Zur Wiederaufarbeitung standen 32 Stäbe aus dem Brennelement NY 208 BN zur Verfügung. Der Brennstoff war 65 Vollasttage im Einsatz gewesen und hatte dabei einen Abbrand von im Durchschnitt 11.650 MWd/t erreicht. 25 Monate später erfolgte die Wiederaufarbeitung des Core- und Blanket-Materials.

Das Ziel der Wiederaufarbeitung bestand vor allem darin, Uran und Plutonium für eine erneute Verwendung bereitzustellen. Mit deren Wiederaufarbeitung zu neuem Brennstoff sollte das Schließen des Brennstoffkreislaufs demonstriert werden.

Die Wiederaufarbeitung erfolgte nach dem PUREX-Prozeß. Dessen Eignung für Brennstoffe aus thermischen Reaktoren ist in der MILLI bis zu hohen spezifischen Aktivitäten nachgewiesen worden. Im vorliegenden Fall waren Vergleiche mit Brennstoff eines schnellen Reaktors nur auf relativ niedrigem Aktivitätsniveau möglich und daher keine Schwierigkeiten zu erwarten, was sich als zutreffend erwies. Nach der Auflösung des Brennstoffs in 7 M Salpetersäure wurden 3 Extraktionszyklen angewandt, um die Produkte zu erhalten:

- ein Kodekontaminationszyklus,
- ein Uran-/Plutonium-Trennzyklus und
- ein Uran-Feinreinigungszyklus.

Im Folgenden werden manche Einzelheiten des Vorgehens näher erläutert und zugleich über die Ergebnisse berichtet.

Beim Kodekontaminationszyklus wurden 3 Extraktoren eingesetzt: HA(10), HS(14) und HC(16), in Klammern deren Stufenzahl. Die Brennstofflösung (HAF) hatte die in Abb. 1 angegebene Zusammensetzung, darüberhinaus war ihr wegen des Fluoridgehaltes noch Aluminium bis zur gleichen Molarität zugesetzt worden. Hingewiesen sei noch auf die 3 M Salpetersäure von HSS und HCX2, sowie auf die genannten Flußverhältnisse.

Verlauf und Ergebnisse des Kodekontaminationszyklus sind aus den Konzentrationsprofilen in Abb. 1 abzulesen. Für Uran, Plutonium und Protonen gilt der Ordinatenmaßstab [g/l], für die Spaltprodukte ist dort deren mit

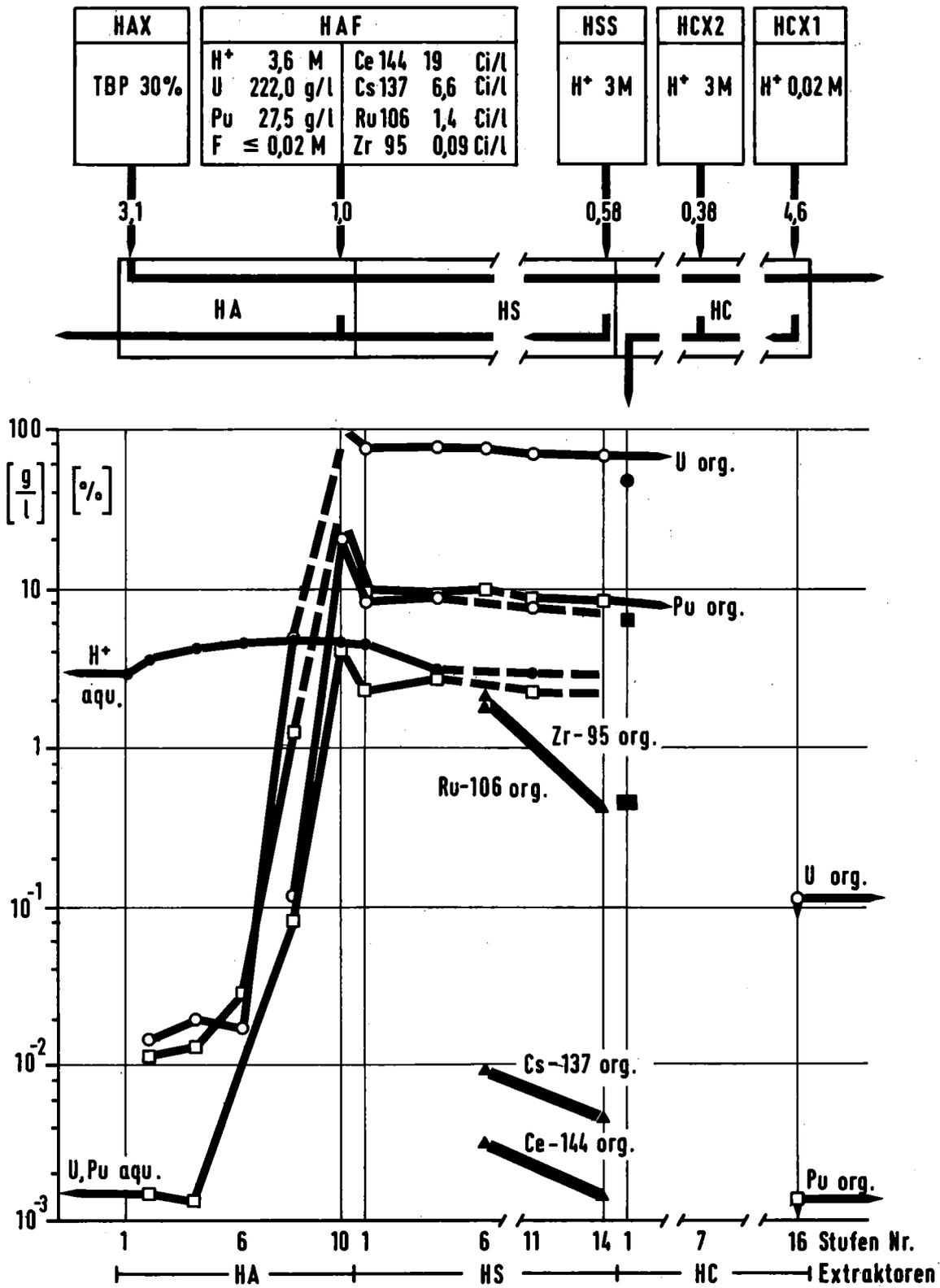


Abb. 1: Fließschema und Konzentrationsprofile des Kodekontaminationszyklus

Uran bzw. Plutonium noch vergesellschafteter Anteil [%] angegeben. Es ist zu erkennen, daß Uran und Plutonium bei einem Säureprofil zwischen 3 und 4 M weitgehend extrahiert werden. Die Plutonium-Konzentration von ca. 1 mg/l am Auslauf der wässrigen Lösung bedeutet einen Verlust in den Waste von  $<0,01$  %. Die Spaltprodukte andererseits sind in der Extraktionsmittellösung beim Verlassen des Extraktors HS bis auf kleine Anteile von Uran bzw. Plutonium abgetrennt worden. Für 4 Nuklide ergaben die Messungen: von Zirkon-95 und Ruthen-106 verblieben 0,4 %, für Cäsium-137 und Cer-144 wurden noch  $10^{-2}$  bis  $10^{-3}$  % festgestellt. Schließlich geht aus den eingetragenen Konzentrationen von Uran und Plutonium in den Ausläufen des Extraktors HC hervor, daß die Rückextraktion der Metalle weitgehend erfolgte. Die Säurestärke der Produktlösung betrug 0,5 M.

Nach Erhöhen der Salpetersäurekonzentration auf 2 M wurde die Produktlösung des 1. Extraktionszyklus in den Uran-/Plutonium-Trennzyklus eingespeist. Hier ging es neben der Trennung dieser Elemente auch um die weitergehende Reinigung von den Spaltprodukten. Der Zyklus umfaßte 5 Extraktoren: 1A(9), 1AS(7), 1BX(12), 1BS(4) und 1C(16). Bemerkenswert an den Betriebsergebnissen des Extraktors 1A war, daß die Plutoniumverluste in den Waste  $<0,1$  % betragen. Damit erwiesen sich die Bedingungen des Extraktors HC auch bezüglich der Wieder-Extrahierbarkeit des Plutoniums als günstig. Bei den Spaltprodukten Zirkon-95 und Ruthen-106 lagen die Trennfaktoren bei  $10^2$ .

Die Verfahrensweise bei der Uran-/Plutonium-Trennung ist in Abb. 2 wiedergegeben. Der Extraktor 1BX war mit Elektroden ausgestattet, so daß die Reduktion der Wertigkeit des Plutoniums elektrochemisch initiiert werden konnte. Die angewandten Stromstärken betragen zwischen 250 mA in Stufe 1 und 50 mA in Stufe 12. Mit der Lösung 1 BXS wurden nur 0,2 M Hydrazin und 0,1 M Salpetersäure zugeführt.

Die Profile im Extraktor 1BX (Abb. 2) zeigen eine steile Abnahme der Plutoniumkonzentration über mehr als 4 Größenordnungen bei etwa gleichbleibender Konzentration des Urans. Das in die wässrige Lösung überführte Plutonium wurde anschließend im Extraktor 1 BS erneut mit Extraktionsmittellösung kontaktiert, wobei das mitgeführte Uran um etwa 2 Größenordnungen abgereichert werden konnte. Für den Umfang der Uran-/Plutonium-Trennung ist das ebenfalls wiedergegebene Profil der Salpetersäure von großer Bedeutung.

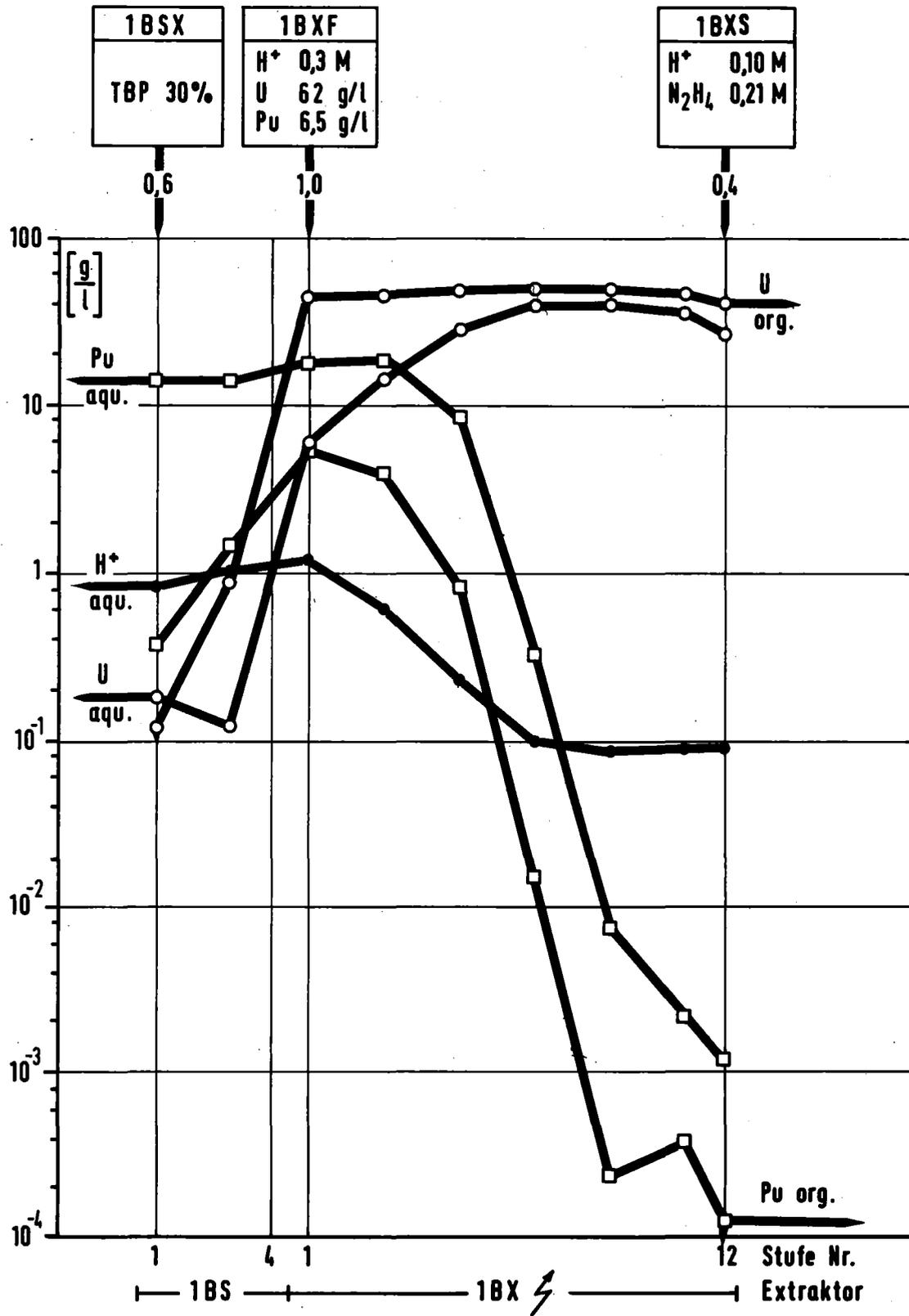


Abb. 2: Fließschema und Konzentrationsprofile der Extraktoren 1BS und 1BX des Uran-/Plutonium-Trennzyklus

Die aus dem Extraktor 1 BS erhaltene wässrige Plutoniumlösung entsprach bezüglich ihrer Aktivität an Spaltprodukten den gewöhnlich festgelegten Spezifikationen für das Endprodukt. Lediglich der Anteil des Urans mit 1,3 % übertraf das Ziel von 0,3 %, was aber hier keine Bedeutung hatte, da die Weiterverarbeitung bei der Brennstoffherstellung ohnehin nach einem Kopräzipitationsverfahren für Uran und Plutonium vorgesehen war. Die Zusammensetzung der Plutonium-Produktlösung nach deren Aufkonzentrieren ist in Tab. 1 aufgelistet, zusammen mit den gegenüber der Brennstofflösung erreichten Trennfaktoren. Die Lösung wurde von der Firma Alkem übernommen.

Tab. 1: Plutonium-Produktlösung sowie Trennfaktoren in Bezug auf die Brennstofflösung

		Trennfaktoren
Pu	234 g/l	-
U	3,0 g/l	$6,3 \cdot 10^2$
HNO <sub>3</sub>	6,2 M	-
Ru-106	100 $\mu$ Ci/l	$1,2 \cdot 10^5$
Zr-95	30 $\mu$ Ci/l	$2,6 \cdot 10^4$
Cs-137	20 $\mu$ Ci/l	$1 \cdot 10^6$
Sm, Eu, Gd, Dy	< 1 ppm	
Nb, Mo, Ag, Sn	$\geq 10$ ppm	

Im Uran-Feinreinigungszyklus mußten wiederum Uran-/Plutonium- und Uran-/Spaltprodukt-Trennungen durchgeführt werden. Der Zyklus bestand aus den Extraktoren 2D(9), 2DS(7) und 2E(16). Vom chemischen FlieBSchema ist vor allem die in den Extaktor 2DS eingespeiste und zum Extraktor 2D weitergeführte Uran-IV-Lösung charakteristisch. Das Verfahren führte zu einem spezifikationsgerechten Produkt. Die konzentrierte Uran-Produktlösung hatte die in Tab. 2 angegebenen Bestandteile und wurde an die Firma Nukem weitergegeben. Die genannten Trennfaktoren sind wegen der hohen Werte als Bereiche aufgeführt.

Tab. 2: Uran-Produktlösung, sowie Trennfaktoren in Bezug auf die Brennstofflösung

		Trennfaktoren
U	388 g/l	-
Pu	0,3 mg/l	$1,6 \cdot 10^5$
HNO <sub>3</sub>	0,1 M	-
Cs-137	0,9 µCi/l	$10^6-10^7$
Ce-144	0,3 µCi/l	$10^7-10^8$
Fe	20 ppm	-
Co, Ni	< 10 ppm	-

An der Wiederaufarbeitung des Kernbrennstoffs aus dem KNK II waren seitens des Instituts für Heiße Chemie Herr Dr. W. Ochsenfeld sowie die Mitarbeiter der MILLI und der Prozeßanalytik beteiligt. Weitere Beiträge leisteten Kollegen von den Heißen Zellen und aus der Gruppe Analytik des Instituts für Radiochemie.

Die Zusammensetzung von Rückständen bei der Auflösung von  
bestrahltem Schnellbrüter-Mischoxidbrennstoff

H. Kleykamp

Kernforschungszentrum Karlsruhe  
Institut für Material- und Festkörperforschung  
7500 Karlsruhe 1, Postfach 3640  
Bundesrepublik Deutschland

Zusammenfassung

Schnellbrüter-Mischoxidbrennstoff aus dem Bestrahlungsexperiment DFR 455 mit einem maximalen Abbrand von 5,3% wurde in 7 bis 10 n Salpetersäure aufgelöst. Morphologie, Zusammensetzung, chemischer Zustand und Struktur des auftretenden Rückstands wurden mit Hilfe der Rasterelektronenmikroskopie, der Elektronenstrahl-Mikrosonde und der Röntgenbeugung untersucht. Drei verschiedene Phasen wurden beobachtet: (1) unvollständig gelöstes plutoniumreiches  $(U,Pu)O_2$ ; (2) unvollständig gelöste metallische Spaltproduktausscheidungen in hexagonaler Struktur mit den Komponenten Mo, Tc, Ru, Rh und Pd; (3) aus der salpetersauren Lösung wieder ausgefallene oxidische Phasen mit den Hauptkomponenten Mo und Ru. Der Pu-Gehalt im Rückstand beträgt 1,9 bis 4,5% bezogen auf den Pu-Anteil im Brennstoff und etwa 40% bezogen auf die Gesamtmenge des Rückstands.

Abstract

Fast breeder reactor mixed oxide fuel irradiated within the experiment DFR 455 up to 5.3% maximum burnup has been dissolved in 7 to 10 n  $HNO_3$ . Morphology, composition, chemical state and structure of the resulting residues have been analyzed by means of scanning electron microscopy, electron probe microanalysis, and x-ray diffractometry. Three types of phases have been observed: (1) incompletely dissolved plutonium rich  $(U,Pu)O_2$ ; (2) incompletely dissolved metallic alloys of hexagonal structure formed by the fission products Mo, Tc, Ru, Rh, and Pd; (3) oxidic phases reprecipitated from the nitric acid solution with Mo and Ru as the main components. The Pu content in the residues is 1.9 to 4.5% of the Pu fraction in the fuel and approx. 40% of the total amount of the residues.

Durch die Wiederaufarbeitung des bestrahlten Uran-Plutonium-Oxids und die Rückführung des gewonnenen Plutoniums in den Refabrikationsprozeß wird der Kreislauf des Schnellbrüterbrennstoffs geschlossen. Nach dem Auflösungsprozeß des Brennstoffs werden aber feste Rückstände beobachtet, die Plutonium enthalten, das dem Kreislauf verloren geht. Ferner treten in den Rückständen Spaltprodukte in einem unerwünschten chemischen Zustand auf, die der Konditionierung des Abfalls Schwierigkeiten bereiten können. Durch Optimierung der Herstellungsbedingungen ist es jedoch gelungen, die Auflösbarkeit des Brennstoffs bereits im unbestrahlten Zustand wesentlich zu verbessern /1/. Durch Variation der Auflösungsbedingungen ist es ferner möglich, den chemischen Zustand des Rückstands, insbesondere der Spaltprodukte, hinsichtlich der Abfallbehandlung zu optimieren.

#### 1. Das (U,Pu)O<sub>2</sub>-Brennstabbündelbestrahlungsexperiment DFR 455

Gezielte Auflösungsversuche wurden an abgebranntem Uran-Plutonium-Oxid aus dem Brennstabbündelbestrahlungsexperiment DFR 455 durchgeführt. Das Bündel besteht aus 60 Mischoxid-Brennstäben mit einem Durchmesser von 6 mm, die mechanisch gemischten Alkem- und Belgonucléaire-Brennstoff mit 30% PuO<sub>2</sub> bezogen auf das Oxid und eine U-235-Anreicherung von 93% bezogen auf den Uran-Anteil enthalten. Die Länge der Brennstoffsäule in jedem Stab beträgt 440 mm, an deren beiden Enden schließen sich Brutstoffzonen an. Das Bündel wurde im Dounreay Fast Reactor DFR bis zu einem Abbrand von 5,3% im Bereich maximaler Stabileistung von 45 kW/m bestrahlt.

Das Plutonium reichert sich unter Bestrahlung am Zentralkanal des Brennstabs an; die Höhe hängt vom Ausgangs-O/M-Verhältnis und der relativen Dichte des Brennstoffs sowie von den Bestrahlungsbedingungen ab /2/. In der inneren Säulenkristallzone wird bei nahezu stöchiometrischem Brennstoff i.a. eine Plutonium-Anreicherung bis zu 50% PuO<sub>2</sub> relativ beobachtet. In der äußeren unstrukturierteren Brennstoffzone treten plutoniumreiche Partikel auf, die Bestandteile des aus UO<sub>2</sub> und PuO<sub>2</sub> gemischten Brennstoffs sind, der in diesem Bereich unter Bestrahlung keinen vollständigen Mischkristall gebildet hat. Der nicht aufgelöste Brennstoff stammt aus diesen beiden Bereichen. Im Brennstoff werden ferner verschiedene Arten von Spaltproduktausscheidungen beobachtet /2/. Eine metallische Phase, die die Spaltprodukte Molybdän, Technetium, Ruthenium, Rhodium und Palladium enthält, bildet runde, bis zu 10 µm große Ausscheidungen, die im Brennstoffgefüge besonders deutlich hervortreten. Sie sind in Salpetersäure schwer auflösbar.

## 2. Experimentelles zur Präparation und zur Analyse des Lösungsrückstands

An dem Brennstoff des Bestrahlungsexperiments DFR 455 wurde nach einer Abkühlzeit von etwa vier Jahren mit einer Reihe von Auflösungsversuchen in reiner Salpetersäure mit unterschiedlichem  $\text{HNO}_3$ /Brennstoff-Verhältnis begonnen. Die Stäbe wurden in kurze Stababschnitte getrennt; der Brennstoff wurde durch die Säure aus den Hülsen herausgelöst. Nach dem Trocknungsprozeß lag der Rückstand als feinkörniges schwarzes Pulver vor. Lösungsrückstände aus ausgewählten Stababschnitten der Stäbe 1A85 /3/ sowie 1A61 und 8A5 /4,5/ wurden mit Hilfe der Rasterelektronenmikroskopie, der Elektronenstrahl-Mikrosonde und der Röntgenbeugung /6/ analysiert. Neben der Identifizierung der Phasen und der Bestimmung des chemischen Zustands des Lösungsrückstands sollte nachgewiesen werden, ob das Salpetersäure/Brennstoff-Verhältnis einen Einfluß auf Menge und Zusammensetzung des Rückstands hat. Die Brennstoff-, Bestrahlungs- und Auflösungsparameter sind in Tabelle 1 angegeben.

Stab	1A85	1A61	8A5
Probe	halber Stab	6/7	3
lokaler Abbrand	≈ 4,5 %	5,2 %	4,0 %
Brennstoffmasse	35,05 g	10,775 g	5,975 g
Säurevolumen $\text{HNO}_3$	240 ml	54 ml	150 ml
Säurekonzentration	7 n	10 n	10 n
$\text{HNO}_3$ /Brennstoff*	8,4	6,5	32,6
Rückstandsmasse	0,560 g	0,360 g	0,233 g
Rückstand/Brennstoff*	0,016	0,033	0,039

\* Massenverhältnis

Tab.1: Brennstoff-, Bestrahlungs- und Auflösungsparameter für den DFR 455-Brennstoff in der Zusammensetzung  $0_{0,7}\text{Pu}_{0,3}\text{O}_{1,985}$  /3,4,5/

## 3. Ergebnisse

Ein geringer Anteil des Lösungsrückstands aus dem Stab 1A61 befand sich auf einem Bruchstück des Filters, mit dem die Lösung abfiltriert worden war. Das rasterelektronenmikroskopische Bild (Abb.1) liefert einen Eindruck von der Morphologie des Rückstands unmittelbar nach der Filtrierung. Die runden Partikel sind Spaltedelmetallausscheidungen, die unregelmäßigen Partikel stellen Brennstoffreste und aus der Lösung wieder ausgeschiedene Spaltprodukte in oxidischer Form dar.

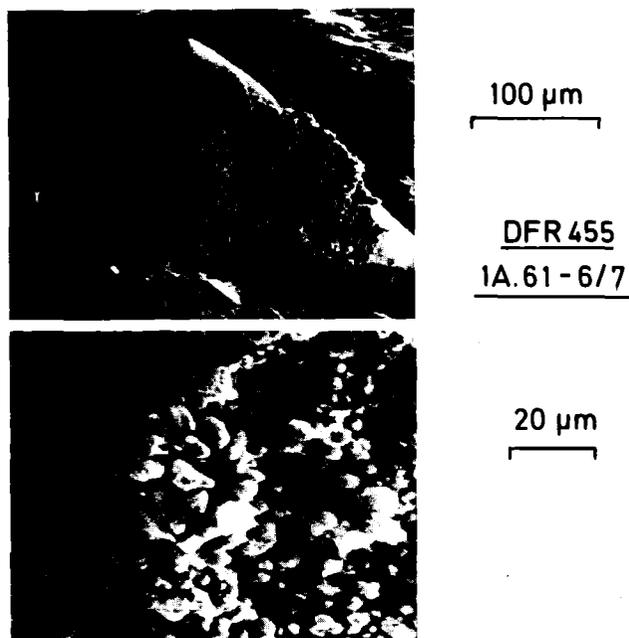
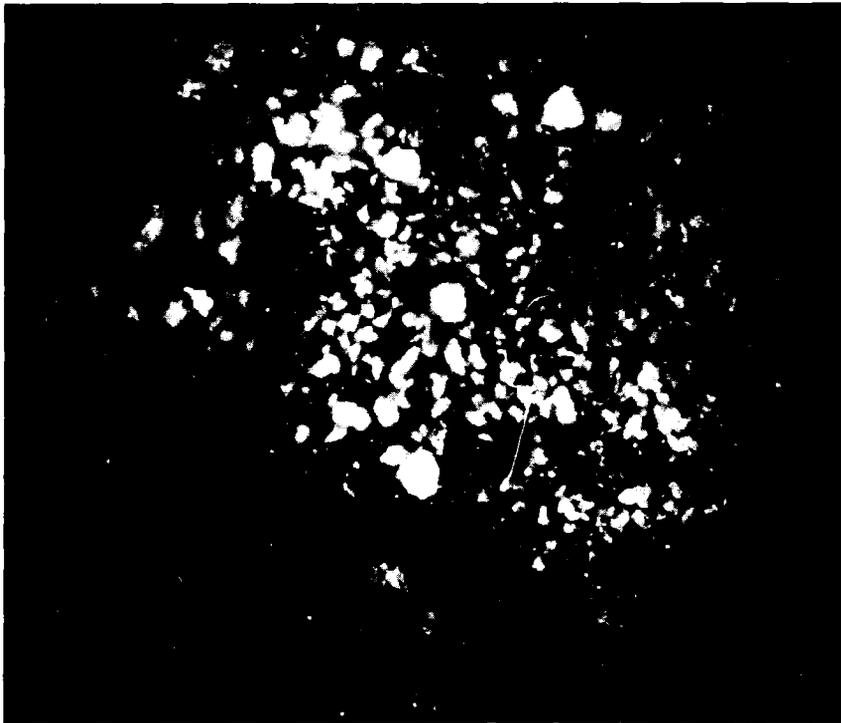


Abb.1: Rasterelektronenmikroskopisches Bild und Bildausschnitt des Rückstands auf einem Filterbruchstück nach der Auflösung des Brennstoffs.

Die mittlere Sekundärpartikelgröße des Rückstands des in hohem Säureüberschuß aufgelösten Brennstoffs (Stab 8A5) liegt mit etwa 0,1 mm wesentlich niedriger als der Wert für den in geringerem Säureüberschuß aufgelösten Brennstoff (Stab 1A61); es wurden Durchmesser bis zu 1 mm beobachtet. Die  $\alpha$ - und die  $\beta$ - $\gamma$ -Autoradiographie dieses eingebetteten Rückstands sind in Abb.2 dargestellt. Die  $\alpha$ -Autoradiographie weist innerhalb der Sekundärpartikel auf plutoniumhaltige Brennstoffteilchen hin, während die  $\gamma$ - $\beta$ -Autoradiographie in überwiegenderem Maße die Verteilung des Nuklids Ru-106 in den edelmetallhaltigen Ausscheidungen abbildet.

Ein lichtmikroskopisches und ein rasterelektronenmikroskopisches Gefügebild von Sekundärpartikeln sowie Bildausschnitte sind in Abb.3 und 4 dargestellt. Es lassen sich im wesentlichen drei verschiedene Typen von Phasen unterscheiden: (1) Reste von unvollständig aufgelöstem Brennstoff aus der inneren Säulenkristallzone und aus der unrestrukturierten Brennstoffaußenzone des Brennstabs, (2) metallische Spaltproduktausscheidungen, die während des Auflösungs Vorgangs vom ungelösten Brennstoff umgeben waren oder sich nicht vollständig aufgelöst haben und (3) in geringerem Maße oxidische Spaltprodukt-Hüllmaterial-Phasen, die sich während oder nach dem Auflösungsprozeß aus der Lösung wieder ausgeschieden haben.

Die Uran-Plutonium-Oxid-Partikel aus der Säulenkristallzone haben eine hohe Dichte, in ihnen sind metallische Spaltproduktausscheidungen eingelagert,



DFR 455  
1A.61-6/7

$\beta$ - $\gamma$ -autoradiograph

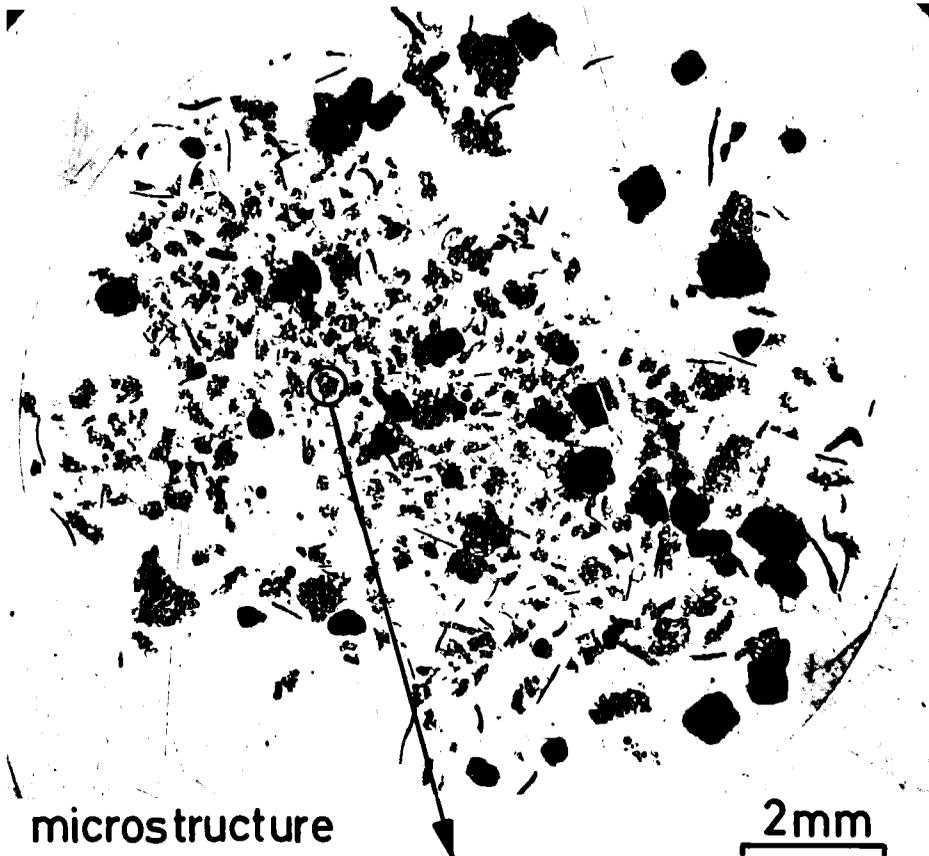
2mm



$\alpha$ -autoradiograph

2mm

Abb.2:  $\alpha$ - und  $\beta$ - $\gamma$ -Autoradiographie des in einen Schliff eingebetteten und polierten Rückstands nach der Auflösung des Brennstoffs. Man beachte das stark  $\beta$ -aktive Partikel in der Mitte der oberen Bildhälfte der  $\beta$ - $\gamma$ -Autoradiographie.



DFR 455  
1A.61-6/7



SEI

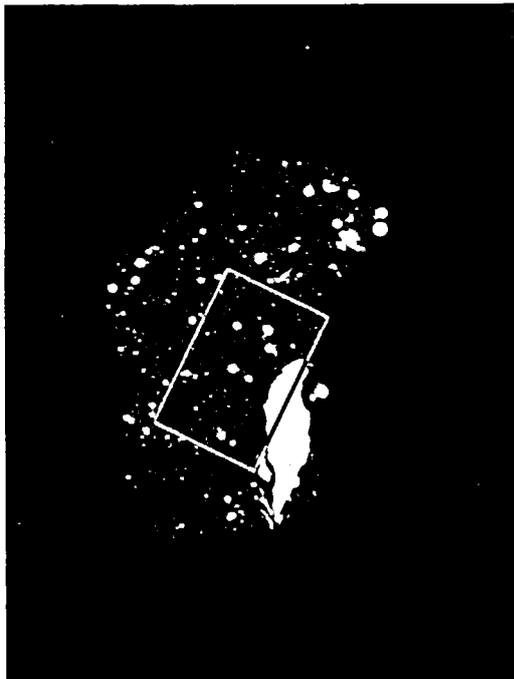
30µm



SEI

10µm

Abb.3: Lichtmikroskopisches Gefügebild des in einen Schliff eingebetteten und polierten Rückstands nach der Auflösung des Brennstoffs sowie rasterelektronenmikroskopische Bildausschnitte (SEI).



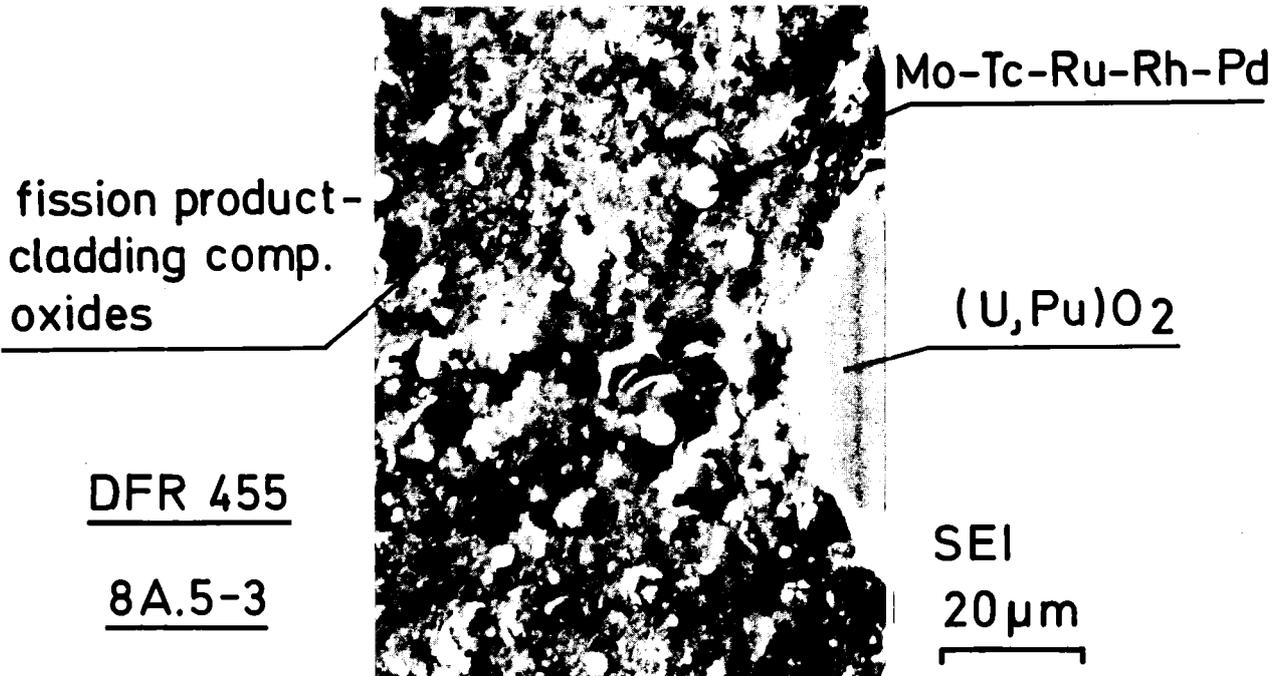
light - optical  
microstructure

50  $\mu\text{m}$



SEI

50  $\mu\text{m}$



fission product-  
cladding comp.  
oxides

Mo-Tc-Ru-Rh-Pd

(U,Pu)O<sub>2</sub>

DFR 455

8A.5-3

SEI

20  $\mu\text{m}$

Abb.4: Lichtmikroskopisches Gefügebild und rasterelektronenmikroskopischer Bildausschnitt aus einem Sekundärpartikel des Lösungsrückstands.

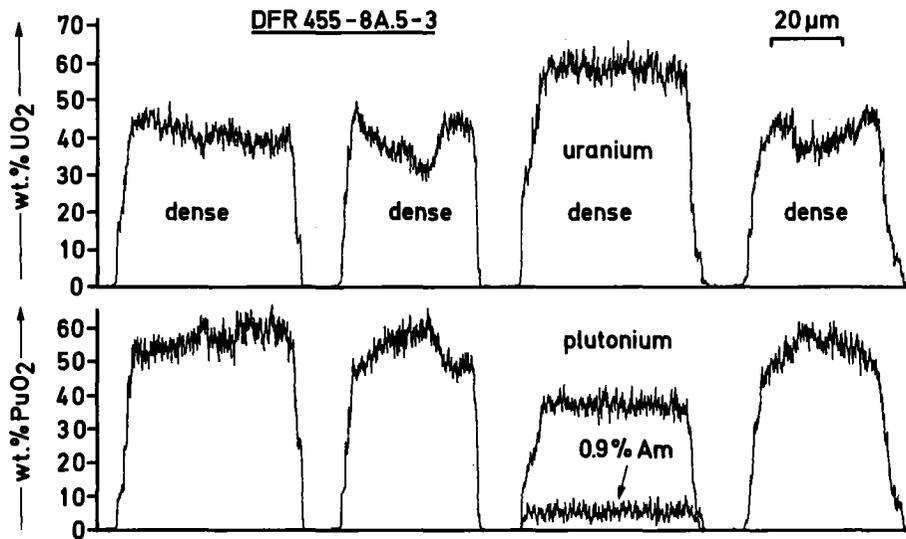
die in Form und Zusammensetzung denen in bestrahlten Brennstabquerschliffen entsprechen. Die Plutonium-Konzentration ist über dem Partikeldurchmesser nahezu konstant, beträgt 40 bis 55% PuO<sub>2</sub> und entspricht dem Wert, der bei den Brennstabnachuntersuchungen im Bereich der heißen Säulenkristallzone des

Brennstoffs beobachtet wurde (Abb.5). Die Partikel aus der unrestrukturierten Brennstoffzone sind teils dicht, teils stark porös und enthalten wegen der niedrigen Brennstofftemperatur nur sehr fein verteilte oder keine nachweisbaren metallischen Spaltproduktausscheidungen. Sie zeichnen sich durch eine zunehmende Uran-Konzentration an der Partikeloberfläche aus: Die während der Bestrahlung des Brennstabs aus der Säulenkristallzone verdampfenden  $UO_3$ -Moleküle haben sich an den Partikeloberflächen in der kälteren unrestrukturierten Zone abgeschieden. Es wird eine Plutonium-Konzentration im Korninnern bis zu 100%  $PuO_2$  beobachtet (Abb.6). Diese Partikel sind im unrestrukturierten Brennstoffbereich eines Stabquerschnitts als helle Flecken in der  $\alpha$ -Autoradiographie erkennbar. Die mittlere Zusammensetzung aller Brennstoffpartikel im Rückstand ist in Tabelle 2 angegeben.

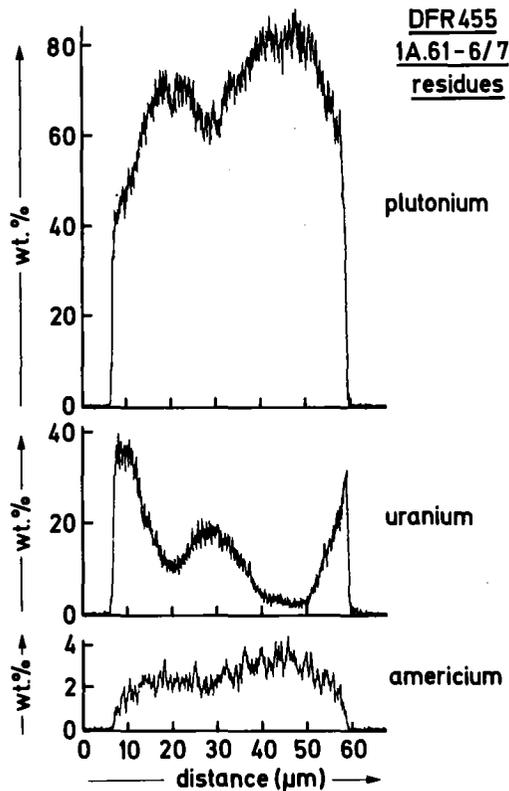
Die metallischen Spaltproduktausscheidungen enthalten die Elemente Molybdän, Technetium, Ruthenium, Rhodium und Palladium, haben einen Durchmesser bis zu 10  $\mu m$  und treten im Rückstand isoliert oder in den Brennstoffpartikeln eingebettet auf. Der Konzentrationsbereich der Komponenten dieses Ausscheidungstyps ist in Tabelle 2 angegeben. In den  $\beta$ - $\gamma$ -Autoradiographien (Abb.2) werden außerdem gelegentlich sehr aktive Ausscheidungen beobachtet, die mehrphasig sind und aus einer metallischen Phase der Zusammensetzung  $(Sn,Sb,Te)Pd_2$  (Tabelle 2) und aus Oxiden mit den Komponenten Zinn, Antimon und Tellur und in geringerer Konzentration Eisen, Zirkon und Molybdän bestehen.

Der dritte, mehrphasige Ausscheidungstyp besteht aus schwammigen Sekundärpartikeln, die oxidischer Natur sind und vorwiegend Chrom, Ruthenium und Molybdän enthalten (Abb.3 und 4). Die Elemente haben sich während oder nach dem Auflösungsprozess des bestrahlten Brennstoffs sehr wahrscheinlich als Oxidhydrate wieder ausgeschieden. Chrom entstammt dabei aus dem oxidierten Teil der Hülle. Die Primärteilchen sind sehr fein verteilt und haben eine Partikelgröße  $< 2 \mu m$ . In Abb.7 sind halbquantitative Konzentrationsprofile des Chroms, Rutheniums, Molybdäns und Sauerstoffs über einem derartigen oxidischen Sekundärpartikel dargestellt. Das komplementäre Verhalten der Chrom- und Ruthenium-Konzentration weist auf ein mehrphasiges Gefüge hin.

Röntgenbeugungsuntersuchungen wurden an den Proben 1A61-6/7 und 8A5-3 durchgeführt /6/. Es konnten mindestens drei Phasen nachgewiesen werden: eine kubisch flächenzentrierte Phase, die dem  $(U,Pu)O_2$ -Gitter entspricht, eine hexagonal dichteste Packung, die dem  $\epsilon$ - $Ru(Tc,Mo,Rh,Pd)$ -Mischkristall zugeordnet wird, und mindestens eine dritte Phase, die mit der oxidischen Cr-Mo-Ru-Phase korreliert werden kann. Die Beugungslinien sind sehr breit, weil



**Abb.5:** Konzentrationsprofile des Urans und Plutoniums über dem Durchmesser verschiedener Brennstoffpartikel im Lösungsrückstand, die sich ursprünglich in der Säulenkristallzone befunden haben.



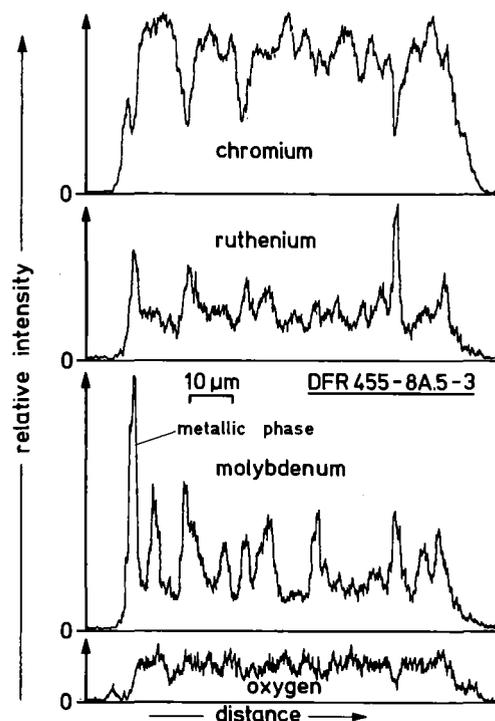
**Abb.6:** Konzentrationsprofil des Urans, Plutoniums und Americiums über dem Durchmesser eines Brennstoffpartikels im Lösungsrückstand, das sich ursprünglich in der unrestrukturierten Brennstoffaußenzone befunden hat.

Brennstab	Phase	Zusammensetzung	Gitterkonstante (pm)
1A61	Brennstoff	etwa 55% PuO <sub>2</sub> etwa 40% UO <sub>2</sub> 5% AmO <sub>2</sub> und Spaltproduktoxide	kubisch flächenzentriert, CaF <sub>2</sub> -Typ a = 544,6 ± 0,5
	Metallische Spaltprodukt-ausscheidungen	39-42% Mo 10-12% Tc 27-30% Ru 7-10% Rh 6-15% Pd	hexagonal, Mg-Typ a = 275,6 ± 0,1 c = 442,6 ± 0,2 c/a = 1,606
	Metallische Spaltprodukt-ausscheidungen	67% Pd } 22% Sn } 5% Sb } (Sn,Sb,Te)Pd <sub>2</sub> 5% Te }	—
8A5	Brennstoff	etwa 55% PuO <sub>2</sub> etwa 40% UO <sub>2</sub> 5% AmO <sub>2</sub> und Spaltproduktoxide	kubisch flächenzentriert, CaF <sub>2</sub> -Typ a = 544,9 ± 0,1
	Metallische Spaltprodukt-ausscheidungen	33-43% Mo 12-16% Tc 30-39% Ru 7-10% Rh 5-10% Pd	hexagonal, Mg-Typ a = 276,2 ± 0,1 c = 443,7 ± 0,5 c/a = 1,606
	Oxidische Spaltprodukt-ausscheidungen	Cr-Ru-Mo-Oxid(Hydrat)	—

Tab.2: Zusammensetzung und Gitterkonstanten von beobachteten Phasen im Lösungsrückstand /4,5,6/.

keine stöchiometrischen Verbindungen, sondern Mischkristalle mit nennenswerter Fluktuation der Konzentration der Komponenten vorliegen. Die Ergebnisse sind in Tabelle 2 zusammengestellt. Für das Mischoxid im Lösungsrückstand mit einer durchschnittlichen Plutonium-Konzentration von 55% PuO<sub>2</sub>, jedoch

unbekanntem O/M-Verhältnis ergibt sich eine mittlere Gitterkonstante  $a = (544,8 \pm 0,1)$  pm. Bei einem Vergleich dieses Wertes mit denen der  $UO_2$ - $PuO_2$ -Mischkristallreihe ist jedoch zu berücksichtigen, daß die Gitterkonstante mit abnehmendem O/M-Verhältnis ansteigt und mit zunehmendem Abbrand eine Kontraktion des Fluoritgitters durch die feste Lösung mit den Spaltprodukt-oxiden auftritt. Das hexagonale Ruthenium und Technetium können hohe Konzentrationen an kubisch raumzentriertem Molybdän und kubisch flächenzentriertem Rhodium und Palladium lösen, ohne daß sich die hexagonale Struktur des Wirtsgitters ändert. Die Beugungslinien der oxidischen Spaltproduktphasen konnten bisher nicht indiziert werden.



**Abb.7:** Halbquantitative Konzentrationsprofile des Chrms, Rutheniums, Molybdäns und Sauerstoffs über einem aus der Lösung ausgeschiedenen mehrphasigen oxidischen Spaltprodukt-Hüllmaterialkomponenten-Sekundärpartikel.

#### 4. Diskussion

Eine rohe Massenbilanz für die drei hauptsächlich auftretenden Typen im Lösungsrückstand auf der Basis der Mikrobereichsanalyse und der Flächenanalyse der verschiedenen Phasen ergibt etwa 60% Actinoiden, 30% Spaltprodukte und Hüllmaterialkomponenten und 10% Sauerstoff. Die Actinoiden lassen sich aufteilen in 30-40% Plutonium, 20-30% Uran und 1% Americium; die Hauptanteile

der Spaltprodukte sind Molybdän mit 11%, Technetium mit 3%, Ruthenium mit 8%, Rhodium mit 2%, Palladium mit 3% und andere Spaltprodukte und Hüllmaterialkomponenten mit 3%. Alle Werte sind gerundet und beziehen sich auf die Gesamtmenge des Rückstands. Die Menge des Plutonium-Oxids im Rückstand liegt zwischen 1,9 und 4,5%, bezogen auf den Anteil des Plutonium-Oxids im Brennstoff. Der hohe Wert liegt im Fertigungsverfahren des Brennstoffs begründet, der nach dem früheren Standardverfahren durch Mischen von  $UO_2$  und  $PuO_2$  sowie Pressen und Sintern hergestellt worden war /1/.

Eine Abhängigkeit der Menge und der Zusammensetzung des Rückstands vom Säure/Brennstoff-Verhältnis konnte aus diesen Untersuchungen nicht gefolgert werden. Es ist jedoch zu vermuten, daß ein größeres Verhältnis die Auflösbarkeit verbessert, weil die Auflösungsgeschwindigkeit der Differenz der Sättigungskonzentration und der momentanen Konzentration der in Lösung gegangenen Komponente proportional ist (Reaktion erster Ordnung). Als nicht auflösbar wird der Anteil des Brennstoffs bezeichnet, der sich in siedender Salpetersäure nach acht Stunden nicht aufgelöst hat. Es gibt eine Reihe von Parametern, die einen Einfluß auf die Auflösbarkeit des Brennstoffs und die Menge des Rückstands ausüben: (1) Die Sekundärpartikelgröße des Brennstoffs, d.h. die Größe der  $PuO_2$ -Partikel im Herstellungszustand und die Größe der Säulenkristalle; die Größe der gemeinsamen Fläche zwischen Oxid und Salpetersäure während des Auflösungsvorgangs ist also von Bedeutung. (2) Die Rührgeschwindigkeit, die die Dicke der an der Brennstoffoberfläche "adhärierenden" Salpetersäure beeinflusst. (3) In der frischen Lösung werden Nachfällungen beobachtet, die offensichtlich aus Spaltproduktoxidhydraten bestehen, deren Menge mit der Standzeit bis zur Filtrierung zunimmt und damit die Gesamtmenge des Rückstands erhöht.

Kogefälltes Uran-Plutonium-Oxid mit mehr als 35%  $PuO_2$  ist in konzentrierter Salpetersäure in vertretbarer Zeit nicht auflösbar /7/. Da die Auflösbarkeit eine kinetische Größe und topochemischen Einflüssen ausgesetzt ist, kann diese Grenze nicht scharf angegeben werden. Die Edelmetalle sind in konzentrierter Salpetersäure zum Teil nur sehr schwer auflösbar. Für Ruthenium und Rhodium wird eine Abtragrata  $< 0,01 \text{ mg/cm}^2 \cdot \text{h}$ , für Palladium ein Wert von  $10 \text{ mg/cm}^2 \cdot \text{h}$  angegeben /8/. Nach acht Stunden Lösezeit ergibt sich daraus für eine ebene Fläche als Abtragstiefe  $0,07 \text{ } \mu\text{m}$  bzw.  $67 \text{ } \mu\text{m}$ . Eine Interpolation der effektiven Abtragrata des Mo-Tc-Ru-Rh-Pd-Mischkristalls mit den Daten der reinen Komponenten ist nicht gestattet. Eigene Untersuchungen haben z.B. gezeigt, daß ein Mischkristall mit 50% Pd vollständig auflösbar ist.

Die Spaltedelmetalle, das Technetium und das Molybdän liegen nach der Auflösung des bestrahlten Brennstoffs in drei verschiedenen chemischen Zuständen vor: (1) Nicht vollständig aufgelöste metallische Ausscheidungen, die in ihrer Zusammensetzung, Größe und Form mit denen identisch sind, die bei Brennstabnachuntersuchungen beobachtet werden. (2) In der salpetersauren Lösung vorliegende Bestandteile. (3) Aus der salpetersauren Lösung durch Nachfällung als Oxide oder Oxidhydrate wieder ausgefallene Niederschläge. Im DFR 455-Brennstoff liegen nach 5% Abbrand und vier Jahren Abkühlzeit etwa 0,45% Ruthenium vor. Nach den mit der Elektronenstrahl-Mikrosonde gewonnenen Ergebnissen enthält der Rückstand jedoch nur etwa 0,3% Ruthenium bezogen auf die Masse des aufgelösten Brennstoffs. Ein Drittel des Rutheniums ist also in der Lösung verblieben; ein Sechstel ist aus der Lösung als Oxid oder Oxidhydrat wieder ausgefallen; die Hälfte ist nicht aufgelöst worden. Die Bilanz ist für die anderen Komponenten der Spaltedelmetallausscheidungen ähnlich. Wegen der sehr schlechten Auflösbarkeit ist nur die kleinste Ausscheidungsfraktion mit einem Durchmesser kleiner als 2 bis 3  $\mu\text{m}$ , die sich in der äußeren, kälteren Brennstoffzone befindet, in Lösung gegangen.

Bei der Auflösung von bestrahltem LWR-Brennstoff in Salpetersäure wurden im Rückstand Spaltproduktausscheidungen beobachtet, die ausschließlich oxidisch vorliegen und vorwiegend Molybdän und Ruthenium enthalten /9,10/. Wegen der geringeren Stableistung (20 kW/m) und der niedrigeren Brennstofftemperatur als im SBR-Brennstoff bilden sich die Spaltedelmetallausscheidungen nur mit einem Durchmesser  $< 2 \mu\text{m}$  aus und sind im Licht des derzeitigen Kenntnisstands in Salpetersäure vollständig auflösbar. Allerdings fällt ein großer Anteil während des Lösungsprozesses oder durch Nachfällung als Oxid oder Oxidhydrat wieder aus. Da die Menge dieses Niederschlags auch von der Zeit bis zur Filtrierung, vom Säure/Brennstoff-Verhältnis und von radiolytischen Einflüssen abhängt, dürfen die quantitativen Ergebnisse der Auflösungsversuche nur als orientierende Werte angesehen werden. Diesen bisher nicht genügend untersuchten Parametern sollte bei der Frage nach der Höhe der Auflösbarkeit bestrahlter Brennstoffe in Zukunft besondere Aufmerksamkeit geschenkt werden.

Literatur:

- /1/ D. Hanus, H. Kleykamp: "Uran- und Plutonium-Verteilung in unbestrahltem Mischoxid-Brennstoff aus der industriellen Fertigung", J. Nucl. Mater., im Druck
- /2/ H. Kleykamp: "The Chemical State of Irradiated Uranium-Plutonium Oxide Fuel Pins", Int. Conf. on Fast Breeder Reactor Fuel Performance, Monterey, Calif., 1979, proc. symp. p.393
- /3/ J.A. Crofts, L.R. Weatherley, K.L. Wilkinson: unveröffentlichter Bericht, 1981
- /4/ H. Kleykamp, H.D. Gottschalg: unveröffentlichter Bericht, 1980
- /5/ H. Kleykamp: "Die Zusammensetzung von Rückständen aus der Auflösung von bestrahltem Schnellbrüter-Mischoxid-Brennstoff", Jahrestagung Kerntechnik '81, Düsseldorf, 1981, Tagungsbericht S.327
- /6/ H. Kleykamp, R. Pejsa, W. Kohnert: unveröffentlichter Bericht, 1981
- /7/ E.L. Nicholson: "The PuO<sub>2</sub> Dissolution Problem for LWR Pu-Recycle and LMFBR Fuels: Fabrication and Reprocessing Problems and their Resolution", ORNL/TM-5903, 1977
- /8/ H. Renner: "Platinmetalle und -verbindungen", Ullmanns Encyklopädie der Technischen Chemie, Band 18, 1979, S.702
- /9/ H. Kleykamp, H.D. Gottschalg: unveröffentlichter Bericht, 1981
- /10/ H. Kleykamp: "Untersuchungen zur Zusammensetzung von Lösungsrückständen aus der Wiederaufarbeitung bestrahlter LWR-Brennstäbe", Kernforschungszentrum Karlsruhe, Bericht KfK 2665 (1978), Downreay trans 823 (1979) und Trans. ANS 31 (1979) 508

MILLI II: Konzeptstudie für eine Pilotanlage zur  
Wiederaufarbeitung von Brüter-Brennelementen

G. Koch

Institut für Heiße Chemie  
Kernforschungszentrum Karlsruhe

Zusammenfassung

Das Kernforschungszentrum Karlsruhe erstellt eine Konzeptstudie für eine Pilotanlage zur Wiederaufarbeitung von Brüter-Brennelementen. Zielsetzung, Aufgabenstellung und Auslegungskriterien werden diskutiert.

Abstract

A conceptual study of a pilot reprocessing plant for LMFBF fuel elements is being performed at the Nuclear Research Center, Karlsruhe. Goals, objectives, and design criteria are discussed.

## Zielsetzung

Wir haben uns die Aufgabe gestellt, das Konzept für eine Pilotanlage zur Wiederaufarbeitung von Brüter-Brennelementen zu erarbeiten. An der Studie, die bis zum Frühjahr 1982 fertiggestellt werden soll, sind Fachleute aus folgenden Instituten und Abteilungen des KfK beteiligt: Heiße Chemie, Ingenieurtechnik, Aerosol- und Filtertechnik, Bau, Neutronenphysik und Reaktortechnik, Projekt Schneller Brüter. Das Projekt läuft unter dem Kennwort "MILLI II", wodurch zum Ausdruck kommt, daß es sich um die logische Folgestufe, im Pilotanlagen-Maßstab, zu der vorhandenen und, wie sie aus den vorangehenden Vorträgen entnehmen konnten, erfolgreich arbeitenden Labor-Wiederaufarbeitungsanlage "MILLI" des IHCH handelt.

Es ist in diesem Kreis sicher unnötig zu erläutern, daß der geschlossene Brennstoffkreislauf dem Prinzip des Brutreaktors inhärent ist. Herr Dr. Marth hat in seinem einleitenden Vortrag auf diese allgemein bekannte Tatsache hingewiesen. Sogenannte "alternative" Entsorgungs-Vorschläge sind für alle auf Rohstoff-Einsparung und Ressourcenschonung ausgelegten Konzepte sinnwidrig.

Die Zielsetzung für eine chemische Pilotanlage besteht ganz allgemein darin, als Vorstufe für eine kommerzielle Großanlage die verfahrenstechnische Durchführung eines im Labor entwickelten chemischen Verfahrens zu demonstrieren und zu optimieren. Mit anderen Worten, eine Pilotanlage muß außer der Verfahrens-Chemie auch die für eine kommerzielle Anlage in Frage kommende Verfahrens-Technik repräsentieren. Auf den konkreten Fall der Brutreaktor-Wiederaufarbeitung bezogen: Voraussetzung für eine kommerzielle Einführung des Schnellen Brüters mit inhärentem Brennstoffkreislauf ist, unter anderem, die vorausgehende Demonstration der Wiederaufarbeitung in einer Pilotanlage. Zwar können aus dem Betrieb etwa einer LWR-Wiederaufarbeitungsanlage durchaus wesentliche Erkenntnisse hinsichtlich der Schnellbrüter-Aufarbeitung gewonnen werden - die grundsätzliche Verfahrenstechnik ist ja in vielen Schritten ähnlich. Wegen der spezifischen Schnellbrüter-Probleme, und darauf werde ich im Anschluß näher eingehen, ist eine spezielle Schnellbrüter-Pilot-Wiederaufarbeitungsanlage als Vorstufe einer kommerziellen Anlage aber unabdingbar. Dies gilt umso mehr, als die kommerzielle Einführung der LWR-Aufarbeitungstechnologie in Deutschland z.Zt. einer - gefährlichen - politischen Verzögerung unterliegt.

## Aufgabenstellung

Für MILLI II ergeben sich somit folgende Aufgabenstellungen:

1. Gewinnung von Betriebsdaten, Optimierung und Demonstration der Wiederaufarbeitung von Brennelementen fortgeschrittener Reaktoren ("Energieträger-Rezyklierung"), charakterisiert durch
  - hohen Abbrand
  - hohen Spaltmaterial-Gehalt
  - kurze Kühlzeit

Unter "fortgeschrittene Reaktoren" verstehen wir insbesondere Schnelle Brutreaktoren; unser Konzept umfaßt aber darüberhinaus die Möglichkeit, hochabgebrannte Mischoxid-Brennelemente aus LWR und gegebenenfalls Brennelemente aus Fortschrittlichen Druckwasser-Reaktoren (FDWR) zu verarbeiten

2. Demonstration neuentwickelter Verfahrensweisen zur
  - Verminderung der Schadstoff-Abgabe mit dem Abwasser
  - Verminderung der Abgabe von Schadstoffen mit der Abluft
  - technische Verbesserung einzelner Verfahrensschritte
  - Senkung der Strahlenbelastung des Betriebspersonals
3. Untersuchung von Sicherheitsfragen, wie Folgen eines nicht bestimmungsgemäßen Betriebes und Wirkung von Gegenmaßnahmen
4. Demonstration von Verfahrensweisen zur weiteren Verbesserung der Spaltmaterial-Überwachung

## Auslegungskriterien

Die Mindestkühlzeit der Brennelemente beträgt 180 Tage. Der Durchsatz der Anlage wurde mit 50 kg Schwermetall (U+Pu) pro Tag festgelegt. Eingehende Rechnungen unter Berücksichtigung der vorliegenden Erfahrungen zum Betriebsverhalten von gepulsten Siebbodenkolonnen haben zu dem Ergebnis geführt, daß dies etwa der Mindestdurchsatz einer Pulskolonnen-Anlage bei Anwendung eines typischen PUREX-Fließschemas (d.h. 30% TBP, ca. 1 Mol/l Schwermetall in der Feedlösung) ist. Mit anderen Worten, Pulskolonnen las-

sen sich nicht weiter verkleinern als es diesem Durchsatz entspricht. (Dies ist - beiläufig - der Grund, warum die 1 kg/d - Laboranlage MILLI nur mit Mischabsetzern ausgerüstet werden konnte.)

Wird ausreichend Brennstoff für den Betrieb einer 50 kg/d -Anlage verfügbar sein? Auf absehbare Zeit gibt es in Deutschland nur zwei relativ kleine Brutreaktoren, den SNR-300 und den KNK II. Der Brennstoff-Ausstoß dieser beiden Reaktoren zusammen beträgt ungefähr 5 t Schwermetall pro Jahr, was eine Betriebszeit der Anlage von 100 Tagen pro Jahr erlaubt. Ein Dauerbetrieb von 100 Tagen ist für die Demonstration der Dauer-Betriebstüchtigkeit eines Verfahrens durchaus ausreichend. Andererseits zeigt die so erreichbare Auslastung von nur etwa 30%, daß noch genügend "Luft" für die Aufarbeitung anderer Brennstofftypen, wie oben angedeutet, in der Anlage vorhanden ist.

Das Blockschema der Anlage (Abb.1) umfaßt die Schritte Brennelement-Empfang und -Lager, mechanische Zerlegung und Zerkleinerung, Auflösung, Extraktion, Produkllager und -Versand; dazu Einrichtungen zur Abgasbehandlung und zur Zwischenlagerung der verschiedenen radioaktiven Abfälle. Schließlich sind Infrastruktureinrichtungen zu berücksichtigen - hierauf wird bei der Wahl eines geeigneten Standorten besonders zu achten sein.

Der zentrale Aufarbeitungsprozeß besteht aus einem Chop-and-leach Head-End und einem dreizyklischen PUREX-Prozeß. Um höchste Flexibilität zu erzielen, erfolgt die Verknüpfung der Extraktionsapparate so, daß die U/Pu-Trennung wahlweise in den ersten oder in den zweiten Extraktionszyklus verlegt werden kann. Das heißt, die Zyklusfolge ist entweder 1. Coextraktionszyklus - 2. Trennzyklus - je ein Endreinigungszyklus für U + Pu oder 1. Trennzyklus - je zwei Reinigungszyklen für U + Pu (Abb.2). In diesem Anlagenteil sollen insbesondere die im KfK entwickelten modernen PUREX-Verfahrensschritte zur Waste-Minimierung erprobt werden - Stichworte "Electro-Redox-Verfahren" und "salzarme Verfahren". Der hochaktive Extraktionsteil ist mit gepulsten Siebbodenkolonnen ausgerüstet - die Implikationen für den Anlagendurchsatz wurden bereits erwähnt. Lediglich für die Plutoniumreinigung sind wegen des relativ niedrigen Durchsatzes Mischabsetzer vorgesehen. Die Entwicklung und Demonstration eines geeigneten Zentrifugalextraktors, als Alternative zur Pulskolonne, bleibt nach unserer Auffassung ein erstrebenswertes Ziel.

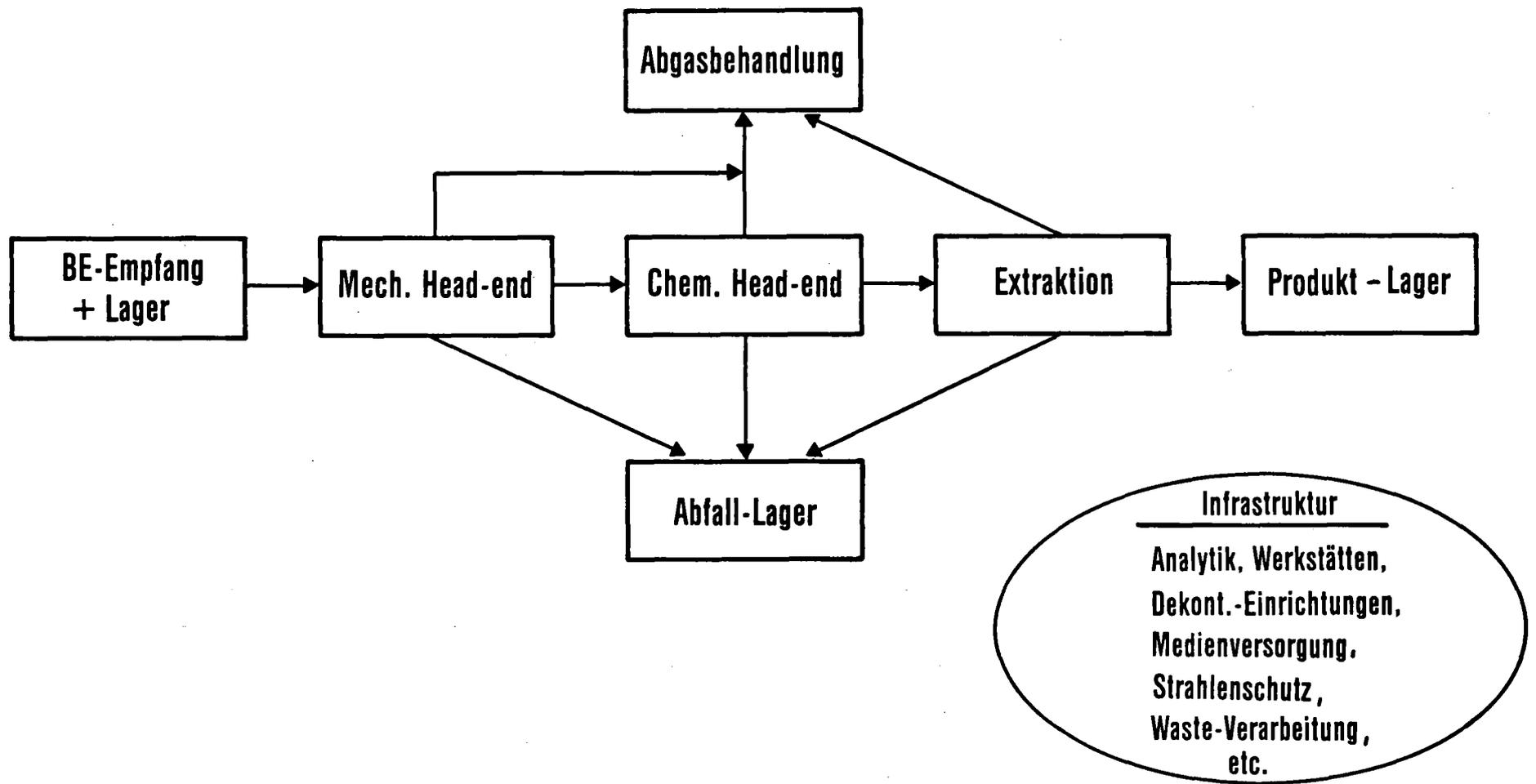
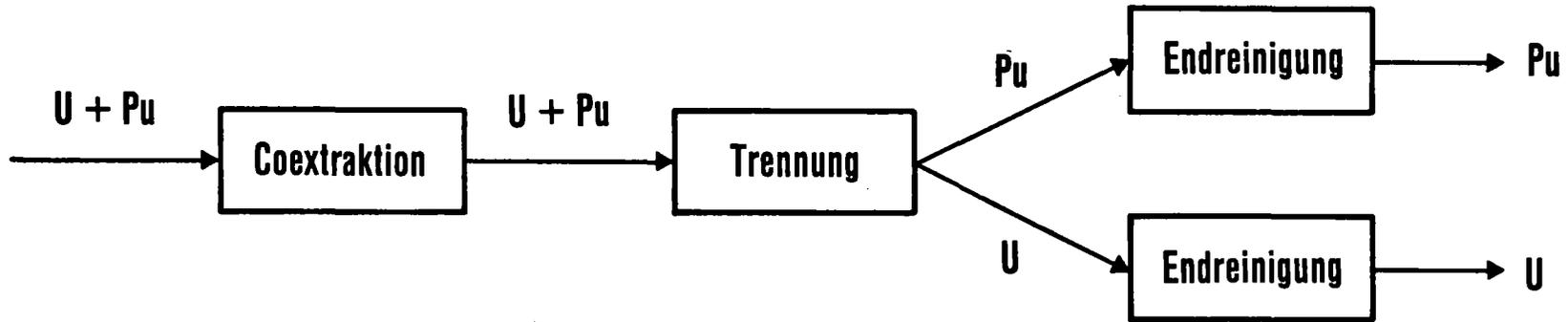


Abb. 1: BLOCKSCHEMA

Trennung im 2. Zyklus



Trennung im 1. Zyklus

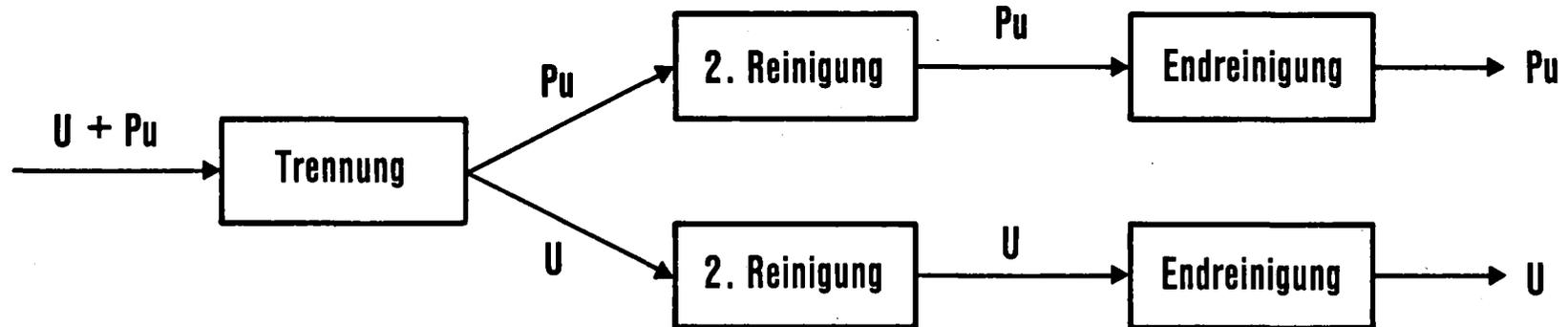


Abb. 2: VERKNÜPFUNG DER PUREX-ZYKLEN

Bei den Einrichtungen zur Abgas-Reinigung gilt das besondere Augenmerk dem Head-End-Abgas. Auch in diesem Bereich sollen KfK-Entwicklungen, die eine vereinfachte Verfahrensführung bei gleichzeitig verbesserter Schadstoff-Rückhaltung zum Ziel haben, demonstriert werden.

Besondere Bedeutung kommt dem Wartungs- und Reparatur-Konzept zu, weil bei der Brüter-Wiederaufarbeitung die Einhaltung einer kurzen Kühlzeit, bei gleichzeitig hohem Abbrand, zwingend ist. Sowohl im Hinblick auf eine hohe Verfügbarkeit der Anlage als auch im Hinblick auf eine möglichst niedrige Strahlenbelastung des Anlagenpersonals sind wir der Auffassung, daß eine geeignete Fernbedienungs-Wechseltechnik die optimale Lösung darstellt. Mit anderen Worten, an die Stelle starr verschweißter Rohrleitungs- und Apparatestränge tritt die Montage über fernbediente Kupplungen. Dies hat, wie leicht ersichtlich, den Aufbau der Anlage in Modulform zur Folge. Es sei an dieser Stelle daran erinnert, daß dieses Konstruktions- und Wartungsprinzip sich seit den 50er Jahren in den militärischen Anlagen der USA bewährt hat. Wir haben durch die in unserer Hauptabteilung Ingenieurtechnik geleisteten Entwicklungsarbeiten ein technisch fortgeschrittenes Fernbedienungskonzept für Reparatur und Wartung zu Verfügung, das im übrigen auch der Flexibilität der Anlage zugute kommen wird, ein für eine Pilotanlage sicher wünschenswerter zusätzlicher Vorteil.

## Erfahrungen zur Brennstoff-Rezyklierung

V. Schneider, W.G. Druckenbrodt

ALKEM GmbH

Rodenbacher Chaussee 6, 6450 Hanau 11

### Zusammenfassung

Das Plutonium der 2. Generation aus dem KNK wird bei der Brennstoffertigung durch ALKEM nach dem Au/PuC-Verfahren konvertiert. Die Vorbereitungen für die Verarbeitung wurden abgeschlossen und zwei Teilchargen verarbeitet. Die Ergebnisse lassen bisher keinerlei prinzipielle Schwierigkeiten erkennen.

### Abstract

The plutonium of the second generation out of the KNK-reactor will be converted at the fuel fabrication by ALKEM by the Au/PuC process. The preliminary tests for the fabrication have been finished and two batches were converted. Up to now the results show no principal difficulties.

Bei der Rezyklierung des Brennstoffes aus dem KNK wird zum zweitenmal Plutonium der 2. Generation bei ALKEM verarbeitet, nachdem bereits Material aus KWO wieder in den Reaktor zurückgeführt wurde. Beide Plutoniumnitrat-Ausgangslösungen wurden aus der Milli geliefert.

Der Verunreinigungsgrad der Lösung ist bei dem aufgearbeiteten KNK-Element fast um den Faktor 5 höher als bei dem KWO-Material. Die Summe der metallischen Verunreinigungen bezogen auf Plutonium liegt bei ca. 4000 ppm. Tabelle 1 zeigt die hauptsächlichsten Verunreinigungen.

Tabelle 1

Al	ca.	1000 ppm
Na	ca.	340 ppm
Ca	ca.	340 ppm
Si	ca.	340 ppm
Th	ca.	840 ppm
Zn	ca.	1000 ppm

Die Abtrennung von Zink und Natrium im Fällprozeß nach dem Au/PuC-Verfahren ist sehr gut. Für Al, Si und Th liegen bisher noch keine Erfahrungen mit größeren Verunreinigungsmengen vor. Ca kann kaum abgereichert werden, allerdings wird der spezifizierte Endwert im Pulver durch die Zumischung des Urans unterschritten. Ob der spezifizierte Th-Wert von 100 ppm erreicht werden kann, muß abgewartet werden.

Die Isotopenzusammensetzung des Plutoniums aus dem KNK und KWO weisen große Unterschiede auf.

Tabelle 2

Reaktor	*Abbrand [GWD/T]	Pu-Isotope [%]				
		238	239	240	241	242
KWO 1. Generation	28	1,5	59,7	23,4	11,0	4,4
KWO 2. Generation	32	1,5	43,4	34	14,8	6,3
KNK 2. Generation		0,7	78,3	14,6	5,0	1,4

Dies ergibt für das KNK-Material eine gute Verarbeitungsfähigkeit ohne starken Americium-Aufbau. Der Vergleich zeigt auf der anderen Seite, wie wichtig ein guter Dekontaminationsfaktor für Americium speziell bei der Konversion von rezykliertem Plutonium aus LWR-Reaktoren ist, das sich aber ebenfalls ohne besondere Strahlenbelastung für die Mitarbeiter verarbeiten ließ. Hierbei ist für den technischen Maßstab noch besonders zu berücksichtigen, daß das Material der verschiedenen Generationen nur verschnitten zur Verarbeitung gelangen wird.

Die Konversion sowohl des KWO als auch des KNK-Materials erfolgt(e) bei ALKEM nach dem Au/PuC-Verfahren; d.h. Uran und Plutonium wurden gemeinsam mit Ammoniak und Kohlendioxid, als Ammonium-Uranyl, plutonyl-carbonat Mischkristall Komplex ausgefällt, womit die geforderte Salpetersäure-Löslichkeit des Brennstoffes vor der Bestrahlung gegeben ist. ALKEM hat inzwischen die Konversionslinie, die derzeitig eine Kapazität von 5 kg pro Charge hat, auch zur Durchführung dieses neuen Kofällverfahrens umgebaut. Das Verfahren entspricht im Prinzip dem AuC-Prozeß der RBU, die hiernach im Tonnen Maßstab UO<sub>2</sub> fertigt.

Allgemein wird diese Kofällung so durchgeführt, daß man immer von einem gleichen Uran/Plutonium Verhältnis, vorzugsweise 7 : 3, ausgeht und anschließend den gewünschten Plutoniumanreicherungsgrad durch die Zumischung von  $UO_2$  aus dem AuC-Verfahren einstellt, bevor das Pulver zu Tabletten weiterverarbeitet wird (Mastermixkonzept).

Im Falle der Verarbeitung des rezyklierten Plutoniums für den KNK aber wird das berechnete Uran/Plutonium Verhältnis von ca. 75 : 25 direkt durch die Mischung von Uranylнитrat- und Plutoniumnitrat-Lösung eingestellt.

Die Uranylнитrat-Lösung hat einen U-235 Anreicherungsgrad von etwa 70% und enthält zu etwa 12,5% das rezyklierte Uran. Die nicht bei der Verarbeitung des rezyklierten Plutoniums eingesetzten Uranmengen aus dem KNK II Brennelement werden bei der Fertigung der neuen KNK-Ringelemente mit eingesetzt.

Bei der Verarbeitung des Plutoniums der 2. Generation KNK nach dem AuPuC-Verfahren werden dementsprechend 2,5 kg Schwermetall (U+Pu) durchgesetzt.

Da in der ALKEM-Konversionslinie genehmigungsmäßig kein angereichertes Uran hantiert werden darf, erfolgt die Konversion in einer Laborlinie, die zur Entwicklung des Au/PuC-Verfahrens aufgebaut worden war.

Somit erfolgt die Konversion des Materials in 11 Teilchargen zu je ca. 230g Schwermetall.

Im Rahmen der Entwicklungsarbeiten hat sich gezeigt, daß sich die Ergebnisse aus dieser Laborlinie gut auf die ALKEM-Konversionslinie übertragen lassen (Maßstab ca. 1 : 20) und man kann daher sagen, daß die Rezyklierung des KNK Plutoniums keine besonderen Schwierigkeiten aufweist.

## Rechnungen zum Vergleich der Aktivitätsinventare bestrahlter Brennstoffe des SNR300, des Super Phenix und des DWR Biblis

H.W.Wiese, U.Fischer, B.Krieg, H.Küsters, S.Shi\*

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH  
Institut für Neutronenphysik und Reaktortechnik  
Postfach 3640, D-7500 Karlsruhe

### Zusammenfassung

Für die Schnellen Reaktoren SNR300, Super Phenix und den DWR Biblis werden die Aktivitäts- und Wärmeinventare und die n-Emissionen bestrahlter Brennstoffe - bei den SBR gemittelt über Core und axiales Blanket - auf Karlsruher Aktiniden-Datenbasis mit dem Programm KORIGEN berechnet. Bei mittleren Core-abbränden von 57 und 63 Gwd/tSM für den SNR bzw. den Super Phenix und 33 Gwd/tSM für Biblis verhalten sich bei Beladung der SBR mit LWR-Pu die Aktivitäten/tSM der BE 1 Jahr nach Entladung (n.E.) wie 1.75:1.92:1; für die Wärmefreisetzungen und n-Emissionen ergeben sich 1 Jahr n.E. die Verhältnisse 1.5:2.1:1 bzw. 2.3:7.3:1. Bei Wiederaufarbeitung (WA) 1a n.E. für die SBR- und 7a n.E. für den DWR-Brennstoff werden die interessierenden Größen tabellarisch und graphisch angegeben.

### Abstract

For the fast reactors SNR300 and Super Phenix and the PWR Biblis radioactivities and decay heat inventories together with the neutron emission in burnt fuels are calculated. For the LMFBR results are averaged over core and axial blankets. Karlsruher actinide data are used in the KORIGEN code. With a mean core burnup of 57 and 63 Gwd/tHM for the SNR300 and the Super Phenix, respectively, and 33 Gwd/tHM for the Biblis fuel the corresponding fuel element radioactivities/tHM 1year after discharge behave as 1.75:1.92:1 in case of LMFBR charged with LWR-Pu. For heat release and neutron emission 1y after discharge the ratios 1.5:2.1:1 and 2.3:7.3:1 are found. Assuming fuel reprocessing 1y and 7y after discharge for LMFBR and PWR fuels, resp., radioactivities etc. are presented in tables and diagrams.

\* delegiert vom Institut für Kernenergie und Technik,  
Qinghua Universität, Peking, China

## 1. Problemstellung und Reaktorspezifikationen

Das Aktivitäts- und Wärmeinventar sowie die n-Emission bestrahlter Brennelemente (BE) und des nach der WA anfallenden Abfalls sind bestimmt durch das Beladeinventar (einschließlich der Hüll- und Strukturmaterialien)- Tab.1,3 und die Betriebscharakteristika - Tab. 2 - unter Berücksichtigung der für die betrachteten Reaktoren jeweils spezifischen, vom Neutronenspektrum abhängigen nuklearen Materialeigenschaften (Wirkungsquerschnitte). Für die Schnellen Reaktoren SNR300<sup>1)</sup> (Mark 1a, 752MW<sub>th</sub>) und Super Phenix<sup>2)</sup> (3000MW<sub>th</sub>) wurden jeweils Beladungen mit LWR-Pu und Magnox-Pu (Graphit-Gas) betrachtet, die o.g. Nachbestrahlungseigenschaften wurden bei den SBR als Mittelwerte über Core und axiales Blanket entsprechend der gemeinsamen WA dieser Bereiche ermittelt. Zum Vergleich wurden Rechnungen für Brennstoff des DWR Biblis (3800MW<sub>th</sub>) durchgeführt.

## 2. Nukleare Daten und Verfahren

Die reaktorspezifischen Neutronenwirkungsquerschnitte wurden für die SBR für U- und Pu-Isotope mit Ausnahme von  $\sigma_c$  (Pu240) aus dem an kritischen Anordnungen getesteten KFKINR-26-Gr.-Satz<sup>3)</sup> und konsistent mit zweidimensionalen Verfahren zonenweise berechneten Neutronenspektren ermittelt, für Pu240 wurde mit einem entsprechend dem KFKINR2-Satz<sup>9)</sup> verbesserte  $\sigma_c$  gerechnet, für Am- und Cm-Isotope wurden neueste Karlsruher Kerndatenauswertungen<sup>4)</sup> herangezogen, Querschnitte der Spaltprodukte und leichteren Elemente wurden der ORIGEN-LMFBR-Datei<sup>5)</sup> entnommen. Die DWR-Rechnungen wurden konsistent mit abbrandabhängigen Karlsruher Aktinidenquerschnitten<sup>6)</sup> und neueren ORNL-Daten<sup>7)</sup> durchgeführt. Für die Abbrand- und Zerfallsrechnungen wurde KORIGEN<sup>6)</sup> eingesetzt.

## 3. Ergebnisse

Die Ergebnisse sind in den Tab.4,5 und den Abb.1-5 dargestellt. Bei mittleren Core-Abbränden von 57 und 63 Gwd/tSM (31 und 41 Gwd/tSM bei Mittelung über Core und ax. Bl.) für den SNR\* bzw. den Super Phenix\* und 33 Gwd/tSM für Biblis verhalten sich die Aktivitäten/tSM der BE ein Jahr n.E. wie 1.75:1.92:1; für die Wärmeleistungen und n-Emissionen ergeben sich zu diesem Zeitpunkt die Verhältnisse 1.5:2.1:1 bzw. 2.3:7.3:1. Die Unterschiede in den Inventaren der bestrahlten BE und der Abfälle werden durch die unterschiedlichen Abbrände und Beladeninventare verursacht; letztere führen insbesondere

\* mit LWR-Pu-Beladung

zu einem unterschiedlichen Aufbau von Transplutonen und auch von Spaltprodukten. Die bei einem Jahr n.E. angenommene WA des SBR-Brennstoffs bedeutet hauptsächlich wegen der kürzeren Kühlzeit eine etwa 10 mal größere Radioaktivität und Wärmefreisetzung -Abb.1,2 - des aufzubereitenden Materials als bei der sieben Jahre n.E. angesetzten WA des LWR-Brennstoffs.

Die Abb.4,5 zeigen das Langzeitverhalten der Aktivität und Wärmefreisetzung des Abfalls, bezogen auf die anfänglich eingesetzte tSM (für die SBR mit LWR Pu-Beladung). Der beim Waste des LWR Biblis deutlich geringere Aktinidenbeitrag bewirkt 1000 Jahre n.E. nach Abklingen der Hauptspaltprodukte eine um etwa einen Faktor 5 größere Aktivität der SBR-Abfalls. Zu beachten ist jedoch bei diesem Vergleich, daß zu diesem Zeitpunkt auch beim SBR-Waste die Aktivität bereits auf weniger als 1% ihres Wertes bei 10 Jahren n.E. abgeklungen ist.

Die Unterschiede bei Beladung der Schnellen Reaktoren mit LWR-Pu- und Magnox-Pu können aus den Tab.4,5 entnommen werden. Der beim LWR-Pu größere Anteil der höheren Pu-Isotope (Super Phenix Beladung LWR-PU-Vektor 1.7:57.3:24:11.2:5.8<sup>W</sup>/<sub>0</sub>, Magnox-Pu-Vektor 0:76.9:20.2:2.5:0.4<sup>W</sup>/<sub>0</sub>) resultiert in höheren n-Emissionen und höheren Aktinidenbeiträgen zum Waste, jeweils bezogen auf die anfänglich eingesetzte tSM.

#### 4. Literaturverzeichnis

- /1/ U. Wehmann, H. Grönefeld (Interatom): (persönliche Mitteilungen)
- /2/ C. Giacometti et al: "Characteristiques Neutroniques du Reacteur Super-Phenix 1 de Creys-Malville", Proc.Symposium Fast Reactor Physics, Aix 1979, Vol 1. p.3
- /3/ E. Kiefhaber: "The KFKINR-Set of Group Constants", KFK-1572 (1972)
- /4/ F.H. Fröhner, B. Göel: (Veröffentlichung in Vorbereitung)
- /5/ M.J. Bell: "ORIGEN - The Oak Ridge Isotope Generation and Depletion Code", ORNL-4628 (1973)
- /6/ H.W. Wiese, U. Fischer: "KORIGEN- Ein Programm zur Bestimmung des nuklearen Inventars von Reaktorbrandstoffen im Brennstoffkreislauf", KfK-3014 (in Vorbereitung)
- /7/ A.G. Croff, M.A. Bjerke, G.W. Morrison, L.M. Petrie: "Revised Uranium-Plutonium Cycle PWR and BWR Models for the ORIGEN Computer Code", ORNL/TM-6051 (1978)  
A.G. Croff, R.L. Haese, N.B. Gove: "Updated Decay and Photon Libraries for the ORIGEN Code", ORNL/TM-6055 (1979)
- /8/ W. Weyer: DWK Hannover, (persönliche Mitteilung)
- /9/ E. Kiefhaber: (persönliche Mitteilung)

	SNR300			Super Phenix			Biblis
	Core 1	Core 2	ax.Bl.	Core 1	Core 2	ax.Bl.	
U234							24.3
U235	L 15.121	11.314	11.822	58.750	49.479	81.093	3200.
	M 14.843	11.060	11.822	62.484	52.918	81.093	
U238	L 2111.7	1580.0	4777.4	12876.	10844.	17973.	96776.
	M 2132.6	1588.9	4777.4	13694.	11598.	17973.	
Pu238	L 1.8851	8.5709	-	40.992	46.360	-	
	M -	-	-	-	-	-	
Pu239	L 483.73	536.44	-	1370.5	1550.0	-	
	M 504.09	603.69	-	1736.3	1994.2	-	
Pu240	L 146.22	215.45	-	573.84	648.99	-	
	M 136.22	163.13	-	464.03	524.78	-	
Pu241	L 38.755	92.638	-	266.15	301.01	-	
	M 25.332	30.336	-	55.640	62.924	-	
Pu242	L 9.6569	27.124	-	137.31	155.29	-	
	M 5.0873	6.0924	-	9.3118	10.531	-	
Am241	L 3.4418	4.4504	-	39.068	44.184	-	
	M -	-	-	9.2733	10.487	-	
Total	L 2810.5	2476.0	4789.2	15362.	13639.	18054.	1000000.
SM	M 2818.2	2403.3	4789.2	16058.	14253.	18054.	

Tabelle 1: Schwermaterial-Inventar in kg SM am Bestrahlungsanfang für die vorliegenden Inventarrechnungen ; L=LWR-Pu-Beladung, M=Magnox-Pu-Beladung bei den SBR.

	SNR300			Super Phenix			Biblis
	Core	ax.Bl.	C+B1.	Core	ax.Bl.	C+B1.	
Mittlerer Abbrand [Gwd/tSM]	57.1	2.0	30.7*	62.7	3.2	40.5*	33.0
Zahl der Zyklen	3			2			3
Betriebsweise VLT/NLT**	170/60; 142/60; 129			je 320/45			je 333/40

Tabelle 2: Verwendete Betriebscharakteristika;

\* mit den Massen aus Core und ax.Blank. gebildete Mittelwerte,

\*\* Volllasttage/ Nulllasttage

Z	Element	SNR300 <sup>a)</sup>			Super Phenix <sup>b)</sup>			Biblis <sup>c)</sup>
		Core 1	Core 2	ax.B1.	Core 1	Core 2	ax.B1.	
5	B							9.35-1
6	C				5.24+2	5.23+2	5.28+2	1.11+2
8	O	1.34+5	1.34+5	1.34+5	1.34+5	1.34+5	1.34+5	1.36+5
13	Al							1.19+3
14	Si	2.48+3	2.46+3	2.30+3	6.56+3	6.55+3	6.61+3	1.08+3
15	P							4.88+1
16	S							3.29+1
22	Ti	1.42+3	1.41+3	1.33+3	2.62+3	2.61+3	2.64+3	8.47+2
24	Cr	9.57+4	9.49+4	8.89+4	1.08+5	1.08+5	1.09+5	2.34+4
25	Mn				1.31+4	1.31+4	1.32+4	2.10+3
26	Fe	4.14+5	4.11+5	3.85+5	4.14+5	4.13+5	4.17+5	7.55+4
27	Co							1.20+2
28	Ni	9.57+4	9.49+4	8.89+4	7.64+4	7.63+4	7.70+4	2.56+4
29	Cu							9.70+0
40	Zr							2.89+5
41	Nb	1.86+3	1.84+3	1.71+3				5.09+2
42	Mo	9.03+3	8.96+3	8.38+8	1.59+4	1.59+4	1.60+4	5.05+2
50	Sn							4.27+3
73	Ta							4.09+2

**Tabelle 3:** Struktur- und Hüllmaterialien (einschließlich oxid.Sauerstoff) in gr/tSM am Bestrahlungsanfang für die vorliegenden Inventarrechnungen bei Beladung mit LWR-Pu für SBR  
a) Wichtigste Elemente der Stähle 1.4970 und 1.4981; die Bildung radioaktiven Co und Mn wird berücksichtigt, da im Schnellen Reaktor radioaktives Co und Mn hauptsächlich über (n,p)-Reaktionen an Ni58 bzw. Fe54 entstehen.  
b) Wichtigste Elemente der Stähle AESI316 und 316TI  
c) Nach Angaben von DWK<sup>8)</sup>

		Zeit nach der Entladung aus dem Reaktor										
		o	90d	160d	270d	1y	1y *	2.5y	5y	7y	7y*	10y
Ci/tSM	SNR300 L	3.8+8	1.1+7	7.5+6	5.1+6	4.2+6	3.1+6	1.2+6	4.9+5	3.4+5		2.7+5
	M	3.8+8	1.1+7	6.9+6	4.5+6	3.6+6	3.1+6	1.2+6	4.8+5	3.4+5		2.6+5
	S.Phen L	3.9+8	1.2+7	8.3+6	5.7+6	4.6+6	3.8+6	1.5+6	6.3+5	4.5+5		3.5+5
	M	3.9+8	1.2+7	7.8+6	5.2+6	4.1+6	3.8+6	1.5+6	6.2+5	4.4+5		3.4+5
	Biblis	1.9+8				2.4+6		1.1+6	6.0+5	4.9+5	4.05+5	3.3+5
W/tSM	SNR300 L	3.7+6	4.5+4	3.1+4	2.0+4	1.5+4	1.4+4	4.6+3	1.5+3	1.1+3		9.0+2
	M	3.7+6	4.0+4	2.7+4	1.7+4	1.3+4	1.3+4	4.3+3	1.4+3	9.0+2		7.1+2
	S.Phen L	3.5+6	5.8+4	4.1+4	2.7+4	2.1+4	1.9+4	6.1+3	2.2+3	1.6+3		1.4+3
	M	3.6+6	4.8+4	3.3+4	2.1+4	1.6+4	1.6+4	5.4+3	1.8+3	1.2+3		9.4+2
Biblis	1.9+6				1.0+4		4.1+3	2.0+3	1.5+3	1.4+3	1.1+3	
n/sec tSM	SNR300 L	3.4+9	2.4+9	1.9+9	1.3+9	9.4+8	8.6+8	2.6+8	1.8+8	1.6+8		1.5+8
	M	7.9+8	5.8+8	4.6+8	3.3+8	2.6+8	2.2+8	8.4+7	6.5+7	6.0+7		5.4+7
	S.Phen L	9.1+9	6.6+9	5.3+9	3.8+9	3.0+9	2.9+9	1.3+9	1.1+9	9.9+8		8.8+8
	M	2.0+9	1.4+9	1.1+9	7.3+8	5.3+8	5.0+8	1.4+8	9.2+7	8.5+7		7.6+7
	Biblis	8.9+8				4.1+8		2.8+8	2.5+8	2.3+8	2.2+8	2.0+8

Tabelle 4: Radioaktivität, Wärmefreisetzung und Neutronenemission bestrahlter BE vor der WA und des Abfalls nach der WA für Core + axiales Blanket des SNR300 und Super Phenix sowie für den DWR Biblis; L, M siehe Tab.1

\* Werte nach der WA bei 1% U, Pu-Verbleib im Abfall

Jahre nach Entl.		10	100	200	10 <sup>3</sup>	10 <sup>4</sup>	10 <sup>5</sup>	10 <sup>6</sup>		
Radioaktivität [Ci/tSM]	SNR300	LWR-Pu	LE*	4.1+3	5.5+1	3.1+1	9.3	5.7	1.5	6.0-3
			AK	1.5+4	6.9+3	5.6+3	1.6+3	1.2+2	1.4+1	1.2+1
		FP	2.5+5	2.8+4	3.4+3	2.1+1	1.9+1	1.4+1	3.3	
		Tot.	2.7+5	3.5+4	9.0+3	1.6+3	1.5+2	3.0+1	1.6+1	
	Magnox-Pu	LE	4.1+3	5.6+1	3.1+1	9.4	5.7	1.5	6.1-3	
		AK	6.0+3	2.2+3	1.8+3	6.0+2	8.9+1	6.9	4.4	
	FP	2.5+5	2.8+4	3.4+3	2.1+1	1.9+1	1.5+1	3.3		
	Tot.	2.6+5	3.0+4	5.3+3	6.3+2	1.1+2	2.3+1	7.7		
	Super Phenix	LWR-Pu	LE	7.1+3	8.4+1	4.8+1	1.5+1	6.3	2.3	1.8-2
			AK	2.2+4	9.7+3	7.6+3	2.0+3	2.0+2	1.9+1	1.5+1
		FP	3.2+5	3.6+4	4.4+3	2.7+1	2.4+1	1.9+1	4.2	
		Tot.	3.5+5	4.6+4	1.2+4	2.0+3	2.3+2	4.0+1	1.9+1	
Magnox-Pu	LE	6.9+3	8.1+1	4.7+1	1.5+1	6.1	2.2	1.8-2		
	AK	5.4+3	2.5+3	2.0+3	5.7+2	7.1+1	7.0	5.0		
FP	3.3+5	3.7+4	4.5+3	2.8+1	2.5+1	1.9+1	4.3			
Tot.	3.4+5	3.9+4	6.6+3	6.1+2	1.0+2	2.8+1	9.3			
Biblis		LE	1.2+4	1.2+3	5.7+2	2.0+1	1.7+1	7.7	2.3-1	
		AK	3.5+3	1.3+3	1.0+3	3.2+2	2.3+1	3.7	4.9	
		FP	3.1+5	3.5+4	3.4+3	1.9+1	1.8+1	1.4+1	3.1	
		Tot.	3.3+5	3.7+4	5.0+3	3.6+2	5.8+1	2.6+1	8.3	
Wärmefreisetzung [W/tSM]	SNR300	LWR-Pu	LE	8.1	6.9-2	6.0-2	5.0-2	4.0-2	9.3-3	6.1-6
			AK	2.8+2	2.1+2	1.8+2	5.1+1	3.2	3.4-1	2.9-1
		FP	6.1+2	7.0+1	6.9	2.6-2	2.5-2	1.5-2	8.7-4	
		Tot.	9.0+2	2.8+2	1.9+2	5.1+1	3.3	3.7-1	2.9-1	
	Magnox-Pu	LE	8.2	7.0-2	6.0-2	5.1-2	4.1-2	9.4-3	6.2-6	
		AK	8.8+1	6.9+1	5.9+1	1.9+1	2.6	1.9-1	1.1-1	
	FP	6.2+2	7.0+1	6.9	2.7-2	2.5-2	1.5-2	8.8-4		
	Tot.	7.1+2	1.4+2	6.6+1	1.9+1	2.7	2.1-1	1.1-1		
Super Phenix	LWR-Pu	LE	1.3+1	5.7-2	4.3-2	3.0-2	2.7-2	1.2-2	1.4-5	
		AK	5.4+2	2.8+2	2.3-2	6.2+1	4.7	4.9-1	3.6-1	
	FP	8.1+2	9.1+1	9.0	3.4-2	3.2-2	1.9-2	1.1-3		
	Tot.	1.4+3	3.7+2	2.4+2	6.2+1	4.7	5.2-1	3.6-1		
Magnox-Pu	LE	1.3+1	5.5-2	4.1-2	2.9-2	2.6-2	1.2-2	1.3-5		
	AK	1.0+2	7.5+1	6.2+1	1.8+1	2.0	1.8-1	1.2-1		
FP	8.2+2	9.3+1	9.2	3.4-2	3.2-2	1.9-2	1.2-3			
Tot.	9.4+2	1.7+2	7.2+1	1.8+1	2.1	2.2-1	1.2-1			
Biblis		LE	9.2+1	5.9-1	3.4-1	1.2-1	1.1-1	4.7-2	5.3-5	
		AK	9.2+1	4.2+1	3.4+1	1.0+1	5.2-1	8.7-2	1.2-1	
		FP	9.3+2	9.7+1	9.4	1.6-2	1.6-2	9.9-3	7.0-4	
		Tot.	1.1+3	1.4+2	4.4+1	1.0+1	6.4-1	1.4-1	1.2-1	

Tabelle 5: Radioaktivität und Wärmefreisetzung des Abfalls aus Core + ax. Blanket des SNR300 und des Super Phenix sowie des DWR Biblis

\*LE=leichte Elemente, AK=Aktiniden, FP=Spaltprodukte, Tot.=Summe über LE, AK und FP

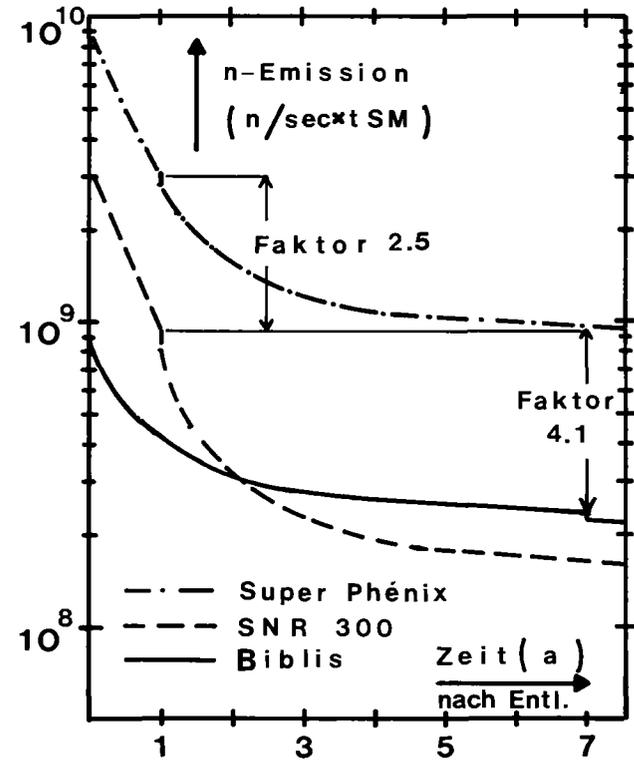
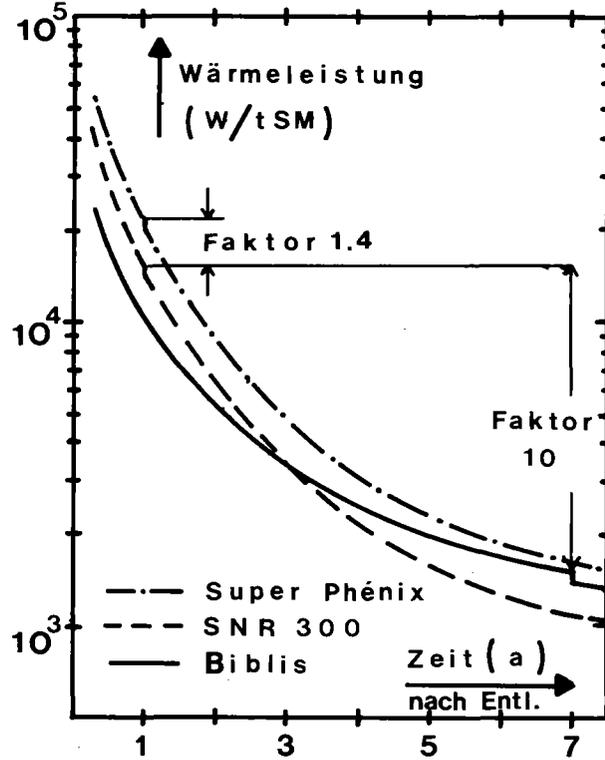
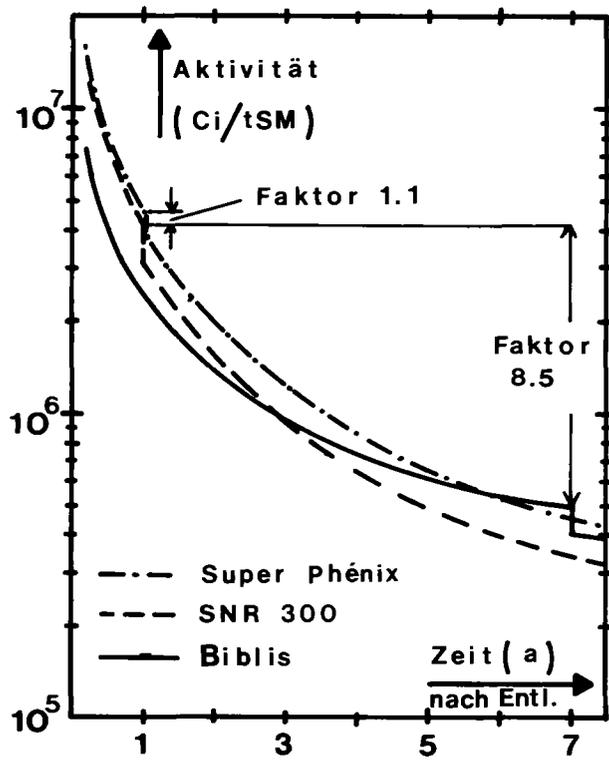


Abb.1-3: Vergleich der Radioaktivität, Wärmeleistung und n-Emission abgebrannter BE vor der WA und des Abfalls nach der WA für die SBR SNR300, Super Phénix (jeweils Core + ax. Blanket) mit LWR-Pu- Beladung sowie den DWR-Biblis

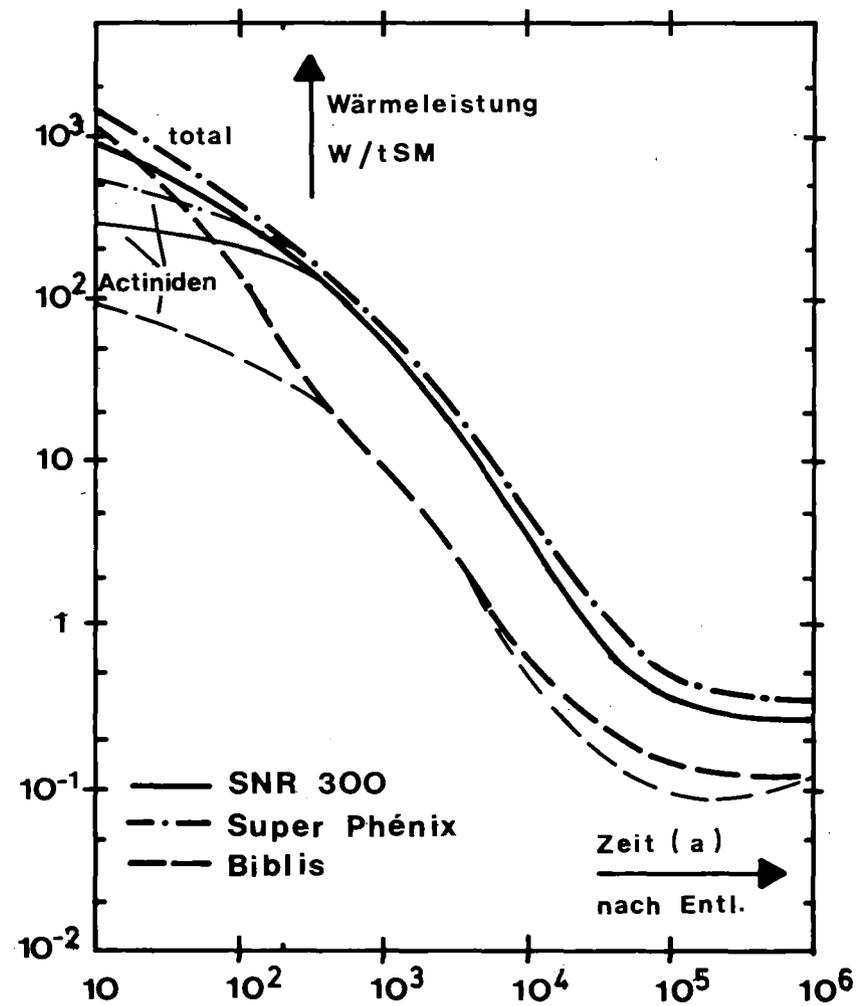
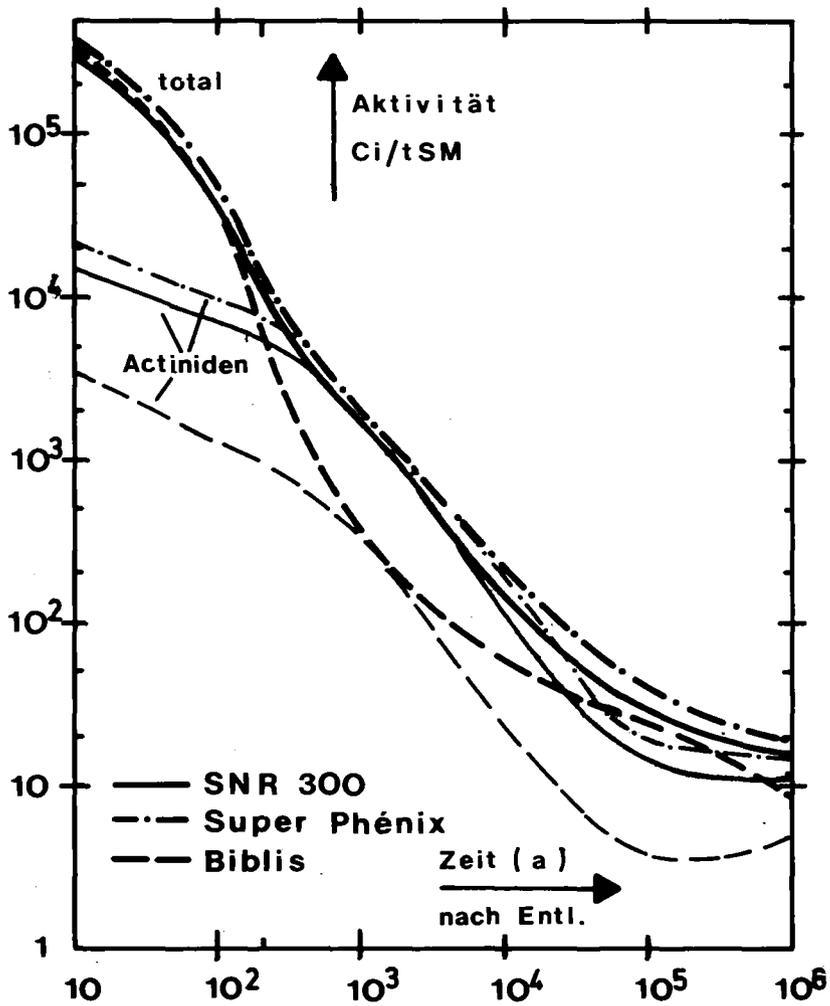


Abb.4,5: Langzeitverhalten des Wastes der SBR SNR300, Super Phénix (jeweils Core + ax. Blanket) mit LWR-Pu Beladung und des DWR-Biblis: Radioaktivität und Wärmeleistung pro Tonne anfänglich eingesetzten Schwermaterials

## Lokalisierung von defekten Brennstäben in Brennstabbündeln und Reparatur von Brüterelementen

H. Deckers, H. Drexler, H. Reiser

Institut für Material- und Festkörperforschung  
Kernforschungszentrum Karlsruhe

### Zusammenfassung

Es wird ein Verfahren zur Reparatur von Brüter-Brennelementen mit einzelnen defekten Brennstäben vorgestellt. Für die Detektion der defekten Stäbe wird das Prinzip der Stabinnendruckmessung vorgeschlagen. Dieses Meßverfahren kann innerhalb des geschlossenen Bündelverbandes angewandt werden. In die Brennstäbe werden Faltenbalg-Druckmeßdosen eingebaut, in denen unter dem Einfluß des Spaltgasdruckes ein Eisenkern bewegt wird. Dieser kehrt bei einem Stableck in seine Ausgangslage zurück. Durch induktiven Abgriff wird die Lage des Eisenkerns gegenüber der äußeren Stabkontur gemessen. Erste Vorversuche haben gezeigt, daß mit diesem Detektionsverfahren Stabdefekte bereits bei einem Bündelabbrand unter 10 MWd/kg eindeutig erkannt werden können. Ein Konzept für die technische Ausführung der Prüf- und Reparaturvorrichtung in der Heißen Zelle wird vorgeschlagen.

### Abstract

A method of repairing breeder fuel elements containing defective single rods is described. The principle of measuring the internal rod pressure is proposed for detection of the defective rods. This technique can be applied within the complete fuel subassembly. The fuel rods are equipped with bellows pressure transducers within which an iron core is moved under the impact of the fission product gas pressure. A leak in the rod causes the iron core to return to its initial position. The position of the iron core relative to the outer rod contour is measured by inductive transmission.

Some first preliminary tests have shown this method of detection to be capable of detecting rod defects already at subassembly burnups below 10 MWd/kg. A concept is proposed for the technical design of a test and repair facility in a hot cell.

## 1. Einführung

Während jeder Phase der Lebensdauer eines Brüter-Brennelementes können Schäden an einzelnen Brennstäben auftreten, die sich durch Austritt von Spaltprodukten und/oder Brennstoff in das Reaktorkühlmittel bemerkbar machen. Da Sekundärschäden durch chemische Reaktion zwischen dem Brennstoff und eingedrungenem Natrium möglich sind, ist - zumindest heute noch - ein längerer Betrieb eines Brennelementes mit Stabschäden problematisch.

Unter diesem Aspekt wurden Überlegungen angestellt, wie in einem als defekt erkannten Brennelement der oder die beschädigten Stäbe erkannt und mit einem Minimum an Zerlegeaufwand durch neue Brennstäbe ersetzt werden können. Dabei wurde angenommen, daß eine Heiße Zelle sowohl für die Reparatur als auch für die Zerlegung von Brüterelementen zum Zweck der Wiederaufarbeitung benutzt werden kann, wodurch die Wirtschaftlichkeit erhöht würde.

Grundlage der Überlegungen war schließlich ein Schnellbrüterelement des SNR-Mark II-Typs mit Gitterabstandshaltern.

## 2. Auswahl des Detektions- und Reparaturverfahrens

Für die Auswahl der Verfahren für Defektstabdetektion und Reparatur muß berücksichtigt werden, daß die Stäbe eines Brüterelementes infolge differentiellen Schwellens der Stabhüllen zum Durchbiegen neigen. Aus diesem Grund - aber auch anderen Gründen - muß unseres Erachtens der Bündelverband während der Prüfung und Reparatur erhalten bleiben und nur neue Austauschstäbe können in das Bündel eingeschoben werden.

Diese Einschränkung bedeutet, daß die üblichen Detektionsverfahren, das sind optische Inspektion, Sipping oder Wirbelstromprüfung der Einzelstäbe nicht angewandt werden können. Als Alternative dazu wird von uns ein Detektionsverfahren vorgeschlagen, bei dem nur die unteren Stabenden für eine Meßsonde zugänglich sein müssen.

Dieses Verfahren beruht auf der Druckmessung mittels einer in die Brennstäbe integrierten einfachen Druckmeßdose (Abbildung 1). Diese Dose befindet sich über dem unteren Endstopfen. Innerhalb eines geschlossenen Faltenbalges verlagert sich beim Anstieg des Brennstabinnendruckes ein Ferritkern und stößt nach wenigen Zehntelmillimetern gegen einen Anschlag. Beim

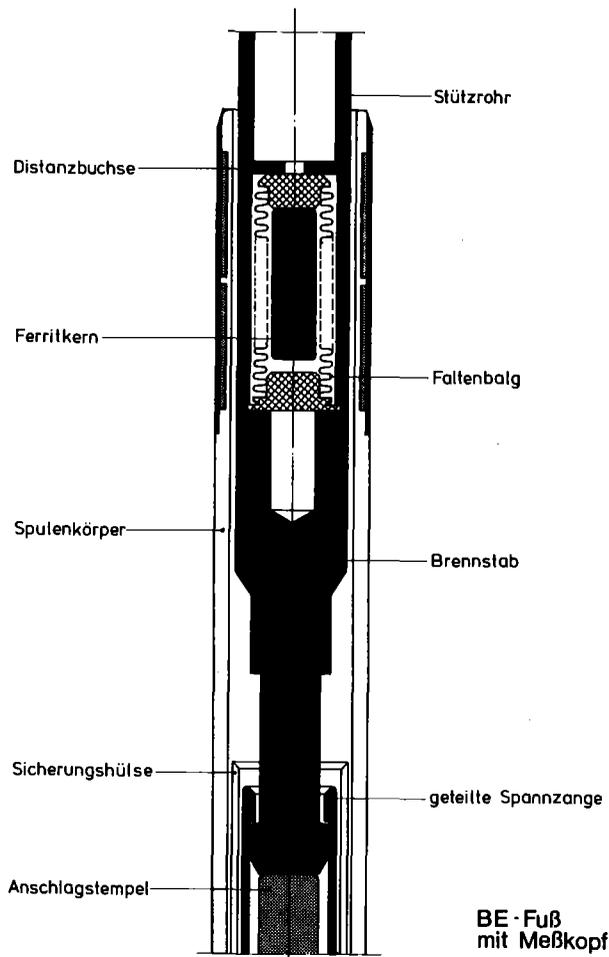


Abb. 1: Brennstabfuß mit Meßkopf

Dabei gelangen die Klauen der Spannzange über das untere verdickte Brennstabende hinweg. Sie werden durch Hochschieben eines Sicherungsrohres nach innen bewegt und drücken beim Anziehen der Spannzange den Brennstab gegen den Anschlagstempel. Mit Hilfe dieser Spannzange kann der Brennstab dann auch aus dem Bündel gezogen werden, wenn er als defekt erkannt wurde.

Für die Messung der Lage des Ferritkernes wird das Prinzip der induktiven Wegmessung über Differentialdrossel angewandt. Die an eine induktive Meßbrücke angeschlossene Drossel erzeugt beim Überschieben des Spulenkörpers über den Eisenkern am Ausgang eines Meßverstärkers einen Signalverlauf gemäß Abbildung 2.

Stabschaden kehrt der Kern durch die Federwirkung des Balges in seine Ausgangslage zurück. Dieser Unterschied in der Lage des Ferritkernes kann durch induktive Messung detektiert werden. Die ganze Druckmeßdose hat einen Durchmesser von 6 mm und eine Länge von etwa 20 mm. Sie könnte in Massenfertigung sehr billig hergestellt werden.

Der Meßkopf besteht aus dem zentralen Anschlagstempel, einer Spannzange und einem ringförmigen Spulenkörper, der für die Messung etwa 55 mm weit über das untere Brennstabende geschoben werden kann. Vorher jedoch fährt der Anschlagstempel gegen die Stirnfläche des Brennstabes.

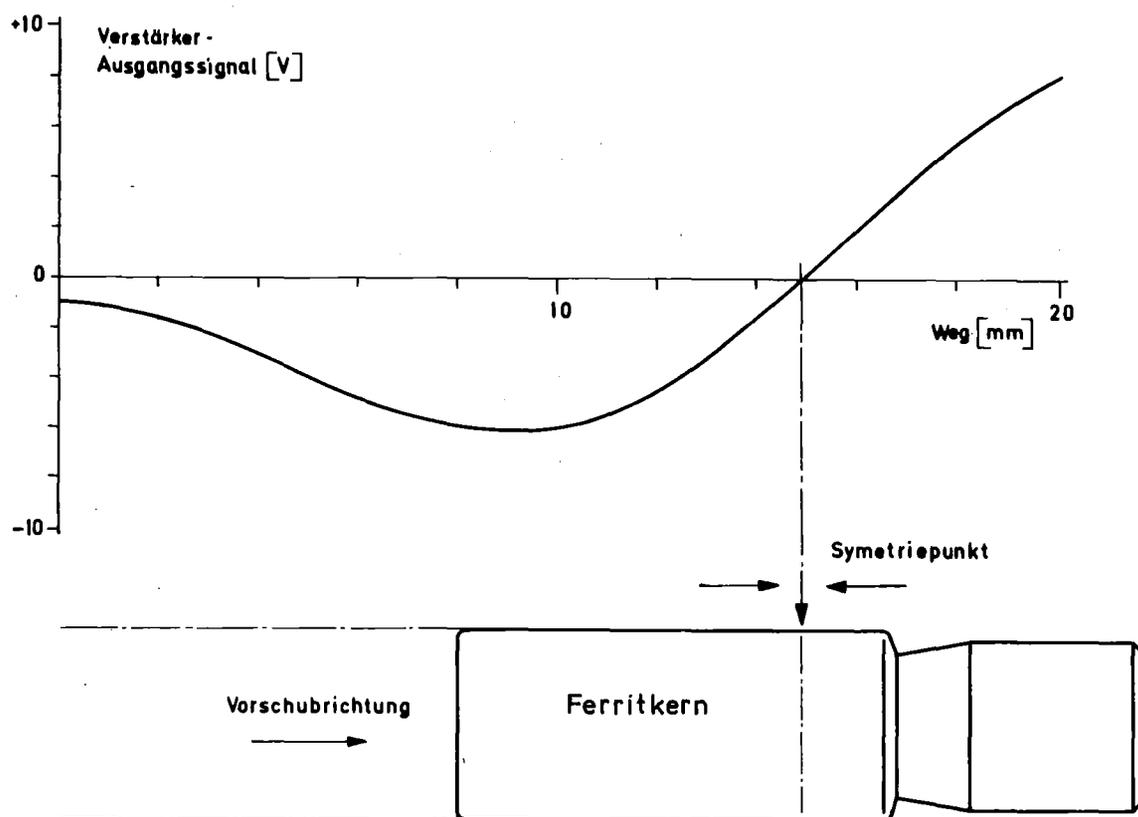


Abb. 2: Verlauf des Meßsignals

Der sehr deutliche Nulldurchgang zeigt an, daß der Kern genau zwischen den Spulenhälften liegt. Die Stellung des Spulenkörpers beim Nulldurchgang wird erfaßt. Damit ist die Lage des Eisenkernes relativ zur unteren Stirnfläche des Brennstabes bekannt.

### 3. Ergebnisse der Vorversuche

Zur Kontrolle dieses Meßverfahrens wurde ein einfacher Vorversuch durchgeführt. Dafür wurde ein vereinfachter Meßkopf und ein Bündel von 19 Stäben in SNR-Mark II-Geometrie hergestellt (Abbildung 3). In 18 der Stäbe waren die Ferritkerne fest im Endstopfen montiert, in einem Stab konnte der Kern axial bewegt werden, und ein Stab wurde während der Versuchsserie mit Natrium gefüllt.

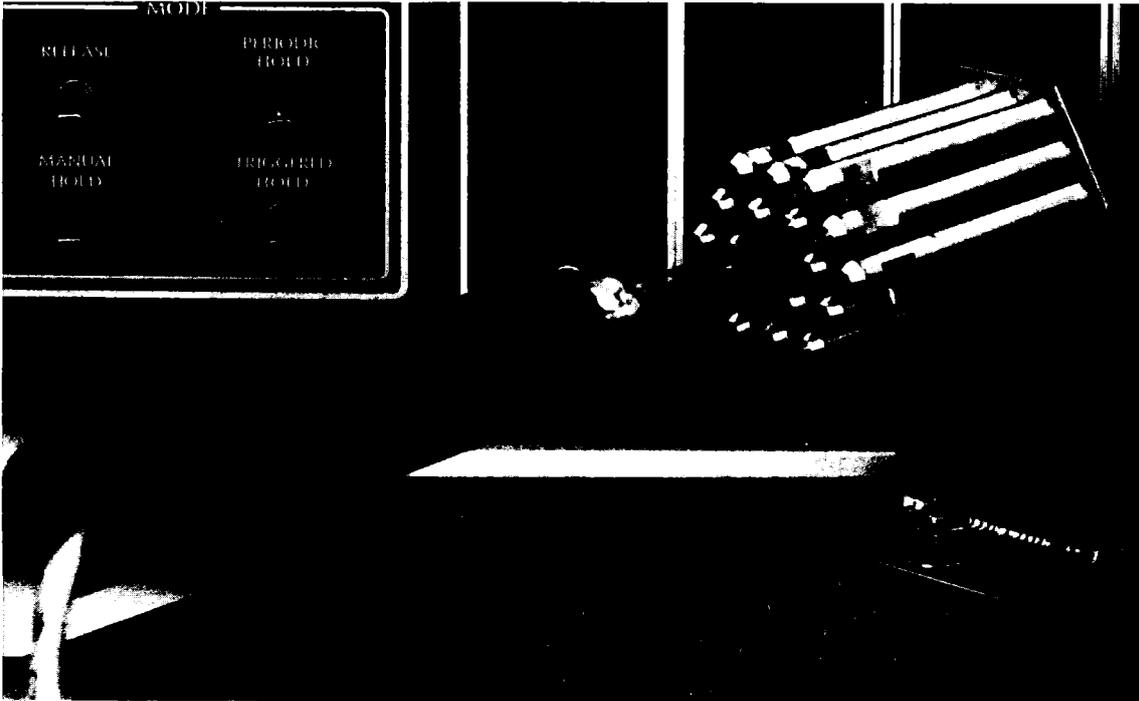
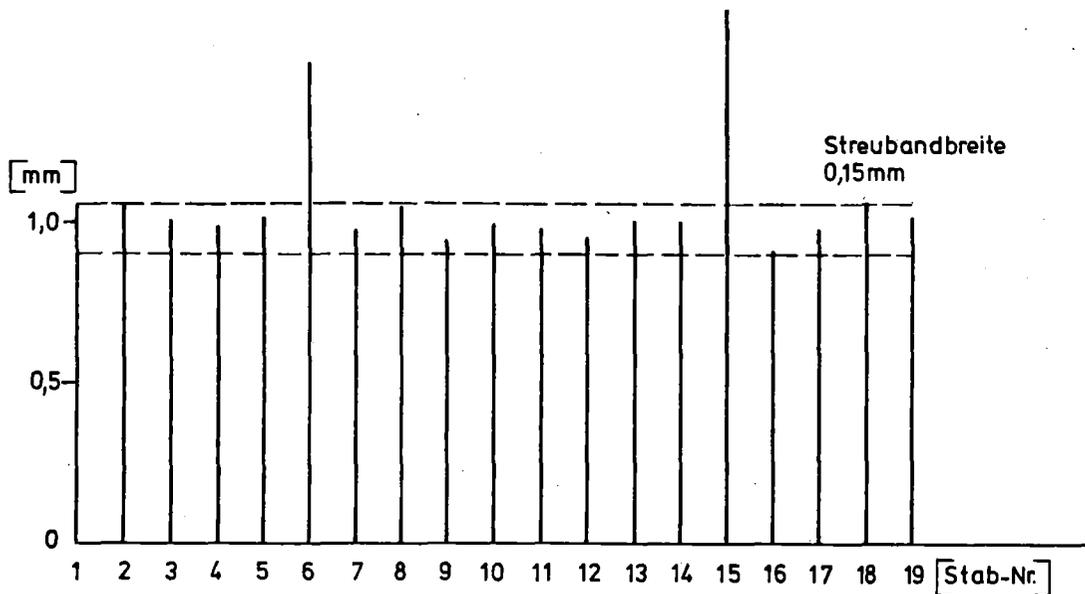


Abb. 3: Versuchsanordnung mit 19-Stabbündel und Meßkopf

Die Auswertung und Darstellung der Meßwerte wurde automatisch vorgenommen (Abbildung 4). Per Programm wurde für jeden Stab der Symmetriepunkt ermittelt und der zugehörige Wegwert in einem Register abgelegt. Nach Abschluß der 19 Messungen wurde der Mittelwert errechnet und die Streuung als Balkendiagramm dargestellt. Bei der in Abbildung 4 dargestellten Messung waren alle Kerne in Nullstellung. Nur der Kern Stab 6 war zur Simulation eines Druckabfalles um 0,5 mm verschoben worden. Das hohe Meßsignal von Stab 15 wurde bei feststehendem Eisenkern nur durch das Vorhandensein von Natrium im Stab hervorgerufen. Das heißt, daß auch eingedrungenes Natrium zu einem Meßsignal in die richtige Richtung führt.

Das Streuband der Messungen lag bei dem Vorversuch innerhalb von 0,15 mm, obwohl bei der Fertigung des Testbündels keine besonderen Forderungen an die Fertigungsqualität gestellt worden waren. Damit beträgt die geringste eindeutig erfaßbare Kernverlagerung 0,3 mm, wenn man einen minimalen Signalrauschabstand von 6 dB annimmt. Dies entspricht bei optimaler Auslegung des Faltenbalges einem meßbaren Überdruck im Brennstab von 1 bar. Das heißt, daß eine Leckdetektion bereits bei einem sehr geringen Abbrand - unter 10 MWd/kg - zu eindeutigen Ergebnissen führen wird.



Stab 15 mit Natrium gefüllt  
Magnetkern in Stab 6 um 0,525mm außerhalb der Nullstellung

Abb. 4: Meßsignale bei Abtastung der 19 Stäbe des Bündels

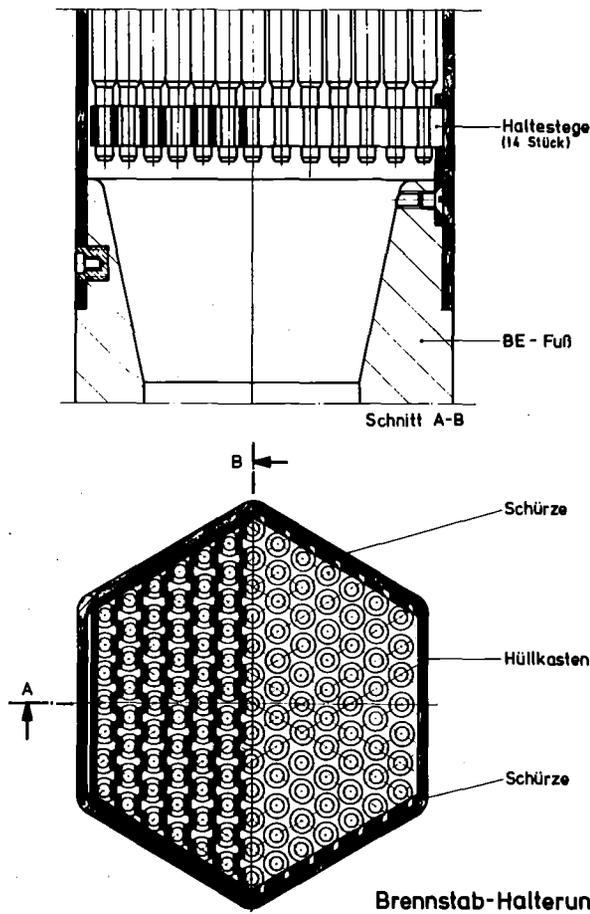
#### 4. Technische Durchführung der Reparatur eines Brennelementes

##### 4.1 Ausführung des Brennelementes

Wie bereits erwähnt wurde, soll die Überprüfung der Brennelemente auf Stabschäden im Bündelverband erfolgen, wobei alle Brennstäbe von unten in vollem Umfang für den Meßfühler zugänglich sein müssen.

Diese Forderung würde durch eine Stabhalterung gemäß Abbildung 5 erfüllt. Hierbei ist die üblicherweise starre Stabhalteplatte in zwei Schürzen und lose zwischen die Stabreihen eingelegte Haltestege aufgelöst worden. Das Bündel soll für die Demontage waagrecht auf einem Führungsbett in der Heißen Zelle eingespannt sein. Nun wird die Verbindung zwischen dem Hüllkasten und dem Fuß gelöst. Das Brennstabbündel kann danach zusammen mit dem Fuß um 70 bis 80 mm aus dem Hüllkasten herausgezogen werden. Nach dem Lösen der Verbindung zwischen Schürzen und Brennelement-Fuß wird die obere Schürze abgenommen und die Haltestege werden einzeln ausgebaut. Das Bündel ist danach meßbereit.

#### 4.2 Meßvorrichtung



Eine schematische Übersicht über die Meßeinrichtung in der Heißen Zelle zeigt Abbildung 6. Die Meßeinrichtung ist so aufgebaut, daß alle Schritte zur Defekt-Kontrolle der Stäbe eines Brennelementes vorprogrammiert ablaufen.

Mit dem Brennelement-Führungsbett verbunden ist eine Meßbank. Auf dieser ist die Grundplatte für die Meßvorrichtung axial beweglich angebracht. Die Meßvorrichtung besteht aus einem Kreuzschlitten zum horizontalen und vertikalen Anfahren der Brennstabpositionen und dem darauf befestigten Meß-

Abb. 5: Vorschlag für Ausführung der Brennstabhalterung (SNR 300-Mk II-Element)

kopf. Alle Bewegungen, einschließlich der Bewegung des Meßspulenkörpers entlang dem Brennstab werden durch Gleichstrommotoren mit Tachogeneratoren und Inkrementalgebern (Meßverfahren nach dem Rampenverfahren) erzeugt. Es können praktisch spielfrei arbeitende Führungen und Spindeln eingesetzt werden. Dadurch wird die geforderte hohe Genauigkeit beim Anfahren der Brennstab-Positionen und beim Meßvorgang selbst erreicht. Zusätzlich sind Sicherheits-schaltungen vorgesehen, um eine Beschädigung der Brennstäbe unter allen Umständen auszuschließen.

Ein Mikroprozessorsystem, welches ausschließlich für diese Aufgabe ausgelegt ist, soll Bestandteil der Anlage sein. Es steuert den Meßkopf über zwei Achsen in die Brennstabpositionen, führt die Meßspulen über den Brennstab und speichert die Lage der Meßkerne mit den zugehörigen Positions-

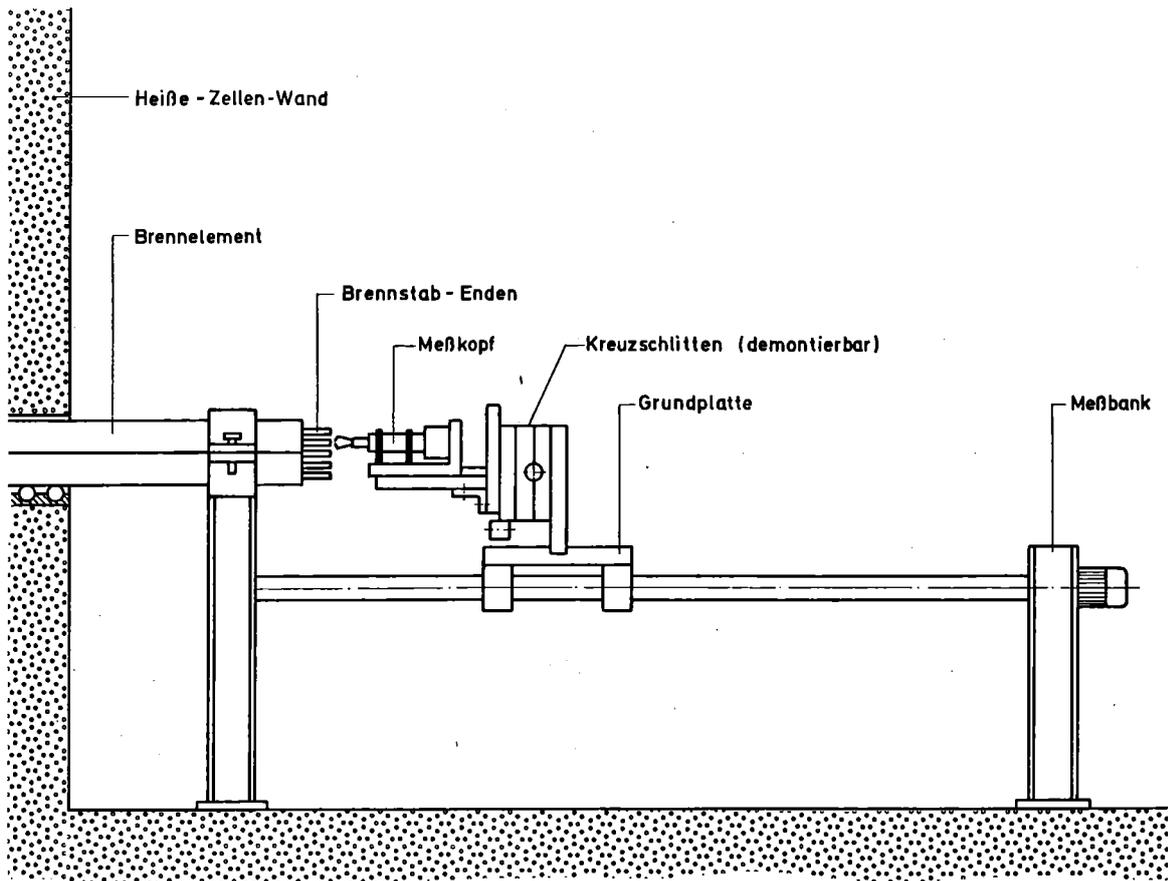


Abb. 6: Brennelement-Meßbank

kennungen ab. Nach der Vermessung des ganzen Bündels werden die Daten verarbeitet. Ermittelt werden die mittlere Lage aller Kerne und die mittlere Abweichung von dieser Lage. Werte, die deutlich außerhalb der mittleren Abweichung liegen, kennzeichnen Stabdefekte und werden mit den zugehörigen Positionen dargestellt.

Zur Zeit wird ein Modell im technischen Maßstab hergestellt. Nachgebildet werden hierbei insbesondere die vorgeschlagene Brennstabhalterung und die Meßeinrichtung einschließlich der vorprogrammierten Steuerung und der Verarbeitung der Meßdaten.

Mit Hilfe dieses Prototyps hoffen wir, im Laufe des nächsten Jahres die grundsätzliche Durchführbarkeit des Meß- und Reparaturverfahren nachweisen zu können.

Unterwassertechnik zur Reparatur von LWR-Brennelementen  
und deren Anwendung für die Zerlegung von KNK-BE

K. Knecht

Kraftwerk Union AG., Hammerbacherstraße 12 u.14, 8520 Erlangen

Zusammenfassung

Reparaturverfahren für Brennelemente, die das Ziel haben, defekte Brennstäbe auszutauschen, wurden seit 1970 für SWR- und DWR-Anlagen entwickelt. Die Arbeiten werden in Kernkraftwerken im Brennelementbecken durch Anwendung von Unterwassertechniken durchgeführt.

Das Ziel, KNK-II-BE zu vereinzeln und die Brennstäbe in Büchsen zu verpacken, läßt analoge Arbeitsschritte aus dem erprobten Verfahren auf die neue Aufgabe übertragbar erscheinen.

Der Bericht enthält eine Beschreibung des DWR-BE-Reparaturverfahrens sowie des Verfahrens zur Zerlegung des KNK-BE's.

Abstract

Repair procedures for fuel assemblies, with the objective to replace defective fuel rods, have been developed for PWR and BWR plants since 1970. The work is carried out in the spent fuel pits of the nuclear power plants using underwater techniques.

The objective to disassemble the fast breeder fuel assemblies of KNK II and afterwards pack the fuel rods into cans allows the use of working steps taken from the approved repair procedure and applied analogously to the new task.

This report contains a description of the PWR-FA repair procedure as well as the procedure for the disassembling of the fast breeder fuel assembly.

## 1. Einleitung

Reparaturen an LWR-Brennelementen werden in Deutschland seit 1970 durchgeführt. Hierzu war es notwendig, entsprechende Verfahren für die Durchführung der Reparaturen in den Kernkraftwerken zu entwickeln. Für diese Aufgabe ist das mit Wasser gefüllte Brennelementlagerbecken besonders geeignet. Dieses Becken kann neben den Brennelementen, die zur endgültigen Entladung aus dem Reaktor vorgesehen sind, auch defekte Brennelemente aufnehmen. Unter Ausnutzung der Vorteile

- Vermeidung von externen Transporten
- Abschirmung der vom Brennelement ausgesandten Strahlung durch das Wasser
- Durchsichtigkeit des Abschirmmediums

wurden die Verfahren auf die Unterwassertechnik abgestellt.

Die BE-Reparatur hat zum Ziel, defekte Brennstäbe in einem durch den Sipping-Test als defekt bekannten BE aufzufinden und auszutauschen /1,2/. Maßgebliche Gründe für eine BE-Reparatur bestehen in

- dem Bestreben des Betreibers, die Aktivitätskonzentration des Primärkühlmittels so gering wie möglich zu halten,
- der Verpflichtung des Lieferanten, die BE dem Abbrandziel defektfrei zuzuführen,
- der vollen Ausnutzung des Abbrandpotentials unter dem Gesichtspunkt der Wirtschaftlichkeit und der Entsorgung.

Die Reparaturtechnik wurde sowohl für DWR- als auch für SWR-BE der KWU-Auslegung entwickelt. In der jüngeren Vergangenheit wurde das Verfahren auch für BE anderer Hersteller weiterentwickelt. Eine Übersicht der bisher u.a. durchgeführten BE-Reparatur-Kampagnen gestattet Abb. 1.

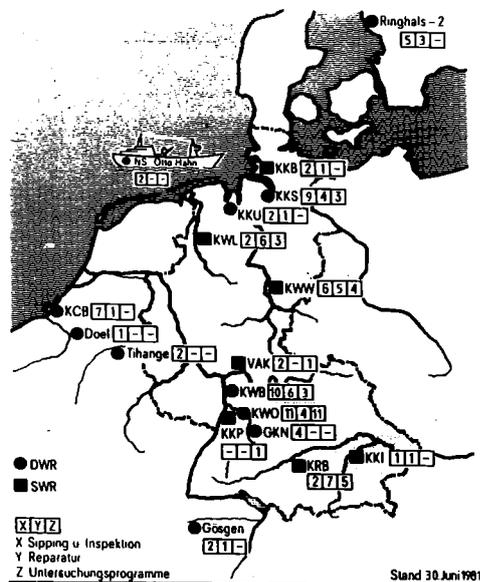


Abb.1 Brennelement - Service  
Bilanz der durchgeführten Aufgaben

Wegen der Möglichkeit, ähnliche und erprobte Verfahrensschritte aus dem Gebiet der DWR-BE-Reparatur auf die Zerlegung von KNK-II-BE zu übertragen, wird im folgenden das Reparaturverfahren für DWR-BE dargestellt.

## 2. Reparatur eines Standard-BE

### 2.1 Aufbau des Brennelementes

Das BE setzt sich zusammen aus dem Skelett, den Brennstäben, dem Kopf- und dem Fußstück. Das Skelett besteht aus 20 Führungsrohren (FR), die mit den Abstandshaltern verschweißt sind. Die FR sind mit dem Kopfstück und dem Fußstück fest verschraubt. Die BS sind in Abstandshaltern (AH) geführt, die durch Federn und Noppen die BS kraftschlüssig halten.

Zur Befestigung des Fußstückes an den Führungsrohren dienen Muttern mit Quetschhülse. Die Verschraubung ist einfach demontierbar und wird formschlüssig durch Quetschen der Hülse auf das beidseitig abgeflachte Endstück des Schraubenbolzens am Führungsrohr gesichert.

### 2.2 Beschreibung des Reparaturverfahrens

Das Reparaturverfahren und die Konzeption der BE sehen vor, daß für eine Reparatur das Fußstück vom BE gelöst wird. Aus diesem Grund muß das BE um 180° geschwenkt werden, damit das Fußstück dem Bearbeiter, der auf einer Hilfsbrücke steht, zugänglich wird. In dieser Stellung können die Muttern aus der formschlüssigen Sicherung gelöst und abgeschraubt werden, womit nach Abnehmen des Fußstückes die BS zugänglich sind. Schadhafte Stäbe werden mit dem Wirbelstromverfahren ermittelt und danach aus dem Skelett entfernt. In die freigewordenen Positionen werden dann Ersatzstäbe eingesetzt.

Nach Aufsetzen, Verschrauben und Sichern des Fußstückes wird das BE in die Ausgangsposition zurückgeschwenkt. Vor dem Wiedereinsatz wird der Erfolg der Reparaturmaßnahmen durch entsprechende Prüfungen (z.B. Sipping-Test) kontrolliert.

Sämtliche Arbeitsschritte und Prüfvorgänge sind in einem Schrittfolgeplan detailliert angegeben. Die wesentlichen Vorgänge werden protokolliert. Umsetzungsvorgänge der BE's und des Schwenkkorbes erfolgen mit dem Gebäudekran oder dem Hilfshub an der Lademaschine.

### 2.3 Aufbau der DWR-BE-Reparatureinrichtung

Im folgenden wird stichwortartig auf den Aufbau der Reparatereinrichtung im BE-Becken und die durchzuführenden Hauptarbeitsgänge eingegangen.

- Die Schwenkstation ist am Beckenboden aufgestellt und dient zum Schwenken des BE, so daß das Fußstück nach oben zeigt.
- Die 1. Abhängekonsole dient zum Lösen und Montieren des Fußstückes.
- Die 2. Abhängekonsole dient zum Ziehen der BS bei gleichzeitiger Wirbelstromprüfung unter ausreichender Wasserabschirmung.
- Eine 2. Wirbelstromprüfung sowie die visuelle Kontrolle des gezogenen Defektstabes dienen zur Charakterisierung des Schadens.
- Ein Köcher mit abnehmbarem Kopfstück dient zur Aufnahme der gezogenen Brennstäbe.

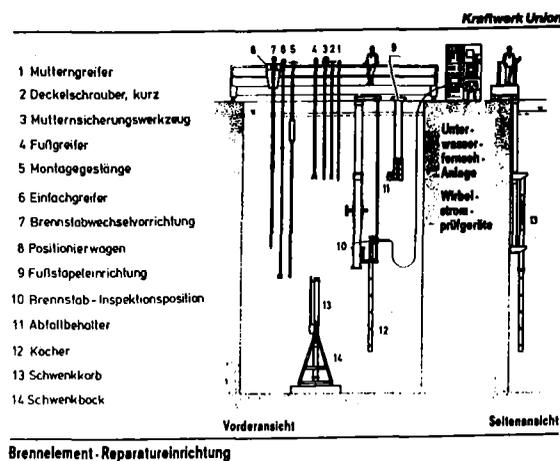


Abb.2

Die Gesamtanordnung der Reparatereinrichtung ist in Abb. 2 schematisch dargestellt.

### 2.4 Ortung defekter BS im BE

Die Ortung der defekten BS wird mit dem Wirbelstromverfahren durchgeführt.

Hierbei wird der an der Brennstabwechsellvorrichtung angekuppelte Brennstab durch eine am unteren Ende der BS-Wechsellvorrichtung befindliche Wirbelstromsonde gezogen. Die Prüfanordnung zeigt Abb. 3.

Der Prüfvorgang erstreckt sich auf alle Brennstäbe.

Die Hubbewegung der Brennstäbe in der BS-Wechsellvorrichtung wird durch eine Greiferstange ausgeführt, die von einem Getriebemotor angetrieben wird. Zur Überwachung der Zieh- und Schiebekräfte ist dieser Getriebemotor drehbar gelagert und über einen Hebelarm mittels Feder im Gleichgewicht gehalten.

Bei Überlast wird der Hebelarm ausgelenkt und betätigt Endschalter, die den Bewegungsvorgang beenden. Zur gezielten Ermittlung tatsächlich vorhandener Reibkräfte pro Abstandshalterzelle wird am Kopf des Hebels eine Kraftmeßdose installiert.

### 2.5 Wirbelstromprüfung

Das Prinzip der Wirbelstromprüfung ist bekannt /3/. Es werden zwei Spulen auf einem Wickelkörper verwendet, die gegensinnig geschaltet sind und mit hochfrequentem Wechselstrom von 300 kHz durchflossen werden. Die Spulen sind über eine Wheatstone'sche Brücke verbunden und abgeglichen. Veränderungen im Feld einer Spule führen zu einer Verstimmung der Brücke in Betrag und Phase, so daß das Signal in zwei Koordinaten von einem Oszillographen dargestellt und von einem Schreiber aufgezeichnet werden kann. Abb. 4 zeigt typische Hüllrohrfehler und deren Wirbelstromanzeigen.

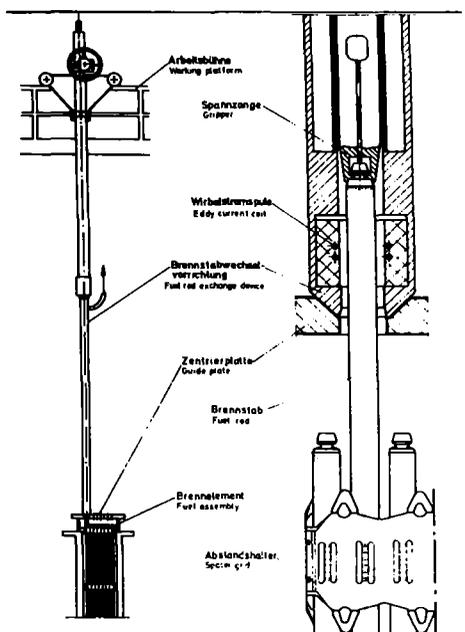


Abb.3 Brennstabprüfung mit Wirbelstrom  
Fuel Rod Testing with Eddy Current

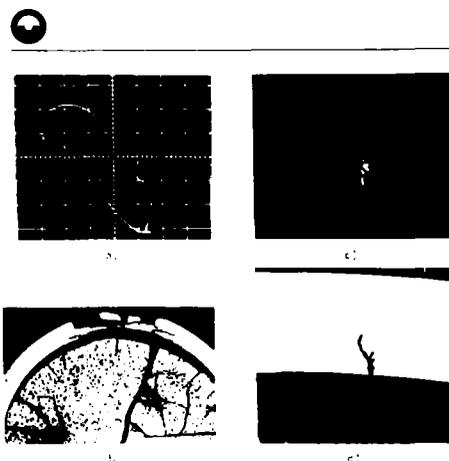


Abb.4

Wirbelstromprüfung bestrahlter Brennstäbe  
a) Anzeige eines Hydridfehlers  
b) Querschliff  
c) Anzeige eines beginnenden Risses an der Hüllrohrinnenseite mit  
d) Querschliff

### 3. Zerlegung des KNK-II-Treiber-BE's im BE-Becken des MZFR

#### 3.1 Zielsetzung

Brennelemente, die im KNK II eingesetzt waren und ihr Abbrandziel erreicht haben, sind zur Wiederaufarbeitung nach Marcoule zu transportieren. Aufgrund der Gegebenheiten in Marcoule werden jedoch nur Büchsen mit 103 mm Außendurchmesser angenommen, in denen die Brennstäbe gasdicht eingeschlossen sind. Zusätzlich zur Möglichkeit, die Zerlegung und Verpackung in den heißen Zellen durchzuführen, wurde die Möglichkeit der Unterwasserhandhabung untersucht.

#### 3.2 Merkmale des KNK-II-Treiber-BE's

Der Aufbau des BE's wird als bekannt vorausgesetzt.

Die für die BE-Zerlegung wichtigen Konstruktionsmerkmale seien jedoch kurz zusammengefaßt.

Die Brennstäbe befinden sich in einer hexagonalen Anordnung über Abstandhalter geführt in einem sechseckigen Kasten.

Fußseitig sind die Brennstäbe durch eine Gitterplatte einzeln über schweißgesicherte Muttern fixiert.

Die Fuß- und Kopfstücke des BE's sind über je 12 radial angeordnete Stifte mit dem Sechseckkasten verbunden, die ebenfalls schweißgesichert sind.

#### 3.3 Aufbau und Hauptarbeitsgänge der BE-Zerlegeeinrichtung

Zur Durchführung der BE-Zerlegung ist das Vorhandensein der funktionierenden Zerlegeeinrichtung erforderlich.

Abb. 5 zeigt schematisch eine mögliche Anordnung im MZFR-Becken. Die zu bearbeitenden BE stehen in Büchsen mit Durchmesser 154 mm verpackt im Becken des MZFR.

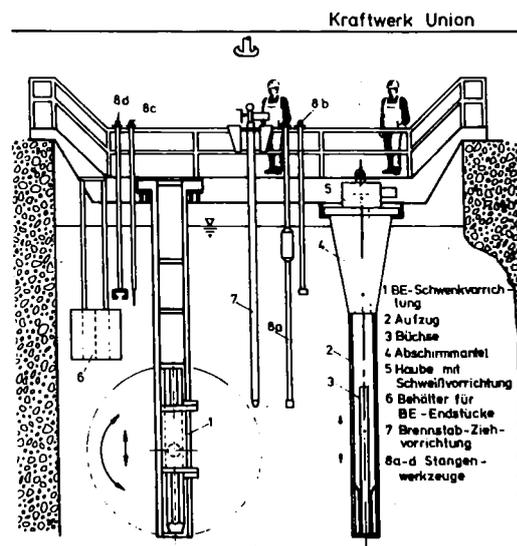


Abb.5 Unterwasserzerlegung von KNK-II-BE

Die Hauptarbeitsgänge und die wichtigsten Geräte zu deren Durchführung sind in Tabelle 1 aufgeführt.

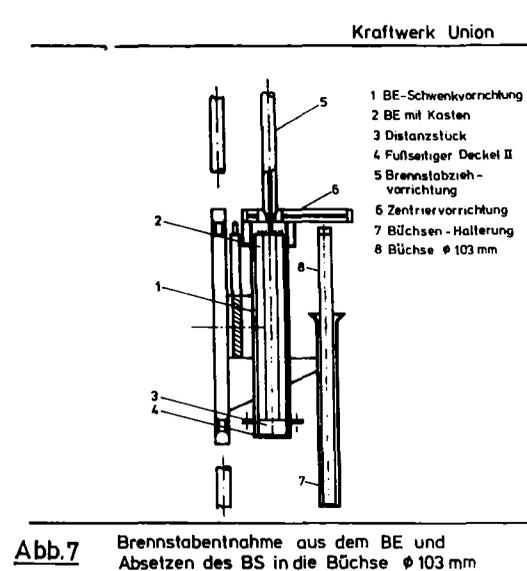
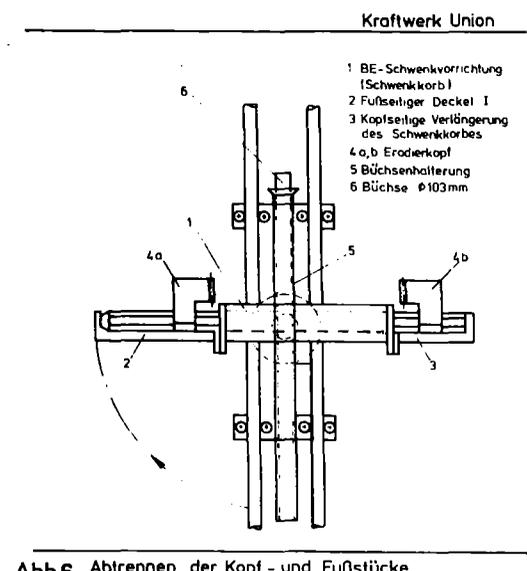
Wichtige Arbeitsgänge, wie das Abtrennen der BE-Endstücke und das Umsetzen der Brennstäbe aus dem BE in die Büchse, sind in den Abbildungen 6 und 7 dargestellt.

#### 4. Sicherheit des am Brennelementlagerbecken tätigen Personals

Alle zur Zerlegung verwendeten Vorrichtungen und Geräte entsprechen dem Qualitätsstandard für LWR-Anlagen. Vorrichtungen, die Kernbrennstoff tragen, werden in Anlehnung an die KTA-Regeln 3902 und 3602 ausgelegt und dokumentiert.

Zur Überwachung der Strahlung am Arbeitsplatz müssen Dosiswarngeräte sowie Aerosol- und Edelgasmonitore installiert werden.

Als denkbarer Störfall wird der Bruch eines Brennstabes angenommen. Unter der Annahme, daß die Arbeitsplatzabsaugung nicht in Betrieb ist, müssen Berechnungen der Dosisleistung für das am Becken arbeitende Personal durchgeführt werden.



Weitere Sicherheitsüberlegungen gelten der sicheren Vermeidung einer kritischen Anordnung beim Umsetzen der Brennstäbe aus dem BE in die Büchsen.

Hierzu sind entsprechende Rechnungen und Brennstabumsetzschrittfolgen zu erstellen.

## 5. Ausblick

Bei Zusammenfassung des technischen know-how's sollte es möglich sein, die gestellte Aufgabe zu lösen.

Weitere Anwendungen der entwickelten Technik für andere BE-Typen sind ebenfalls denkbar.

Unter dem Aspekt einer optimalen Brennstoffnutzung könnte das beschriebene Verfahren auch zur Reparatur von zukünftigen reparaturfreundlichen Schnellbrüter-BE's verwendet werden.

## Referenzen

- /1/ A.Stöckert et al. Proc. Reaktortagung, Hannover, p. 561 (1978)
- /2/ H. Knaab, K. Knecht, F. Garzarolli  
KWU-Brennelement-Service, Kerntechnik 19, Nr. 3 (1977), S.122-130
- /3/ F. Förster, Zeitschrift Metallkunde, Band 43/45, Jahr 1952/54  
Theoretische und experimentelle Grundlagen der zerstörungsfreien Werkstoffprüfung mit WS-Verfahren, S.163-171

Lfd.Nr.	Hauptarbeitsgang	Notwendige Geräte
1	BE aus der Büchse Ø 154 mm entnehmen	BE-Aufzug, Abschirmmantel, BE-Abkühlvorrichtung, BE-Greifer
2	Abtrennen der BE-Endstücke	BE-Schwenkvorrichtung, Erodiervorrichtung, Behältnis zur Aufnahme des BE-Endstücks Greifwerkzeuge
3	Brennstäbe entnehmen und in Büchse Ø 103 mm einsetzen	Zusatzdeckel für Schwenkvorrichtung, Druckvorrichtung zum Verschieben des Kastens, Greifer für Gitterplatte, Brennstab-Ziehvorrichtung, Zentriervorr.
4	Umsetzen des BE-Kastens und der Abstandshalter	BE-Kasten- und Abstandshaltergreifer
5	Rückführung des Schwenkkorbes in die Ausgangslage	fußseitiger Deckel kopfseitige Verlängerung d. Schwenkkorbes
6	Umrüsten des Aufzuges zur Aufnahme der Büchse Ø 103 mm	BE-Aufzug, Zentrierstücke
7	Verschließen der Büchse Ø 103 mm	BE-Aufzug, Abschirmmantel, Entwässerungsanlage für Büchse Ø 103 mm, Schweißvorrichtung

Tab. 1: KNK II; BE-Zerlegung

Brüterspezifische Probleme bei Brennelement-Transporten  
und Behälterauslegung

R. Christ  
Transnuklear GmbH  
6450 Hanau 11, Rodenbacher Chaussee 6

Zusammenfassung

Es werden die brüterspezifischen Probleme beim Transport frischer und bestrahlter Brennelemente im Vergleich zu LWR-Brennstoff aufgezeigt. Ferner werden Behälterkonzepte für den Transport bestrahlter KNK II-Elemente beschrieben.

Abstract

The specific problems of shipping fresh and irradiated LMFBR fuel assemblies are discussed by comparison to LWR fuel. In addition cask designs for the transport of spent KNK II fuel are presented.

## 1. Transport frischer SBR-Elemente

Bei der Auslegung von Behältern für frische SBR-Elemente und der Abwicklung der Transporte sind folgende brüterspezifischen Aspekte zu beachten:

- Für die Behälter ist aufgrund der Toxizität des Pu die Verpackungskategorie "Typ B" gefordert /1/, d.h. die Behälter müssen schweren Unfallbeanspruchungen standhalten. Für LWR-Brennstoff ist dagegen nur die Kategorie "Typ A" erforderlich.
- Je nach Isotopenzusammensetzung des Pu muß mit einer relativ hohen Zerfallswärmeleistung gerechnet werden. Im Falle von SNR-300 Elementen liegt der Vorgabewert bei 375 Watt pro Element /2/. Das ist bereits 25 Prozent des Wertes beim Abtransport der bestrahlten Elemente. Die Zerfallswärme frischer LWR-BE dagegen ist völlig vernachlässigbar.
- Es ist mit einer relativ hohen Neutronenstrahlung zu rechnen. Der Vorgabewert für SNR-300 BE liegt bei  $2 \cdot 10^7$  n/sec je BE, für LWR-BE praktisch Null.

Für den Transportbehälter für SNR-300 BE mit einer Kapazität von 6 - 7 Elementen ist deshalb eine Neutronenabschirmung vorzusehen sowie metallische Rippen, die die schlecht wärmeleitende Neutronenabschirmung durchdringen. Ferner sind die Temperaturprobleme bei der Fixierung der Elemente im Behälter zu beachten.

Beim Transport von SBR-Elementen sind zusätzlich zu den Strahlenschutzvorkehrungen noch Sicherungsmaßnahmen zu ergreifen. Diese bestehen entsprechend den behördlichen Auflagen im wesentlichen in der Verwendung eines Spezialfahrzeuges, einer bewaffneten Eskorte sowie einer kontinuierlichen Funkverbindung zwischen Transportfahrzeug und der Beförderungsleitstelle.

## 2. Transport bestrahlter SBR-Elemente

Tab. 1 gibt eine Gegenüberstellung von Daten, die die Auslegung von Behältern zum Transport bestrahlter Elemente aus SBR- bzw. Leichtwasserreaktoren bestimmen. Als Referenzreaktoren wurden Superphénix und Biblis gewählt.

Tab. 1: Vergleich SBR/LWR-Elemente

		SBR 1000 MW	LWR 1300 MW
BE-Länge	(m)	5,5	4,9
Aktive Länge	(m)	1,0	3,9
Zerfallswärme/BE (0,5 a Abklingzeit)	(kW)	5	11
Leistungsdichte	(kW/l)	200	50
zul. Hüllrohrtemperatur	(°C)	650	500
Abklingzeit für Transport unter Gas (a)		2,5	0,5
Be-/Entladung		tr./tr.	naß/naß

Während die Zerfallswärme je BE, bezogen auf eine Abklingzeit von beispielsweise 0,5 Jahren, beim SBR-Element deutlich niedriger liegt als beim LWR-Element, ist dennoch die Leistungsdichte um den Faktor 4 höher. Damit wird die Nachzerfallswärme zu einem entscheidenden Auslegungskriterium. Trotz einer relativ hohen zulässigen Hüllrohrtemperatur muß man bei SBR-Elementen bei kurzen Abklingzeiten mit flüssigem Kühlmittel arbeiten. Es liegt nahe, hierzu Natrium zu verwenden. Die Wärmeübertragungsverhältnisse in natriumgefüllten Büchsen wurden von KFK bereits vor längerer Zeit experimentell untersucht /3/. In verschiedenen Arbeiten /4/ werden Behälterkonzepte unter Verwendung von Natrium als primärem Kühlmittel beschrieben. In allen Fällen wird hierbei von gebüchsten Elementen ausgegangen.

Wenn man auf flüssiges Kühlmittel verzichten will, muß eine Abklingzeit von ca. 2,5 Jahren eingeplant werden.

Die erforderlichen Wandstärken für die Gamma- und Neutronenabschirmung liegen in der gleichen Größenordnung wie für LWR-Elemente. Zwar ist die spezifische Neutronenquellstärke (pro kg SM) bei SBR-Elementen um den Faktor 3 höher, dies wird aber durch den geringeren Schwermetallgehalt wieder annähernd ausgeglichen.

Schließlich muß noch die unterschiedliche Be- und Entladetechnik beachtet werden. Während bekanntlich Behälter für LWR-Elemente in der Regel unter Wasser be- und entladen werden, ist für SBR-Elemente trockene Be- und Entladung vorgesehen. Diese Technik verlangt eine enge Anpassung des Behälters an die Installationen beim Kraftwerk und der Aufarbeitungsanlage. Damit sind der Standardisierung deutliche Grenzen gesetzt.

### 3. Transportkonzepte für bestrahlten KNK II-Brennstoff

Die Auslegung von Behältern für bestrahlten KNK II-Brennstoff unterscheidet sich deutlich von den unter Punkt 2 genannten Konzepten. Die Elemente enthalten weniger Brennstoff und weisen deshalb eine geringere Zerfallswärmeleistung auf. Bei der geplanten Kühlzeit von einem Jahr beträgt der Maximalwert nur ca. 0,8 kW. Durch "Mischen" von Elementen bzw. Stäben aus Test- und Treiberzone lassen sich Wärmeabfuhr- und Abschirmprobleme soweit reduzieren, daß

- Luft als primäres Kühlmittel ausreichend ist
- für die äußere Wärmeabfuhr eine glatte Behälteroberfläche genügt
- auf eine spezielle Neutronenabschirmung verzichtet werden kann.

Dagegen treten Fragen der Anpassung des Behälters an existierende Anlagen in den Vordergrund.

Tab. 2: Transportkonzepte für bestrahlten KNK II-Brennstoff

		komplette BE	Stäbe
Typ der Büchse		154 Ø	103 Ø
Transportziel		Cadarache	Marcoule
Entladung		naß	trocken
Maßgebliche Limitierung		Gewicht	Anpassung an "TOR"
<b>Behälterkonzept</b>			
Basiswerkstoff		Pb	GGG
Gewicht	(t)	20	20
Nutzlänge	(mm)	2600	1640
Kapazität (Anzahl Büchsen)		4	8

In Tab. 2 sind die von Transnuklear erarbeiteten Konzepte /5/ stichwortartig dargestellt. Für den Abtransport vereinzelter Stäbe direkt zur Aufarbeitungsanlage "TOR" ist ein Behälter mit einer Kapazität von 8 Büchsen vorgesehen, der entsprechend den Anforderungen des Aufarbeiters voll auf die bereits im Bau befindliche trockene Entladestation abgestimmt ist.

Sollte von der Möglichkeit der BE-Zerlegung in Cadarache Gebrauch gemacht werden, ist auf das Gewichtslimit von 20 t bei der BE-Annahme im Wasserbecken Rücksicht zu nehmen. Um eine möglichst hohe Behälterkapazität zu erreichen, wurde für das Konzept Bleiabschirmung vorgesehen.

#### 4. Literaturverzeichnis

- /1/ Regulations for the Safe Transport of  
Radioactive Materials  
1973 Revised Edition  
IAEA, Wien
- /2/ Mitteilung INB
- /3/ R. M. Prüßmann, B. Räßle, E. Weinert  
"Versuche zur Wärmeabfuhr von einem  
SNR-Element in einer mit Natrium ge-  
füllten Transportbüchse"  
KFK-2174 (1975)
- /4/ Proceedings 6th International Symposium  
Packaging and Transportation of Radioactive  
Materials, Session II  
"LMFBR Systems Concepts"  
Berlin, 1980
- /5/ Transnuklear  
unveröffentlichter Bericht, März 1982

## Konzeptstudie zur Zwischenlagerung von KNK II-Brennelementen unter Wasser

K. Wasinger

Kraftwerk Union AG  
Berliner Strasse 295-299  
6050 Offenbach (Main)

### Zusammenfassung

Zur Zwischenlagerung von KNK II-Brennelementen unter Wasser erstellte die Kraftwerk Union AG die Konzeptstudie "Naßlager für KNK II-Brennelemente" im Auftrag des Kernforschungszentrums Karlsruhe.

Dieses Naßlager wurde an die KNK II angebunden konzipiert, wodurch die bestehende Infrastruktur der KNK II und des KfK genutzt werden kann. Die Lagerung erfolgt in einem mit Kompaktlagergestellen ausgerüsteten Lagerbecken mit einer Lagerkapazität von 10 KNK II-Kernladungen. Die Kühlung des Beckenwassers erfolgt über ein im Naturumlauf arbeitendes Kühlsystem, welches die Nachzerfallswärme an die Außenluft abgibt.

### Abstract

For the intermediate Storage of KNK II-Fuel in water, Kraftwerk Union AG designed a "Wet Storage Facility for KNK II-Fuel" by order of Kernforschungszentrum Karlsruhe.

This Wet Storage Facility is designed as At Reaktor (AR) Storage by what the existing infrastructure of KNK II and KfK can be used. The storage of the fuel elements takes place in one storage pool equipped with compact storage racks. The maximum storage capacity is 10 cores of the KNK II. Cooling of the pool water is performed by a cooling system with natural recirculation which transfers the decay heat to the surrounding air.

## 1 Einleitung

Zur Zwischenlagerung von Brennelementen aus dem KNK II wurde in der Zeit von Oktober 1980 bis März 1981 im Auftrag des Kernforschungszentrums Karlsruhe - Projekt Schneller Brüter - die Konzeptstudie "Naßlager für KNK II-Brennelemente" von der KWU erstellt.

Die "Naßlagerung" von Brennelementen wird weltweit betrieben und gilt als technisch ausgereift und zuverlässig. Obwohl Konzepte zur Trockenlagerung bis zur Baureife entwickelt wurden, ist die Naßlagerung bis heute die überwiegend genutzte Art der langfristigen Lagerung von abgebrannten Brennelementen.

Um die Investitions- und Betriebskostensituation der an sich aufwendigen Naßlagerung zu verbessern, empfiehlt es sich, diese Anlagen an bestehende Kernkraftwerke oder auch andere kerntechnische Anlagen anzubinden und deren vorhandene Einrichtungen zur Medienver- und -entsorgung, Infrastruktur, Energieversorgung, Objektschutz und vielfach auch den Kontrollbereichseingang zu nutzen. Diese Einrichtungen sind bei einem autarken Brennelementlager zu berücksichtigen; gleichgültig, ob es sich dabei um Naß- oder Trockenlager handelt.

Bestimmt wird die Art der einzusetzenden Brennelementzwischenlager durch eine Reihe von Parametern wie beabsichtigte Lagerzeit, Vorlagerzeit im Kernkraftwerk, Lagermenge, Standort usw.

Für die Gestaltung großer Einheiten empfiehlt sich ein modularer Aufbau der gesamten Lagereinrichtung, wobei die Einrichtungen des Brennelementempfangs und die Betriebssysteme der einzelnen Lagermodule in einem Zentralmodul zusammengefaßt sind, die Lagermodule selbst je nach Bedarf nacheinander angebaut werden.

Bei der Konzeption des Naßlagers für KNK II-Brennelemente wurden neben den genannten Aspekten vor allem die speziellen schnellbrüter- und anlagen-spezifischen Randbedingungen der KNK II berücksichtigt. Hierdurch wurden die Anordnung des Gebäudes, der An- und Abtransport der Brennelemente und die Auslegung der Betriebssysteme maßgeblich bestimmt.

## 2 Konzeptauswahl

Zur Auswahl der in Frage kommenden Konzepte der einzelnen für ein NaBlager notwendigen Systeme zum An- und Abtransport von Brennelementen, Kühlung und Reinigung des Beckenwassers, Lüftung, Energieversorgung, Medienver- und -entsorgung wurde die Wirtschaftlichkeit unter Wahrung der größtmöglichen Betriebs- und Störfallsicherheit zugrunde gelegt.

Hierbei war die Auswahl des Standortes von größter Bedeutung. Unter den zur Diskussion stehenden Standorten auf dem Gelände des KfK wurde nach einer vergleichenden Bewertung das Nordareal des KNK II-Geländes gewählt.

Damit war die Möglichkeit geschaffen, das NaBlager mit einer Verbindungsbrücke mit der KNK II zu verbinden (siehe Bild 1).

Über die Verbindungsbrücke ist das NaBlager an dem Kontrollbereich der KNK II angeschlossen. Der Personenzugang zum NaBlager erfolgt durch den Kontrollbereichseingang der KNK II.

Ebenso erfolgt der An- und Abtransport der Brennelemente sowie der Anschluß an bestehende Systeme der KNK II, soweit diese nutzbar sind, über die Verbindungsbrücke.

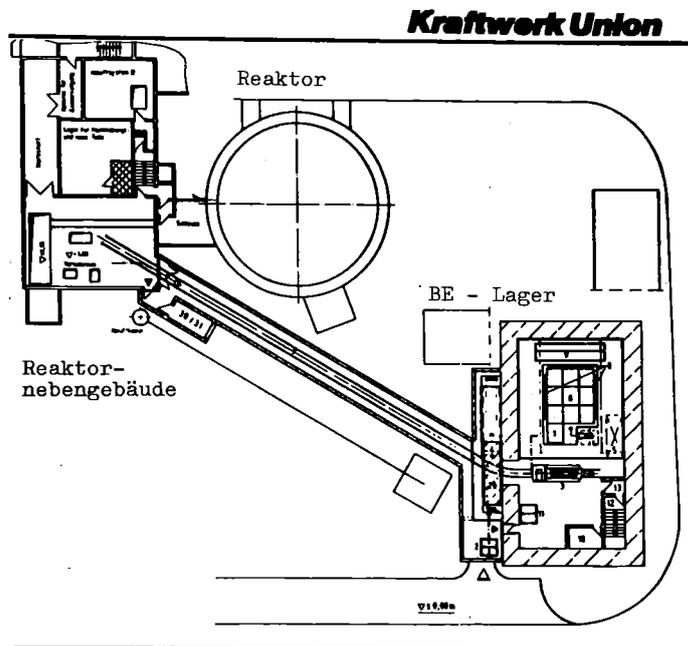


Bild 1: Lageplan

## 3 Beschreibung der Anlage und der Systeme

### 3.1 Lagergebäude

Das gegen Einwirkungen von Außen (EVA) geschützte Gebäude (siehe Bild 2), hat ein Volumen von ca. 11.000 m umbauten Raum; die bebaute Fläche beträgt ca. 460 m.

Für die Bemessung der Gebäude-  
außenstrukturen ist der Last-  
fall Flugzeugabsturz maßgebend.  
Um eine direkte Einwirkung aus  
dem Flugzeugaufprall auf das  
Brennelementlagerbecken zu  
vermeiden, wurde das Lager-  
becken durch eine Fuge von  
der Außenstruktur getrennt.

Die Öffnung zur Verbindungs-  
brücke wird durch ein auf  
Flugzeugaufprall ausgelegtes  
seitlich verfahrbares Gebäude  
mit einem Gesamtgewicht von  
250 t verschlossen. Es wird  
nur zum Brennelementtransport  
kurzzeitig geöffnet. Ein ge-  
trennter Personenzugang sowie  
ein Notausgang vom Treppenhaus  
ins Freie wurden vorgesehen.

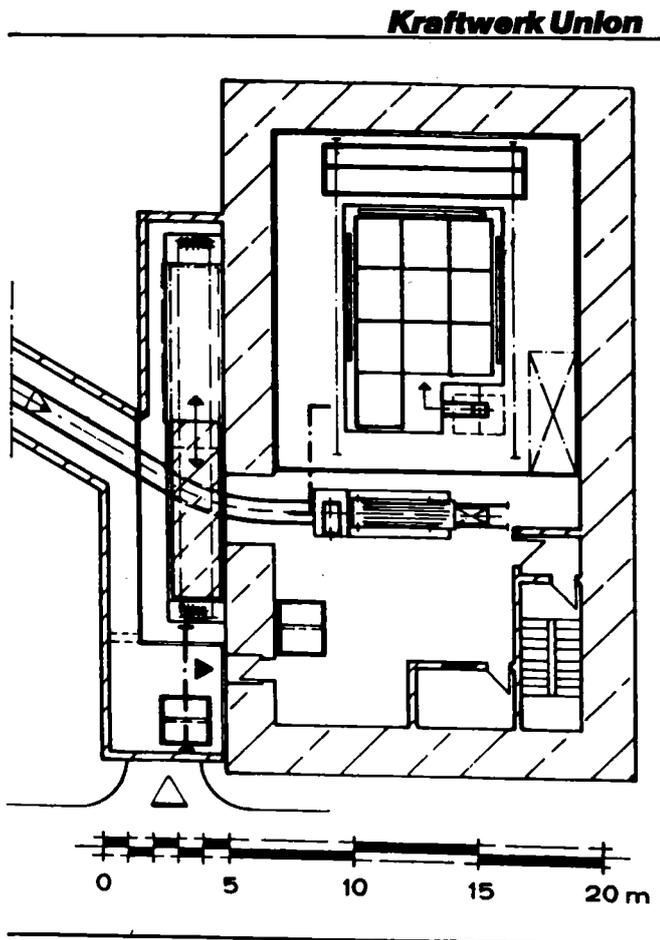


Bild 2: Lagergebäude - Grundriß

### 3.2 Brennelementhandhabung

Bei der Planung der Einrichtung zur Brennelementhandhabung wurde besonderer Wert gelegt auf:

- kurze Transportwege und geringen Personaleinsatz
- größtmögliche Sicherheit gegen Beschädigung der Brennelemente und
- niedrige Strahlenbelastung des Bedienungspersonals.

Die Einlagerung der abgebrannten Brennelemente erfolgt wie in Bild 3 dargestellt.

Die Brennelemente werden, nachdem sie ein Jahr lang nach ihrer Entladung aus dem Reaktor im Natriumlager, das sich im Sicherheitsbehälter befindet, mit der Brennelementtransportflasche (BETF) in das Reaktornebengebäude zur Waschstation gebracht und von Restnatrium gereinigt.

Anschließend werden sie in der Büchsstation in Büchsen verpackt und von einer der BETF ähnlichen Büchsentransportflasche (BÜTF) aufgenommen, über die Verbindungsbrücke in das Lagergebäude zur Übergabestation gebracht und in das Lagerbecken abgesetzt.

Aus der Übergabestation werden die gebüchsten Brennelemente mit einem am Gebäudekran hängenden, von der Hilfsbühne aus zu bedienenden Stangengreiferwerkzeug entnommen und in die Lagergestelle abgesetzt.

Die Auslagerung erfolgt sinngemäß in umgekehrter Reihenfolge. Einrichtungen Beladung externer Transportbehälter wurden nicht vorgesehen, da die hierzu erforderlichen Einrichtungen des Brennelement-Zwischenlagers im KfK zur Entsorgung der KNK II zur Verfügung stehen müssen.

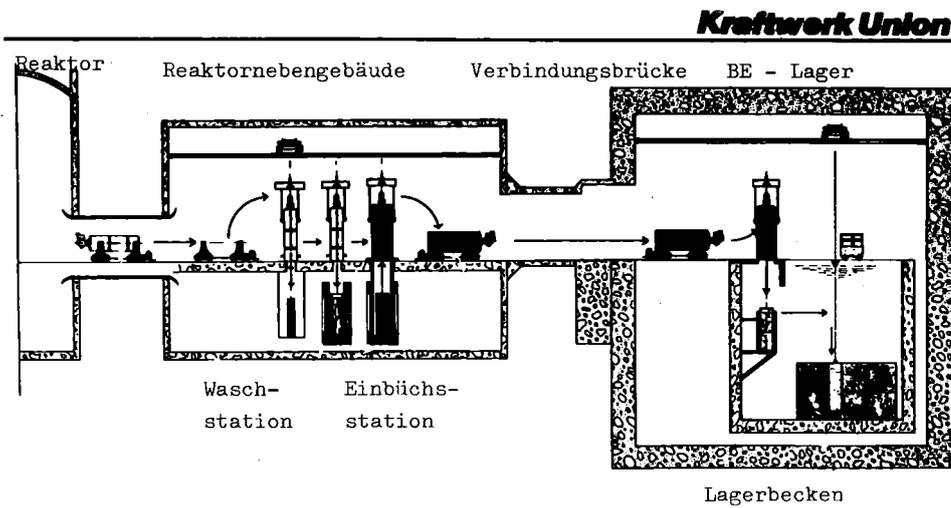


Bild 3: Transportweg:

### 3.3 Brennelementlagerung

Um die Abmessungen des Lagerbeckens so gering wie möglich zu halten, wurden Kompaktlagergestelle (Bild 4) vorgesehen. Der Zentralabstand der Brennelemente im Lagergestell wurde nach einer physikalischen Abschätzung mit 35 cm festgelegt. Die in den Lagergestellen vorgesehenen Absorberschächte aus Borstahl gewährleisten die sichere Unterkritikalität der Brennelementanordnung im Lagerbecken.

Zur Aufnahme der 10 Kernladungen der KNK II wurden 9 Lagergestelle mit je 36 Brennelementpositionen vorgesehen. Ein zehntes Lagergestell dient zum Umsetzen von Brennelementen im Fall einer notwendigen Inspektion des Beckenbodens. Die Lagergestelle sind zu diesem Zweck im Becken umsetzbar.

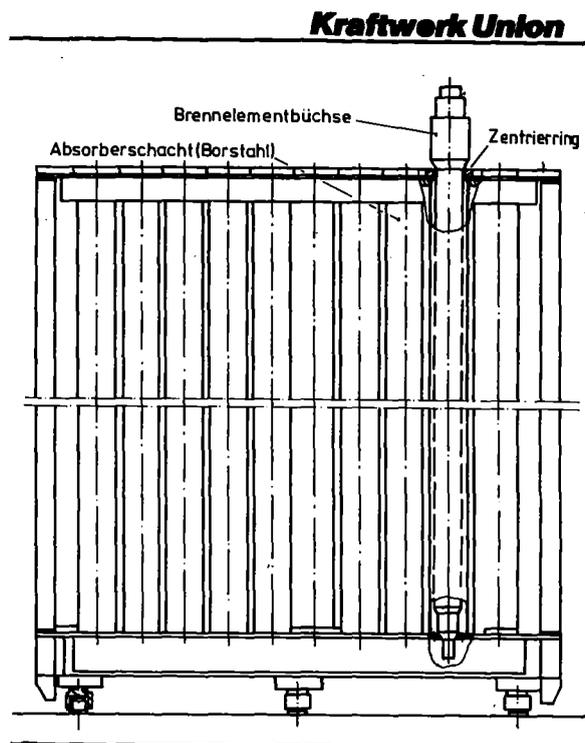


Bild 4: Kompaktlagergestell

### 3.4 Beckenkühlung und -reinigung

Die aus dem Becken abzuführende Nachzerfallswärme wird über ein dreisträngig ausgeführtes Zwischenkühlsystem an die Außenluft abgegeben. Ein einzelner Strang (Bild 5) besteht im wesentlichen aus einem im Lagerbecken angeordneten Beckenkühler (Bild 6), dem Trockenkühler (Bild 7) und den verbindenden Rohrleitungen. Die Anordnung der Komponenten und der Rohrleitungen ist derart, daß sich im Lagerbecken selbst sowie im Zwischenkühlkreislauf eine Umwälzung durch Naturumlauf einstellt.

**Kraftwerk Union**

Bei vollständiger Belegung des Lagerbeckens mit abgebrannten Brennelementen beträgt die max. abzuführende Wärmemenge 23 kW. Im Normalbetrieb wird die Beckenwassertemperatur 40 °C nicht übersteigen. Im Störfall, z. B. Ausfall eines und gleichzeitig Reparatur des zweiten Kühlstranges oder bei Ausfall aller Ventilatoren, wird die Beckenwassertemperatur 60 °C nicht überschreiten.

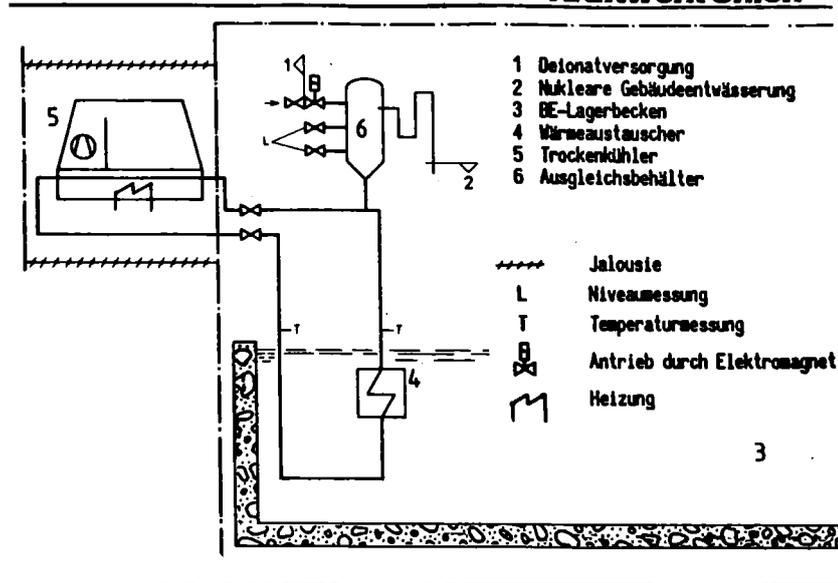


Bild 5: Zwischenkühlkreislauf

**Kraftwerk Union**

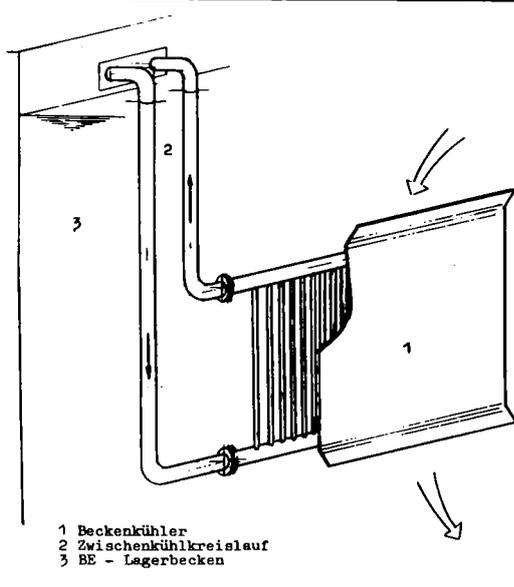


Bild 6: Beckenkühler

**Kraftwerk Union**

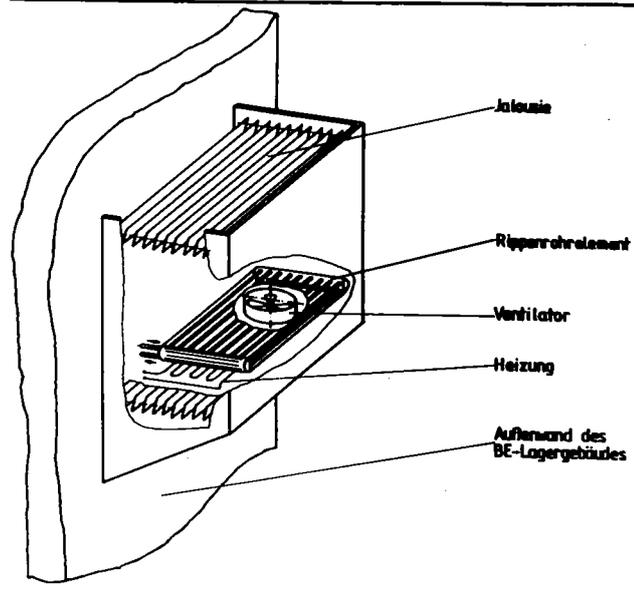


Bild 7: Trockenkühler

Da im Normalfall keine Kontamination des Beckenwassers erfolgen kann - die Brennelemente werden in gasdichten Büchsen gelagert - wurde zur betriebsmäßigen Reinigung des Beckenwassers von mechanischen Verunreinigungen ein Unterwasser-Staubsauger vorgesehen. Dieser kann aber im Bedarfsfall das

Beckenwasser über ein fest installiertes Mischbettfilter zur ionalen Reinigung umwälzen.

### 3.5 Medienver- und -entsorgung

Die Versorgung des NaBlagers mit Deionat, Heizwasser, Gas und Druckluft erfolgt aus den bestehenden Anlagen der KNK II und des KfK. Aktive Abwässer werden ebenfalls in das vorhandene System zur Behandlung radioaktiver Abwässer abgegeben.

## 4 Sicherheitstechnische Beurteilung

Zur Einhaltung der Schutzziele:

- Sicherstellung der Unterkritikalität
- Sicherung der Nachwärmeabfuhr
- Verhinderung einer unzulässigen Aktivitätsfreisetzung

wird das NaBlager gegen Einwirkungen von außen (EVA), wie z. B.:

- Erdbeben
  - Flugzeugabsturz
  - Gaswolkenexplosion
- sowie gegen Einwirkungen von innen, wie u. a.:

- Absturz von Lasten
- Störfälle von Anlagen und Komponenten
- Brand

ausgelegt.

Aufgrund der niedrigen Aufheizgeschwindigkeit des Beckenwassers (von ca. 1 C/h) nach Ausfall der Beckenkühlung ist die sofortige Begehbarkeit des NaBlagers nach Auftreten von EVA nicht erforderlich. Automatisch angesteuerte Einrichtungen zur Beherrschung von Störfällen aus EVA sowie eine ununterbrochene Notstromversorgung sind daher nicht vorgesehen.

Für die Instandsetzung beschädigter Anlagen steht ausreichend Zeit zur Verfügung.

Konzeptstudie zur Zwischenlagerung von  
KNK II-Brennelementen in einem Blocklager

P. Arntzen

A. Gasch

NUKEM GmbH  
Postfach 110080  
D-6450 Hanau 11

Zusammenfassung

Das Lager dient der trockenen Zwischenlagerung von bestrahlten KNK II-Brennelementen aus 10 Core-Ladungen, die in gebüchstem Zustand in das Lager eingebracht werden. Die Nachwärmeabfuhr erfolgt indirekt mittels Luft inhärent sicher und selbstregulierend. Bei der technischen Auslegung wurden alle relevanten Standards, Vorschriften und Regelwerke berücksichtigt.

Der Standort des Lagers befindet sich auf dem KNK-Gelände. Das Lagergebäude besteht aus dem EVA-geschützten Lagerbereich und dem nicht EVA-geschützten Eingangs- bzw. Versorgungsbereich.

Abstract

Conceptual design for interim storage of  
KNK II-fuel elements in a block storage  
facility

The storage facility is used for aircooled interim storage of irradiated KNK II-fuel elements from 10 reactor core-exchanges. The elements are canned before they are introduced into the storage facility. The heat produced by these elements is dissipated to the atmosphere via an indirect aircooling system. This cooling system is inherent safe and selfregulating. All codes, standards and regulations, relevant for design, are taken into consideration.

The storage facility will be constructed on the KNK-site. The storage plant contains an extreme load influence from outside-safe storage part and a non extreme load influence from outside-safe reception and utility-part.

Konzeptstudie zur Zwischenlagerung  
von KNK II-Brennelementen in einem  
Blocklager

P. Arntzen

A. Gasch

1. Aufgabenstellung

Das Lager dient zur zeitlich begrenzten Zwischenlagerung von bestrahlten Brennelementen. Die Brennelemente werden, in Büchsen verpackt, mittels Transportbehälter in das Lager eingebracht und trocken gelagert. Die Abfuhr der Nachwärme erfolgt mit inhärent sicherer selbstregulierender Luftkühlung im Naturzug.

2. Beschreibung des Gebäudes

Das Brennelementzwischenlager ist ein separat stehendes Gebäude, das hinsichtlich der äußeren Infrastruktur und der Medienver- und -entsorgung an die bestehende Infrastruktur des KNK angebunden ist.

Das Lagergebäude besteht im wesentlichen aus zwei Bereichen, dem EVA-geschützten Lagerbereich und dem nicht EVA-geschützten Eingangs- bzw. Versorgungsbereich.

Die Bauausführung erfolgt in Stahlbeton-Bauweise. Im Lagerbereich sind die entsprechenden Hantierungs-, Transport-, Lüftungs- und Lagereinrichtungen sowie die zur Bedienung notwendigen Leitstände untergebracht. Dies gilt ebenso für den Deckenwärmeübertrager und die notwendigen inneren Strahlenschutzinstrumentierungen.

Der Zugang zum Lagergebäude bzw. zur Warte erfolgt über den Eingangsbereich, der als Kontrollbereichseingang ausgebildet ist. In diesem Bereich werden auch die zum Lagerbetrieb notwendigen Hilfsaggregate wie z.B. Trafostation, Elektroverteilung, Lüftungsanlagen etc. für die Bereiche außerhalb des eigentlichen Lagers installiert.

Das hier vorgestellte Lager hat eine Lagerkapazität von 323 Brennelementen bei nur ca. 26 x 16 x 18 m Außenabmessungen. Der umbaute Raum beträgt ca. 5230 m<sup>3</sup>, wovon ca. 4330 m<sup>3</sup> auf den EVA-sicheren Lagerbereich und ca. 900 m<sup>3</sup> auf den Eingangs- bzw. Versorgungsbereich entfallen.

### 3. Auslegung des Lagergebäudes und der Komponenten

Den strahlenschutztechnischen Auslegungen sind sowohl für die Strahlenbelastung des Betriebspersonals als auch für die Umgebungsbelastung die einschlägigen Grenzwerte der Strahlenschutzverordnung zugrunde gelegt, so daß unzulässige Strahlenbelastungen nicht auftreten können.

Sämtliche sicherheitstechnisch relevanten Einrichtungen des Lagers, wie z. B. Krananlagen, Lagergestelle, Unterdruckhaltung und Deckenwärmeübertrager sind entsprechend den sicherheitstechnischen Anforderungen des EVA-Schutzes ausgelegt, wobei als bestimmender Störfall ein Flugzeugabsturz unterstellt ist.

### 4. Konzept der Kühlung

Die Abfuhr der Nachwärme aus den Brennelementen erfolgt mittels Luft als Kühlmedium nach dem Prinzip der freien Konvektion über einen geschlossenen Primärkreislauf und einen offenen Sekundärluftstrom. Dieses Kühlsystem ist inhärent sicher und selbstregulierend.

Der in der Decke des Lagerbereiches installierte Deckenwärmeübertrager überträgt die Wärme aus dem geschlossenen Primärkreislauf an die Umgebungsluft. Gleichzeitig stellt der Deckenwärmeübertrager einen lüftungstechnischen Abschluß des Lagers zur Umgebungsluft dar, so daß die Lagerzelle zusätzlich zur Büchse ein geschlossenes Containment bildet, das im Unterdruck gehalten wird.

Die Funktionsweise des inneren Kühlkreislaufs gestaltet sich wie folgt:

Die gebüchsten Brennelemente stehen senkrecht in hexagonal angeordneten zylindrischen Schächten. Die im Ringspalt zwischen Brennelementbüchse und Schachtwand befindliche Luft wird durch Wärmeabgabe des Brennelementes erwärmt.

Infolge des dabei auftretenden Dichteunterschiedes erfolgt eine Aufwärtsbewegung der Luft. Die erwärmte Luft strömt durch eine Öffnung in der Zwischendecke in den Deckenwärmeübertrager. Hier findet die Wärmeübertragung an die Umgebungsluft statt. Die abgekühlte Luft des inneren Kreislaufs fällt durch senkrecht nach unten führende Kanäle, die gegen die aufsteigende erwärmte Luft isoliert sind, nach unten und wird wieder in die Ringspalte zwischen Brennelement und Lagerschacht geführt, so daß der Kreislauf geschlossen ist.

Der offene Sekundärluftstrom entsteht ebenfalls nach dem Prinzip der Eigenkonvektion. Durch einen Zuluftschacht wird Außenluft in den Deckenwärmeübertrager geführt. Die hier erwärmte Außenluft strömt infolge des entstehenden Auftriebes durch den Abluftschacht nach oben und ins Freie zurück.

In den Abbildungen 1 bis 3 ist das Kühlkonzept und der Deckenwärmeübertrager schematisch dargestellt.

## 5. Beschreibung des Lagerbetriebes

Der Transportbehälter wird, auf dem Transportfahrzeug liegend, in den Übernahmeraum eingefahren. Die im Übernahmeraum installierte Krananlage richtet den Transportbehälter auf und hebt diesen vom Transportfahrzeug.

Nachdem das Transportfahrzeug den Übernahmeraum verlassen hat und das Einfahrtstor geschlossen wurde, wird der Transportbehälter auf den Behältertransportwagen gestellt, verzurrt und in den Entladeraum gefahren. Nach dem Schließen der Drucktür wird der Transportbehälter mit Transportwagen durch die Hubvorrichtung angehoben und an die Entlade-schleuse angekuppelt.

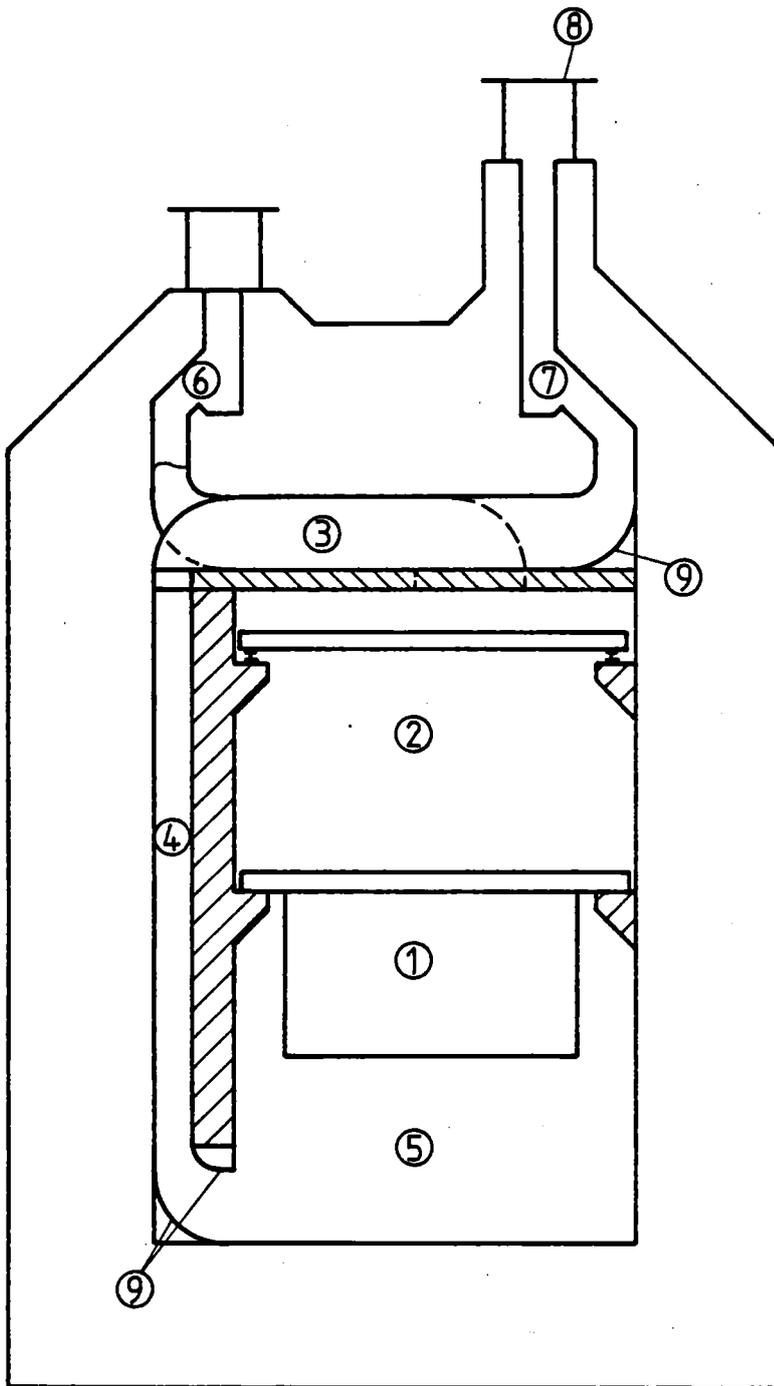
Jetzt ist die Entladung des Transportbehälters mittels des Lagerkranes möglich. Das aus dem Transportbehälter gezogene Brennelement wird über eine Lagerposition gefahren und in den Lagerschacht abgesenkt.

Im Ruhezustand befindet sich der Lagerzellenkran abgeschirmt in der Kranintervention, so daß bei Bedarf Wartungsarbeiten durchgeführt werden können und die integrale Dosis auf strahlungsempfindliche Teile niedrig gehalten wird.

#### 6. Einsatzgebiete und Vorzüge des Lagers

Das Lager gestattet eine Lagerung von bestrahlten Brennelementen in einem geschlossenen Containment bei einer inhärent sicheren, selbstregulierenden Kühlung durch Luft als Wärmeträger.

Dies bedeutet eine Verringerung des Risikos einer Strahlenbelastung der Umgebung durch störfallbedingte Freisetzung von Radioaktivität in die Lagerzellenatmosphäre. Die Wartungs-, Reparatur- und Bedienungsarbeiten können in optimal abgeschirmten Interventionsräumen durchgeführt werden, so daß die Strahlenbelastung des Bedienungspersonals ohne zusätzliche Vorrichtungen so gering wie möglich gehalten werden kann.

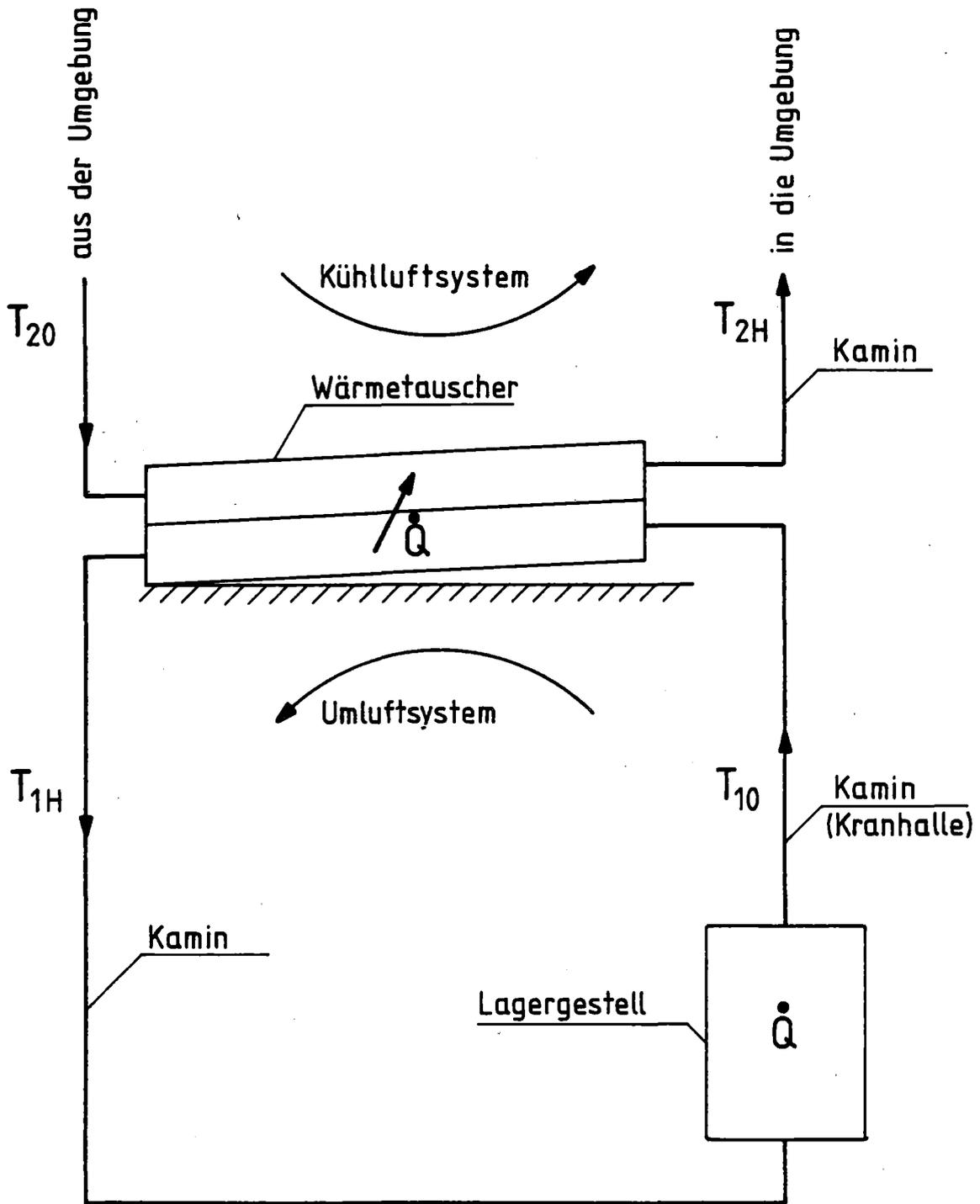


- ① Lagergestell
- ② Kranhalle
- ③ Wärmeübertrager
- ④ Abtriebskamin
- ⑤ Luftkessel
- ⑥ Zuluftkanal
- ⑦ Abluftkanal
- ⑧ Meidinger - Scheibe
- ⑨ Leitbleche



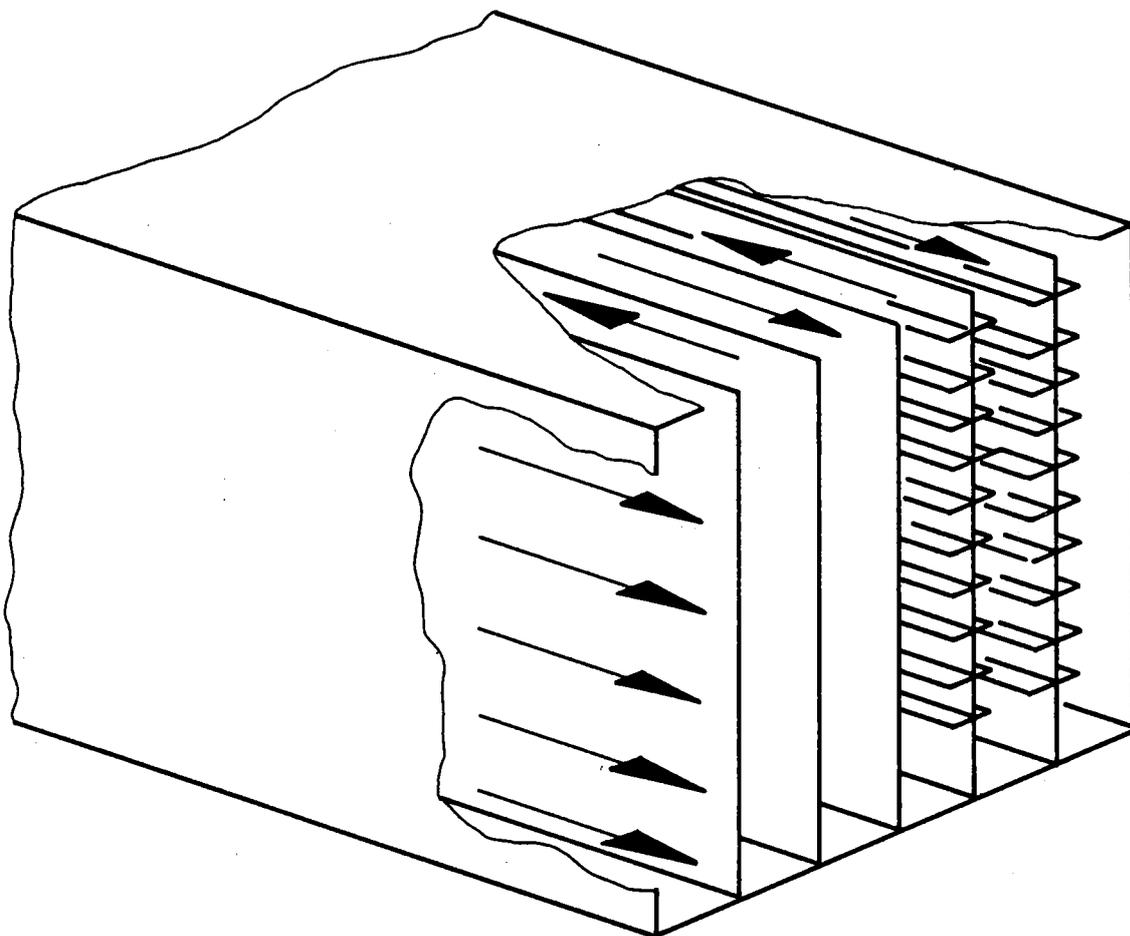
Schematische Darstellung des Kühlsystems

Abb. 1



Prinzipielle Darstellung des Kühlsystems

Abb. 2



Prinzipskizze des Plattenwärmeübertragers

Abb. 3.

Konzept zur Zwischenlagerung  
bestrahlter KNK-II-Brennelemente  
in Transport-/Lagerbehältern

W. Bergmann

G. Dries

R. Laug

Transnuklear GmbH, Rodenbacher Chaussee 6, 6450 Hanau 11

Zusammenfassung

Das Ziel der Studie ist die Konzepterarbeitung zur trockenen Zwischenlagerung bestrahlter KNK-II-Brennelemente in Transport-/Lagerbehältern. In diesen Verpackungen mit Typ-B-Zulassung und Lagerqualifikation werden bestrahlte KNK-II-Brennelemente in einer ausschließlich als Witterungsschutz und Strahlungsabschirmung dienenden Lagerhalle untergestellt.

Als Standort für ein Behälterlager ist ein Areal auf dem KfK-Gelände vorgegeben. Um die Infrastruktur, den Objektschutz und die nukleare Überwachung der KNK-II nutzen zu können, wurde die unmittelbare Nähe dieses Reaktors ausgewählt.

Die Anlieferung der insgesamt 315 einzulagernden Brennelemente (= 10 Coreladungen) erfolgt in 2jährigem Zyklus über einen Zeitraum von 20 Jahren. Die Beladung des Transport-/Lagerbehälters ist als Mischbeladung mit 7 gebüchsten Brennelementen, davon maximal 2 Testelemente vorgesehen. Der Behälter ist so ausgelegt, daß ein Freisetzen von radioaktiven Stoffen verhindert wird, daß die Unterkritikalität und die Abfuhr der Nachzerfallswärme bei allen zu unterstellenden Störfällen gewährleistet ist.

Die Dosisleistung an der Transport-/Lagerbehälter-Oberfläche liegt unter 20 mrem/h. Die Abfuhr der Nachzerfallswärme wird durch Naturkonvektion sichergestellt. Die Behälter werden einzeln auf Dichtheit überwacht. Eine Sammelleitung informiert die KNK-Warte über die Lagersituation.

Die Lagerhalle ist in zwei Hauptbereiche unterteilt. Den Lagerbereich, in dem 45 Transport-/Lagerbehälter mit dem 400 kN-Brückenkran vertikal aufgestellt werden, und die Behälterannahme, die die LKW-Einfahrt, den Wartungsraum, den Meßraum und einen Installationsraum umfaßt. Der Lagerbereich ist Kontrollbereich, die Behälterannahme Überwachungsbereich.

### Abstract

The aim of this study is to conceptualize the intermediate dry storage of irradiated KNK-II fuel elements in transport/storage containers. The fuel elements will be placed in these type B authorized packagings with storage qualifications in a storage building, which serves solely as weather protection and radiation shielding.

The intended site for a container store is an area on the KfK premises. The immediate vicinity of the KNK II reactor was chosen in order to use the infrastructure, the physical protection and nuclear surveillance of that reactor.

Delivery of the total of 315 fuel elements (= 10 core loads) for storage will occur biannually over a period of 20 years. It is proposed to load the containers with a mixture of 7 encapsulated fuel elements, of which a maximum of 2 will be test elements. The container is designed to prevent the release of radioactive materials and to guarantee sub-criticality and the removal of decay heat in all possible incidents.

The dose rate at the surface of the container is less than 20 mrem/h. Removal of the decay heat is assured by natural convection. The containers will be checked individually for leaktightness. A collective conduit keeps the KNK control room informed about the storage conditions.

The storage building is divided into two main areas: the storage area, containing the 45 transport and storage containers positioned vertically by means of a 400 kN gantry crane, and the container reception area, containing the lorry entrance, the maintenance room, the measuring laboratory, and an installation room. The storage area is a control area, and the container reception area is a surveillance area.

Das Ziel einer Studie war es, ein Konzept zur trockenen Zwischenlagerung von KNK-II-Brennelementen in für die Lagerung geeigneten Transportbehältern (Typ B(u)) zu erarbeiten.

Bedingt durch den Charakter eines solchen Behälterlagers wurde ein Standort auf dem KNK-II-Gelände gewählt, der eine Nutzung der dort vorhandenen Infrastruktur, Medienversorgung und -entsorgung, des Objektschutzes sowie der nuklearen Überwachung erlaubt.

Bestimmend für die Auslegung der Behälter und des Behälterlagers war:

- Aufnahmekapazität 315 BE
- Anlieferungszustand gebüchste BE
- Einlagerungszyklus für:
  - . Testelemente 7 Stck/2 Jahre
  - . Treiberelemente 22 Stck/2 Jahre
  - . Brutelemente 5 Stck/4 Jahre
- Einlagerungszeitraum 20 Jahre

### Transport- und Lagerbehälter

Die Auslegung der erforderlichen Transport-/Lagerbehälter erfolgte so, daß sowohl im bestimmungsgemäßen Betrieb als auch bei den anzunehmenden Störfällen (EVA, EVI usw.) der sichere Einschluß von Aktivität, die Abfuhr der Nachzerfallswärme und der Schutz des Personals und der Umgebung vor ionisierenden Strahlen gewährleistet ist.

Die Transport-/Lagerbehälter (vergl. Abb. 1) bestehen aus einem dickwandigen Grundkörper aus Sphäroguß und sind mit einem Doppel-Deckelsystem (Abschirmstopfen + Dichtdeckel) ausgestattet. Jeder der beiden Deckel besitzt ein Dichtsystem aus zwei konzentrischen metallischen Dichtungen. Der Zwischenraum zwischen den Dichtungspaaren ist auf Leckage überprüfbar. Im Abschirmstopfen sind zwei Spülöffnungen zum Füllen, Entleeren und Trocknen des Behälterinnenraums untergebracht, die jeweils mit einem Deckel und

oben beschriebenen Dichtungssystem verschlossen werden (vergl. Abb. 2). Zum Schutz vor Korrosion ist der Behälterinnenraum mit einer Edelstahlauskleidung ausgestattet. Alle anderen medienberührten Flächen werden durch einen geeigneten, gut dekontaminierbaren Farbanstrich geschützt.

Auf zwei um 180° versetzten Mantellinien sind jeweils 2 Tragzapfen zur Handhabung des Behälters ausgestattet. Während des Transportes werden ein Boden- sowie ein Deckelstoßdämpfer am Behälter angebracht.

Die Behälter haben eine Ladekapazität von maximal 7 Brennelementen, wobei sich die Beladung bedingt durch Abschirmung und Wärmeabfuhr aus maximal 2 Test- und 5 Treiber- bzw. Brutelementen zusammensetzt. Geometrisch fixiert werden die BE durch einen Einsatzkorb, der aus einer Edelstahl-Aluminium-Konstruktion besteht (vergl. Abb. 3). In den Einsatzkorb ist ein Edelstahlrohr integriert, das vom Behälterboden bis zu einer der beiden Spülöffnungen reicht.

Ein so vollständig ausgerüsteter und beladener Transport-/Lagerbehälter wiegt ca. 360 kN.

Bei einer, bedingt durch die Transportvorschriften, anzunehmenden Umgebungstemperatur von 38 °C und einer Beladung mit 2 Test- und 5 Treiberelementen, dies entspricht einer Wärmelast von ca. 2,01 kW, ergibt sich für das zentrale Hüllrohr eine Temperatur von 460 °C.

Im Lagerzustand des Behälter sind die beiden oben erwähnten Stoßdämpfer abgenommen und der Deckelbereich des senkrecht stehenden Behälters durch eine Schutzhaube gegen Einwirkungen von Außen (Flugzeugabsturz) geschützt.

Weiterhin ist der Behälter mit einem Überwachungssystem ausgerüstet, das die Dichtheit kontinuierlich überwacht. Das Überwachungssignal wird zu einem Meßraum übertragen und dort angezeigt.

Zur Überwachung der Behälter besteht die Möglichkeit über eine Änderung des Druckdifferenzen zwischen verschiedenen Barrieren festzustellen, ob eine der beiden Deckeldichtungen leckt. Eine andere Möglichkeit ist eine direkte Aktivitätsüberwachung der in den Spalten zwischen den Dichtungen stehenden Atmosphäre.

## Lagerhalle

Zum Schutz vor der Witterung und zur zusätzlichen Abschirmung werden die Transport-/Lagerbehälter in einer Lagerhalle aus Beton untergebracht (vergl. Abb. 4). Diese Lagerhalle gliedert sich in zwei Bereiche

- Lagerbereich und
- Übernahmebereich.

Im Lagerbereich, der durch ein Strahlenschutztor gegen den Übernahmebereich abgeschlossen ist, sind die Behälter sechsreihig so aufgestellt, daß jeder Behälter ein- bzw. ausgelagert werden kann ohne andere handhaben zu müssen.

Im Übernahmebereich werden die im MZFR-Becken beladenen Transport-/Lagerbehälter vom Transportfahrzeug mit einem 40 t Kran abgenommen und für die Einlagerung in der Behälterannahme und Wartung vorbereitet. Von dort werden sie ebenfalls mit dem 40 t Kran direkt zu der jeweiligen Lagerposition gebracht, abgesetzt und an das Überwachungssystem angeschlossen. Im Meßraum laufen die Signale eins jeden Behälters zusammen, werden dort einzelnen angezeigt und registriert. Über eine Sammelleitung erhält die KNK-II-Warte die Information über die Intaktheit oder den Defekt im Dichtungssystem der Transport-/Lagerbehälter, z.B. durch Anzeige der Anzahl undichter Behälter.

Die Kühlung der Transport-/Lagerbehälter während der Lagerung erfolgt über die Behälteroberfläche durch Naturkonvektion. Die maximal aus der Halle abzuführende Wärmeleistung nach Einlagerung der 315 Elemente beträgt konservativ gerechnet ca. 21 kW.

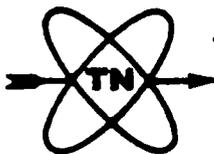
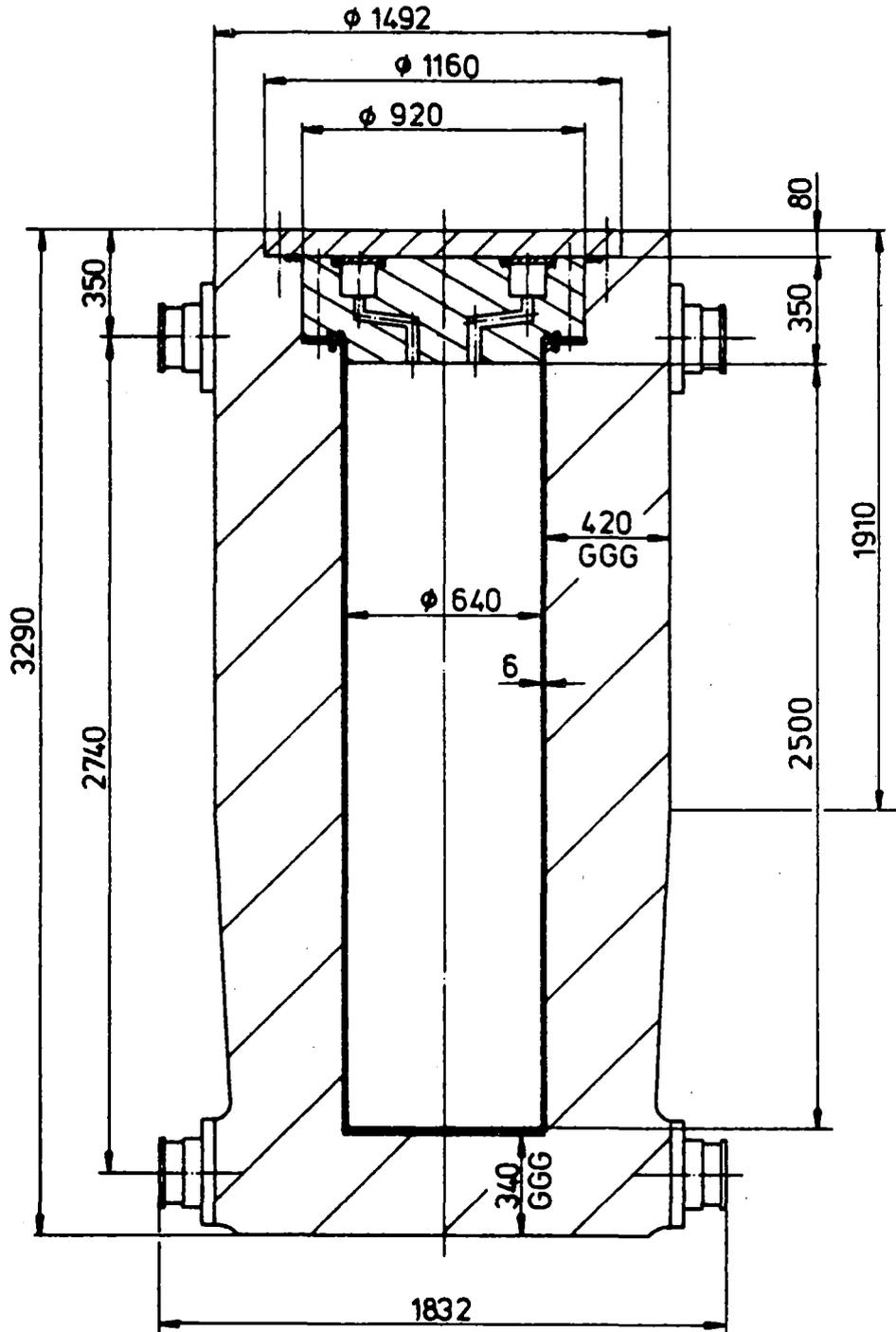
Der zur Wärmeabfuhr benötigte Luftstrom tritt über hochgelegene Lufteinlaßöffnungen an den beiden Hallenseiten ein und wird über Umleitbleche zum Hallenboden geführt (vergl. Abb. 5). Die Strömungsgeschwindigkeit beträgt ca. 0,3 m/s bei einem Massendurchsatz von ca. 1,3 kg/s. Bei einer Luft-eintrittstemperatur von 32 °C folgt hieraus eine Luftaustrittstemperatur von 37 °C.

Die erwärmte Luft verläßt die Lagerhalle durch Austrittsöffnungen im Hallendach, die gegen Witterung und Eindringen von Fremdkörpern geschützt sind.

Der Luftstrom wird in der Halle so geführt, daß bei einer Umgebungstemperatur von 32 °C eine Behälteroberflächentemperatur von 82 °C eingehalten wird.

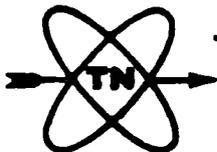
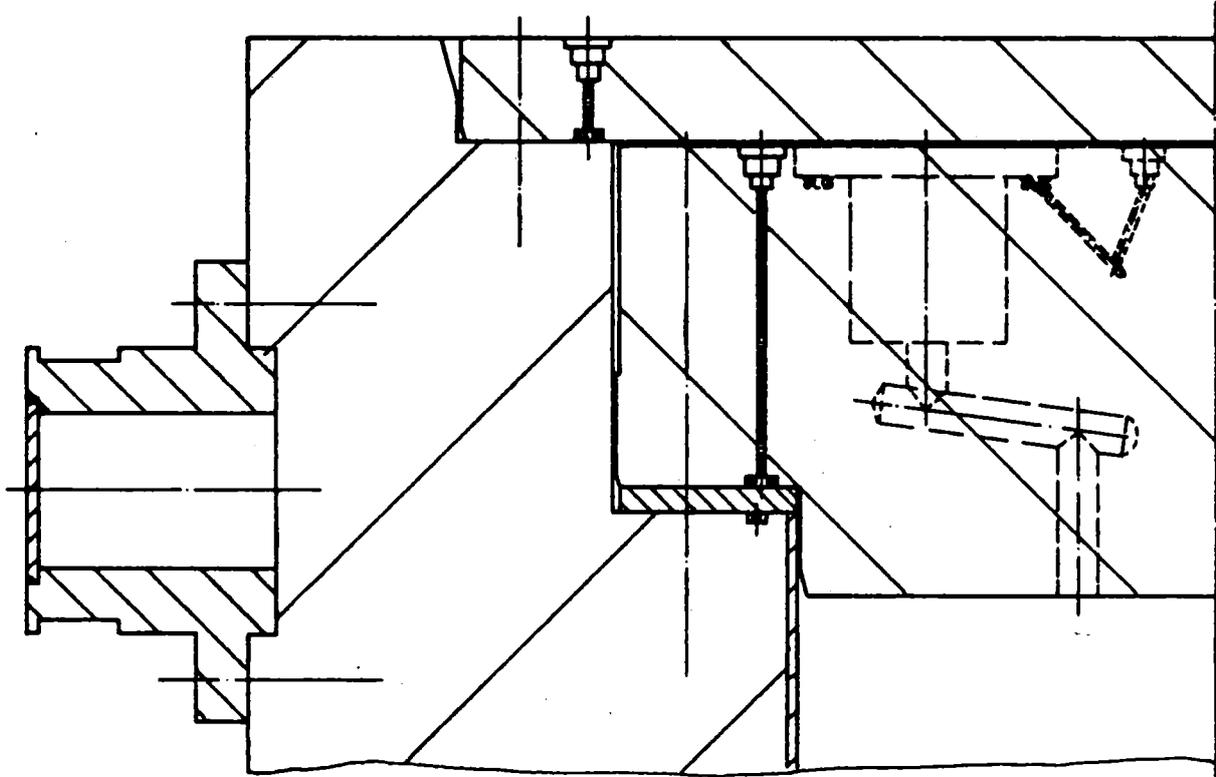
Ein Zwischenlager oben beschriebener Konzeption zeichnet sich durch die Möglichkeit des problemlosen stufenweisen, dem jeweiligen Bedarf angepassten Ausbaus aus. Nach Auflösung des Zwischenlagers kann die Lagerhalle nach entsprechender Kontrolle einem konventionellen Verwendungszweck zugeführt werden.

Abbildung 1



Transportbehälterlager für abgebrannte KNK II-BE  
Transport -/ Lagerbehälter KNK II

Abbildung 2



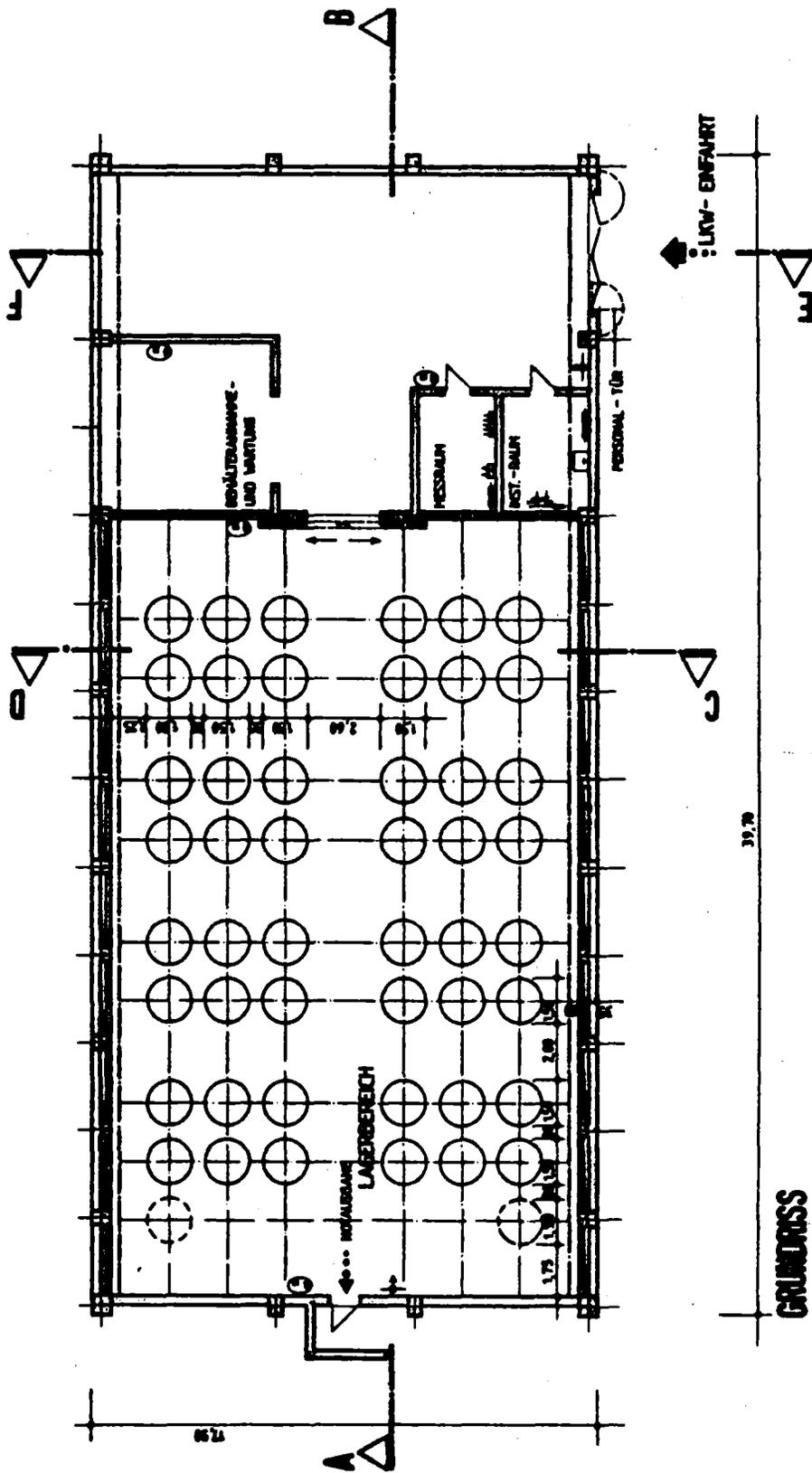
**Transportbehälterlager für abgebrannte KNK II-BE**

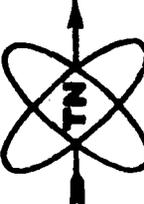
**Transport -/ Lagerbehälter KNK II**

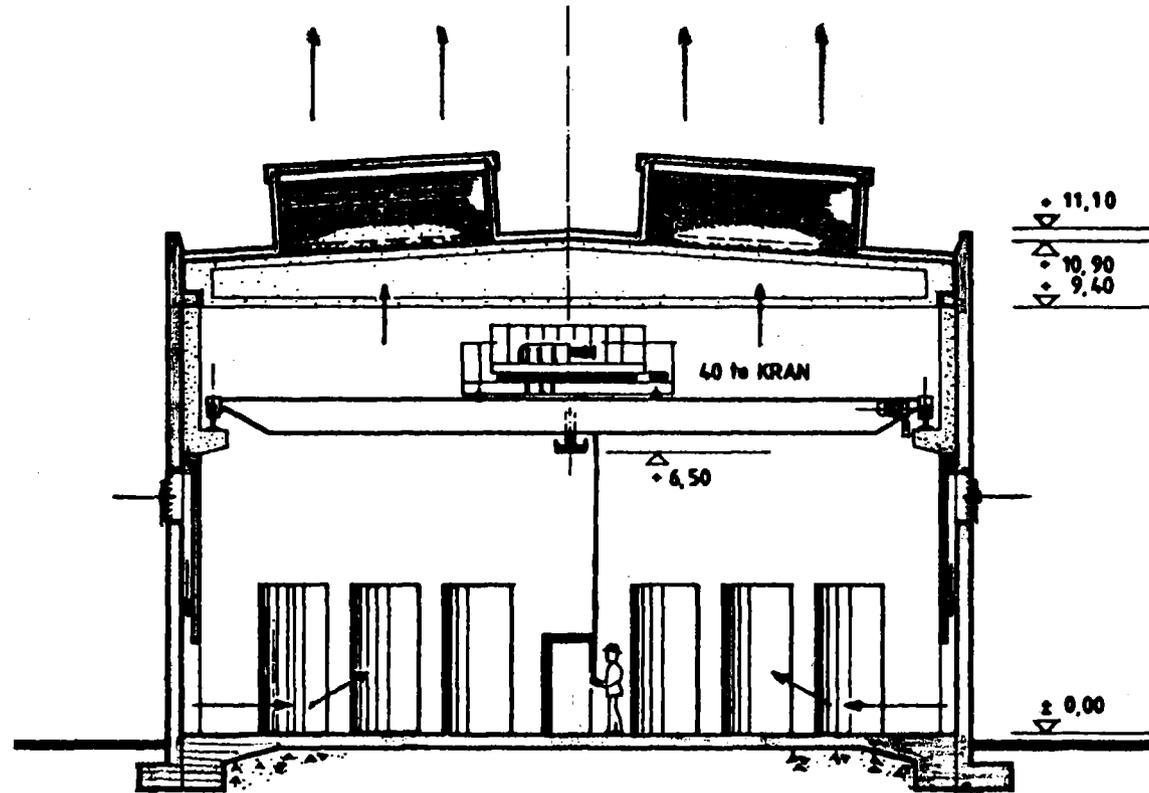
**Deckeldichtungssystem**



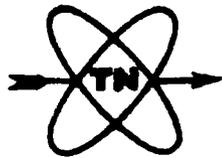
Abbildung 4



 **Transportbehälterlager für abgebrannte KNK II - BE  
Gebäude, Grundriß ± 0,00**



**SCHNITT C-D**



**Transportbehälterlager für abgebrannte KNK II-BE**

**Gebäude, Schnitt C-D**