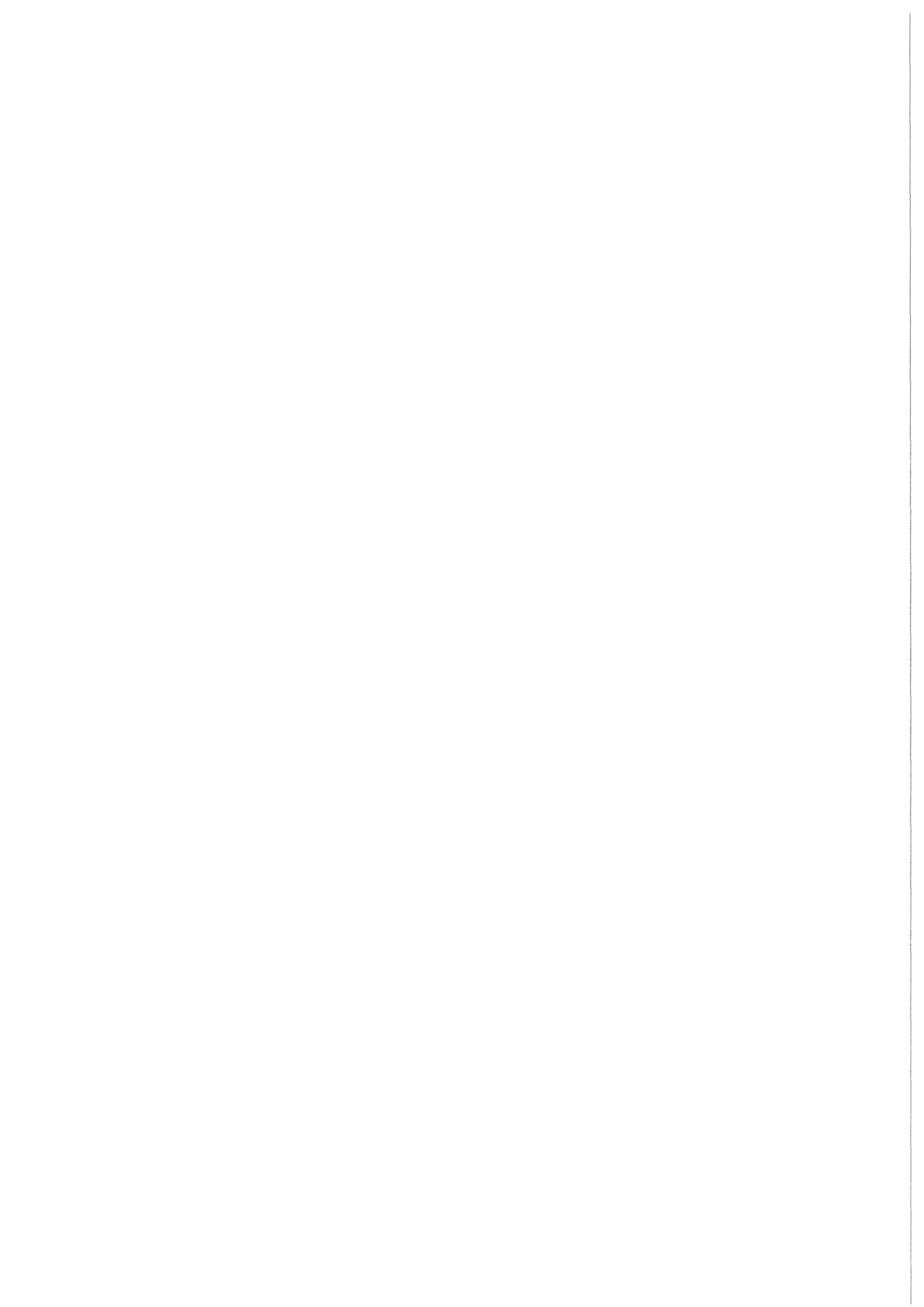


KfK 4589
Mai 1989

**Sammlung der Vorträge
anlässlich der KTG-Tagung
„Fortgeschrittene LWR-
Brennelemente: Technik und
Wiederaufarbeitung“
am 17./18. November 1988 im
Kernforschungszentrum
Karlsruhe**

Zusammengestellt von der Projektleitung PWA
W. Bahm
Projekt Wiederaufarbeitung und Abfallbehandlung

Kernforschungszentrum Karlsruhe



KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE

Projekt Wiederaufarbeitung und Abfallbehandlung

KfK 4589

PWA 25/89

Sammlung der Vorträge anlässlich der KTG-Tagung
"Fortgeschrittene LWR-Brennelemente: Technik und
Wiederaufarbeitung" am 17./18. November 1988 im
Kernforschungszentrum Karlsruhe

Zusammengestellt von der Projektleitung PWA

W. Bahm

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH, Karlsruhe

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

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH
Postfach 3640, 7500 Karlsruhe 1

ISSN 0303-4003

Inhaltsverzeichnis

I.	Einleitung R. Kroebel	I-1
II.	Entsorgung für fortgeschrittene LWR-Brennelemente: Vorstellungen und Zugänge W. Stoll	II-1
III.	Mechanische Auslegung und Betriebsverhalten fortschritt- licher LWR-Brennelemente H. Groß, H.P. Fuchs, F. Wunderlich, M. Gärtner	III-1
IV.	Betriebserfahrungen der WAK bei der Wiederaufarbeitung von hochabge- brannten LWR- und MOX-Brennelementen H.O. Willax, M. Weishaupt, J. Schegk	IV-1
V.	Entwicklungsstand und -ziele bei der Wiederaufarbeitung von Kernbrennstoffen K. Ebert, H. Schmieder	V-1
VI.	Neue Brennelemententwicklung der ABB K. Ehlers, G. Vesterlund	VI-1
VII.	Ein Vergleich der Verteilung von Spaltprodukten im LWR- Brennstoff vor und nach einer Transiente I.L.F. Ray, F. Sontheimer	VII-1
VIII.	Neue Entwicklungen und Betriebs- erfahrungen mit LWR-Brennelementen G.A. Sofer, K.H. Blank	VIII-1

- IX. Zustand von Spaltprodukten im Brennstoff und Verhalten bei der Auflösung von Brennelementen einschließlich MOX-Brennelementen höheren Abbrandes
H. Kleykamp, R. Würtz IX-1
- X. Auswirkungen des höheren Abbrandes von Brennelementen auf das chemische Fließbild des PUREX-Prozesses
L. Finsterwalder, A. Stollenwerk X-1
- XI. Weiterverwendung der bei der Wiederaufarbeitung zurückgewonnenen Spaltstoffe. Erfahrungen und abzusehende Probleme bei der Plutonium-Verarbeitung
J. Krellmann XI-1

I. Einleitung

Die KTG-Fachgruppen "Chemie und Entsorgung" und "Brennelemente" sowie das Kernforschungszentrum Karlsruhe haben gemeinsam zu dieser zweitägigen Fachtagung "Fortgeschrittene LWR-Brennelemente: Technik und Wiederaufarbeitung" eingeladen.

Aus dem Kreise unserer Fachkollegen der Brennelementauslegung, der Brennelementfertigung, der EVU und der Wiederaufarbeitung wurde der Wunsch an beide Fachgruppen herangetragen, in einer gemeinsamen Diskussionsveranstaltung die fachübergreifenden Fragen zur Entwicklung und Wiederaufarbeitung fortgeschrittener Brennelemente zu behandeln. Der Zusammenhang zwischen den Gegebenheiten heutiger Brennelemente und den Möglichkeiten der Wiederaufarbeitung wurde auf kerntechnischen Tagungen bisher wenig behandelt. Um der Interdependenz der Themen beider Fachgruppen Rechnung zu tragen, sind die Vorträge aus beiden Bereichen gemischt worden.

Die Veranstaltung bot durch lebhaftes Diskussions Gelegenheit zu einem Gedankenaustausch zwischen den Fachleuten der verschiedenen Stufen des Brennstoffkreislaufs.

Die Beteiligung von rd. 180 Interessenten, davon 70 aus dem Bereich KfK, das an den meisten Stufen des Brennstoffkreislaufs F+E-mäßig engagiert ist, wurde von den Organisatoren der Tagung dankbar vermerkt.

Daher freut es uns, daß es auch gelungen ist, die Vorträge für diesen KfK-Bericht von den Autoren zur Verfügung gestellt zu bekommen und somit für alle Teilnehmer die Möglichkeit des Nachlesens der Beiträge zu ermöglichen. Den Tagungsteilnehmern werden wir diese Veröffentlichung im Rahmen ihres Teilnahmebeitrags zusenden.

Im Namen des Organisationskomitees

R. Kroebel

K.H. Neeb

B. Wigger

A handwritten signature in cursive script, appearing to read 'R. Kroebel', written in dark ink.

(R. Kroebel)

Vortragsmanuskript zur KTG-Tagung:
Fortgeschrittene LWR-Brennelemente, Technik und Wiederaufarbeitung
am 17. und 18.11.1988

Titel:

Entsorgung für fortgeschrittene LWR-Brennelemente:

Vorstellungen und Zugänge

W.Stoll, Siemens

Kernreaktorbrennelemente sind ihrer Natur nach schon ein sehr gegensätzliches Produkt: Alle in ihnen entstehende Wärme sollen sie möglichst ungehindert an das Kühlmittel abgeben. Spaltstoffe und Spaltprodukte sollen sie so perfekt als irgend möglich zurückhalten.

Was den Brennstoffkreislauf angeht, sollen sie ihre Funktion im Kernkraftwerk bis zum vollen Abbrand, das sind im Mittel 4 Jahre, klaglos erfüllen, dann noch einige Jahre (bei uns sollen es 7 sein) in Abklingbecken unkorrodiert verweilen - dann aber sollen sie sich in schwächstmöglicher Säure rasch und rückstandsfrei auflösen, um ihre Wertstoffe unbehindert freizugeben.

Insgesamt soll die Vielfalt dieser Ziele auch noch kostengünstig, d. h. wirtschaftlich optimiert, erreicht werden.

Welches wirtschaftliche Gewicht dabei die einzelnen Stationen im Brennstoffkreislauf haben, zeigt das erste Bild. Hier sind Trennleistungen mehr chemisch-physikalischer Natur von Veredelungs- und Formgebungsleistungen mehr mechanisch-konstitutiver Natur getrennt aufgeführt.

Noch vor 15 Jahren hätten im Kostenbild die konstitutiven Leistungen das mehrfache an Gewicht gehabt. Es war nicht nur teurer und mehr von Kenntnisvorbehalten umworben, Brennelemente herzustellen. Auch die Aufarbeitung war als willkommene Kapazitätsauslastung bestehender Anlagen zu Preisen zu haben, die mit echten Kosten wenig gemein hatten. Auch war es bis zur Mitte der 70er Jahre nicht verboten, über Flußsäure als lösungsverbessernden Zusatz zur Salpetersäure bei der Wiederaufarbeitung laut nachzudenken. Unter anderem war sie Bedingung für das Lösen Thoriumoxid-haltiger Hochtemperaturbrennstoffe, d. h., das ist sie noch immer, nur der Ehrgeiz zur Aufarbeitung solcher Elemente ist stark abgeflaut.

Die wirtschaftlichen Randbedingungen für verschiedene Stationen des Brennstoffkreislaufs haben sich teilweise dramatisch verändert. Ein Bild der historischen Uranpreisveränderung soll das illustrieren (Bild 2). Vor allem das sogenannte hintere Ende des Brennstoffkreislaufs, eine etwas widersprüchliche Wortschöpfung, wurde sehr viel teurer, was sich auf die Brennstoffkreislauf-Kosten (Bild 3) insgesamt verteuern auswirkte.

Da liegt es nahe, den Divisor der Gleichung, den in einem Zyklus erreichbaren Abbrand zu vergrößern (Bild 4). Da die thermischen Wirkungsgrade der LWR ähnlich liegen, kommt das auf die Frage heraus, wieviel g Spaltstoff in einem Durchgang pro Gewichtseinheit Brennelement gespalten werden können. Die bestimmenden Größen sind aus der Reaktorphysik weithin frei wählbar: Wieviel Anfangsanreicherung kann im Gegenzug zu abbrennbaren Neutronenabsorbieren untergebracht werden und wie weit darf man Void-Koeffizienten der Reaktivität zugunsten höherer Konversionsfaktoren senken? (Letzterer Entwicklungsschritt ist gegenwärtig allerdings nur schwer durchsetzbar.)

In beiden Zielrichtungen führt das zur Vergrößerung der Abbrandziele: Im ersten bis zum 55.000 MWd th/t, im zweiten eher um die 75.000 MWd th/t.

Die Grenzen solcher Entwicklung liegen fast ausschließlich bei den Materialfragen, zunächst des Brennstoffs, dann aber vor allem der Hülle.

Während man sich Zr-loy-Hüllrohre mit einem jodfreundlichen Liner bei 50.000 MWd/t noch vorstellen kann, dürften Hochkonverter auf Stahlhüllrohre angewiesen sein - was ja mit Rücksicht auf die überwiegend im Plutonium stattfindenden Spaltungen und die relative Bedeutung epithermischer Neutronenflüsse auch erträglich wäre.

Sicher spielt der mit zunehmendem Abbrand aus oxidischem Brennstoff freigesetzte Sauerstoff eine wichtige Rolle, da er die treibende Kraft für das Korrosionsgeschehen im Hüllrohr ist. Eine weitere Grenze liegt in der Tatsache, daß Brennstäbe und Brennelemente Massenprodukte mit extrem hohem Qualitätsstandard sein müssen. Die hohen Kosten der Erprobung neuer Varianten und das Beharrungsvermögen sowie der Vereinheitlichungsdruck, die von kostspieligen Massenproduktionen ausgehen, werden eine Aufteilung in viele sehr kleine Entwicklungsschritte erzwingen, solange keine umwälzenden Neuerungen auftauchen.

Man sollte hier vielleicht einschränken, daß jene Gesetzmäßigkeit, wonach die Stückkosten mit dem Durchsatz sinken, das sog. Preis-Mengen-Degrement, nicht für alle Stationen des Brennstoffkreislaufs in gleicher Weise gelten (Bild 5). Uranminen müssen sich an dem bergmännisch optimierten Erzmengenfluß orientieren und sind daher zwangsweise bei entsprechenden Marktpreisen wirtschaftlich oder unwirtschaftlich. Die große Breite des Marktes und der geringe Durchlasswiderstand von Grenzen ergeben trotzdem so etwas wie Preisstabilität oder wenigstens nur langsame Fluktuationen, obwohl es Ausnahmen (wie gezeigt) gegeben hat.

Für die Urananreicherung hängt viel vom Verfahren ab. Diffusionsanlagen müssen sehr groß sein und billigen Strom bekommen, um wirtschaftlich zu sein. Bei Zentrifugenanlagen sind die Energiekosten unbedeutend und die modulare Zubaumöglichkeit soll angeblich das Preis-Mengen-Dekrement flach halten - dies allerdings auf einem hohen Preisniveau. Marktkräfte sorgen auch hier für Quasikonstanz. Schon bei der Uran-Brennelementfabrikation gibt es ein deutliches Preis-Mengen-Dekrement (Bild), das bei der MOX-Fertigung noch deutlicher wird. Allgemein gilt, daß hohe Fixkosten und niedrige variable Kosten steile Dekrements zur Folge haben. Aufarbeitung und Endlagerung sind hierfür sehr brauchbare Beispiele (Bild 6).

Diese Abhängigkeit liefert auch ein tragendes Argument für die Brennelemententsorgung. Danach werden Aufarbeitungsanlagen kleinen Durchsatzes mit säkularen Endlagern nur schwer kostenvergleichbar betrieben werden können, während entsprechend große Wiederaufarbeitungsanlagen den Vergleich nicht scheuen müssen. Unser Blick ist nur durch zwei Fakten getrübt: Mit Ausnahme von La Hague (Bild 7) gibt es noch keine funktionierende Aufarbeitungsanlage, die den Namen Großanlage verdient. Außerdem wird der unter Kerntechnikern verbreitete projektive Kostenoptimismus bei allem, was noch nicht dreidimensional verwirklicht und genehmigt werden mußte, uns wohl auch bei der säkularen Brennelementlagerung noch enttäuschen - wenn schon nicht in Schweden und den USA, so doch spätestens in Gorleben.

Daneben fällt es schwer, die ethisch-moralische Frage, als Ergebnis der Schließung des Brennstoffkreislaufs jetzt gleich eine gewisse Radionuklidfreisetzung zu tolerieren, oder lieber später auf einem Plutoniumbergwerk zu sitzen, allgemeingültig zu entscheiden. So kann es also sein, daß Brenn-

elemente oder mindestens Brennstäbe (bei Kompaktlagerung) auf die maximale Endlagerfähigkeit hin, d. h. auf den optimierten Einschluß genauso zugeschnitten werden müssen wie auf ihre optimale Aufarbeitbarkeit.

Da wäre es einerseits vorstellbar, daß jeder Brennstab ein Filter oder eine Kapillare am Stabende eingebaut erhält, um vor der Endlagerung kontrolliert und aerosolfrei die Spaltgase ablassen zu können. Andererseits könnte man wünschen, daß die Abstandshalter der Brennelemente keine Inconelfedern mehr enthalten, um aktiviertes Kobalt im Abfall zu reduzieren. Für die Anlage in Wackersdorf kann es entscheidend sein, daß die Brennelement-Skelette einfach und fernhantiert von den Brennstäben getrennt werden können und daß MOX-Stäbe von UO_2 -Stäben gut unterschieden werden können; schließlich, daß abbrennbare Gifte nicht unverbraucht in der WA ankommen.

Ein immer wieder diskutiertes Problem ist die Brennstofflöslichkeit in Salpetersäure. Da man zu immer höheren Abbränden fortschreitet, wird die lokale Disproportionierung des Plutoniums dem Sauerstoffgradienten folgen und sein möglicher Einschluß in Fissium-Metall-Inseln wird dann ebenfalls wahrscheinlicher. Mit dem höheren Anteil an MOX-Elementen verstärkt sich nicht nur dieses Problem, sondern auch die Belastung der Pu-Reinigungsstufen, die Radiolyse- und Zerfallswärmelast und die Kritikalitätsgefahr in der Wiederaufarbeitung. Eine Verschärfung tritt noch dadurch ein, daß die Lösezeiten bei Großanlagen mit kontinuierlichen Auflösern von 6 auf 2 Stunden, die Säuremolarität von 5 auf 3,5 zurückgehen und die im HAW-Glas tolerierbaren Pu-Konzentrationen mindestens nicht größer werden dürfen, wenn die Entsorgung als Langzeitlösung ihren Namen verdienen soll; dies insbesondere, wenn die Plutonium-Spätbildner wie ^{243}Am und ^{244}Cm als Folge von Abbrandsteigerung und MOX-Einsatz zunehmen.

Ein besonderes Kapitel liefert die Aufarbeitungsstrategie. Bei ausschließlicher Aufarbeitung stellt sich zunächst nur ganz vordergründig das Problem des ob oder nicht, die Frage, ob man das ^{95}Zr vor der Aufarbeitung ganz zerfallen läßt (daher die 7 Jahre Vorlagerzeit) oder ob man überhaupt mit der Aufarbeitung solange wartet, bis der Uranpreis spürbar steigt und/oder die zur Wiederaufarbeitung anstehende Brennelementmenge eine großtechnische Anlage auch wirklich auf die volle Abschreibungszeit ganz auslasten kann. (Die Option der USA scheint u. a. darauf zu zielen.) Da man die abgetrennten Spaltstoffe aber als mindestens teilweise Kompensation der Aufarbeitungskosten in thermischen

(später vielleicht schnellen) Reaktoren nutzen muß, müssen auch aus aufgearbeitetem Uran wieder angereicherte und MOX-Elemente aufarbeitbar oder - bei teilweisem Bruch mit der Entsorgungsphilosophie - wenigstens endlagerfähig sein.

Ein ganzes Bündel von Fragen schließt sich an: Was ist das vorteilhafte Basismaterial für MOX (Bild 8)? Wie oft soll Uran angereichert werden? Braucht man das Laserverfahren, um die störenden geradzahligen U-Isotope (^{232}U , ^{234}U , ^{236}U) abzureichern? Wie sonst entfernt man sie aus dem Kreislauf? Welchen Weg gehen sie, wenn man sie im Brüter einsetzt? Soll man thermisches und schnelles Plutonium gegeneinander austauschen, wenn man die Möglichkeit dazu hat? Soll man thermisches Plutonium in den Brüter einsetzen und dann abgebrannte Brüterelemente als eine ums mehrfache konzentrierte Lagerform des Plutoniums lagern, bzw. erst dann aufarbeiten, wenn man das Plutonium mangels Nachschub aus den thermischen Reaktoren wirklich braucht?

Sollte man ernstlich ^{237}Np und/oder Aktiniden rückführen? Macht man das besser im Gemisch mit UO_2 -oder MOX-Brennstoff oder isoliert als "graue" Regelstäbe? Eignen sich thermische oder schnelle Flüsse besser und für welche Nuklide? Sind Zusätze im Brennstoff (z. B. Al_2O_3) in der Aufarbeitung störend (Salzfracht, Oxalato-Komplexe)?

Es fällt nicht schwer, sich vorzustellen, daß fast jede dieser Fragen Einfluß auf Errichtungszeitpunkt, Größe, Abschreibungsdauer und Auslastung einer Wiederaufarbeitung haben und damit wirtschaftlich relevant sein kann.

Entsprechende Vorlagerzeiten der Brennelemente beeinflussen auch entscheidend den Wärmeeintrag und damit die Nutzbarkeit eines Endlagers.

Man darf vielleicht sogar noch ein paar provozierende Fragen stellen:

Warum sollte man nicht z. B. das Pu - höchst kontrolliert natürlich - durch Verschieben des Isotopenvektors verbessern dürfen? Oder: Wenn die Brennelemente schon so lange Vorlagerzeit haben sollen, warum dann keine mehrjährigen Pausen zwischen den Abbrandzyklen, um den Zielabbrand zu steigern? Warum kann man nicht wenigstens z. T. aufhören, mutwillig ^{60}Co zu erzeugen und das ^{137}Cs aus den Spaltprodukten an seine Stelle setzen, wo die niedrigen Gammaenergie das zuläßt?

In dem Bemühen, elementare Existenzansprüche des Brennstoffkreislaufs gegen den lautstark opponierenden Teil der Öffentlichkeit durchzusetzen, sind viele dieser technisch und ökonomisch interessanten Fragen bei uns vorerst in den Hintergrund getreten, werden andernorts aber heftig diskutiert und auch schon teilweise umgesetzt.

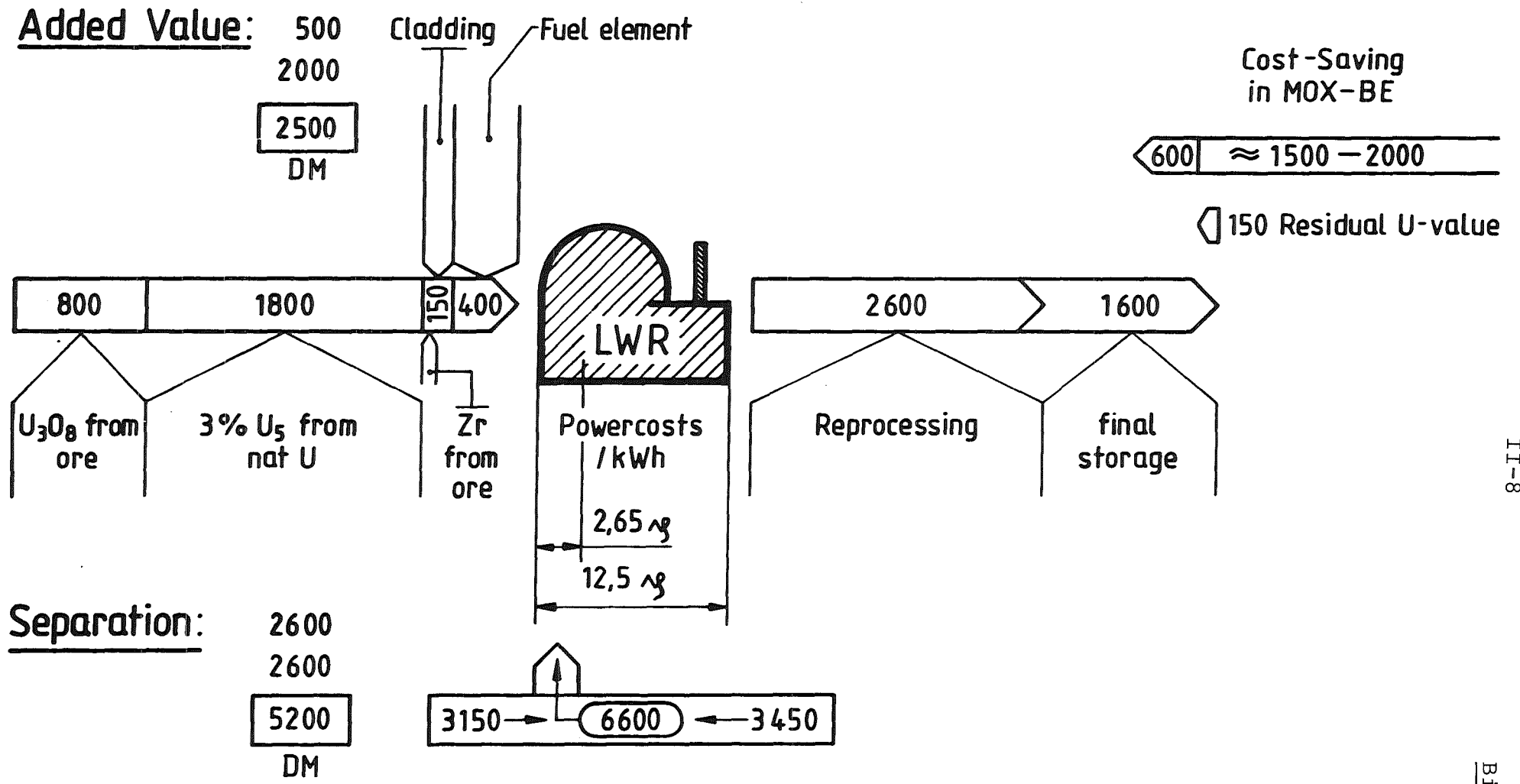
Im Titel kommt neben dem Wort "Vorstellungen" auch das Wort "Zugänge" vor.

Es sollen daher einige Zugänge mehr historischer Art zum Brennelement und Brennstoffkreislauf aufgezeigt werden, deren letzte Gültigkeit man hinterfragen darf. Im Manhattan-Projekt war Zeit alles. Was immer die Anlagen und Prozesse kosteten, war sekundär neben der Frage, ob sie denn ihr Ziel schnellstens und vorherberechenbar erreichen würden. Also wurden Prozesse gewählt, deren Übertragung in die Großtechnik kein Risiko erwarten ließ (man denke an die Schwerwasserproduktion durch Wasserdestillation in Morgantown und die Uranisotopentrennung im Calutron). Der Purexprozess gehört hier dazu. Er läuft bei Normaldruck und braucht außer Töpfen und einfachsten Fördermitteln aus rostfreiem Stahl eigentlich kaum etwas. Statt diversitär in mehreren verschiedenen Verfahren, deren Stärken und Schwächen gegeneinander nutzend, die Trennung zu verfeinern, wird er, seine eigenen Schwächen verstärkend, dreimal hintereinander angewandt. Die Volumsleistung der Apparate ist entsprechend niedrig.

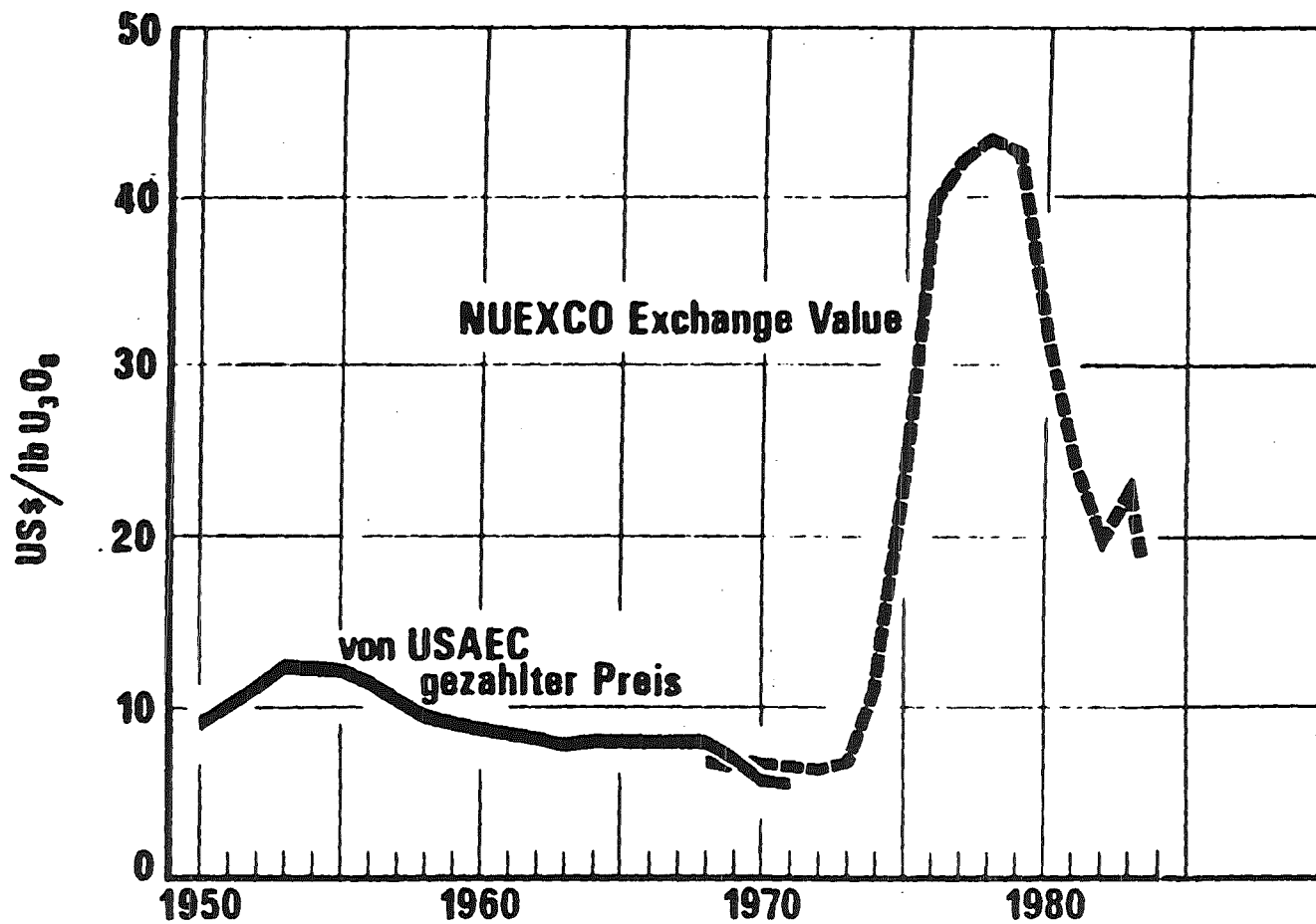
Das davorliegende Zerhacken der Brennstäbe oder Brennelemente - wenn es auch besser als das ursprünglich gewählte chemische Auflösen geht - ist bestimmt auch nicht die eleganteste Lösung. Die Ausfällung des Plutoniums als Oxalat war solange sinnvoll, als man das beim Kalzinieren als besonders feinteilig entstehende Oxid gleich zum Trifluorid und dieses dann zum Metall umsetzte. Das Uran-Mischkarbonat ist aus einer Reihe von Gründen, nicht zuletzt der Löslichkeit, günstiger, setzt sich aber erst ganz langsam durch.

Dagegen ist die einzig sinnvolle Trennung zwischen dem Spaltstofferzeuger und dem Brennelementfertiger in Form einer nur an ihren Verunreinigungen und ihrem Aggregatzustand definierten Chemikalie, wie sie als Uranhexafluorid für Uranbrennelemente stets gewählt wurde, beim Plutoniumnitrat als Lösung aus nicht stichhaltigen Gründen bis heute nicht allgemein durchsetzbar. Obwohl die Liste der Beispiele noch verlängert werden könnte, soll die mehr beispielhafte und naturgemäß auch lückenhafte Aufzählung hier enden.

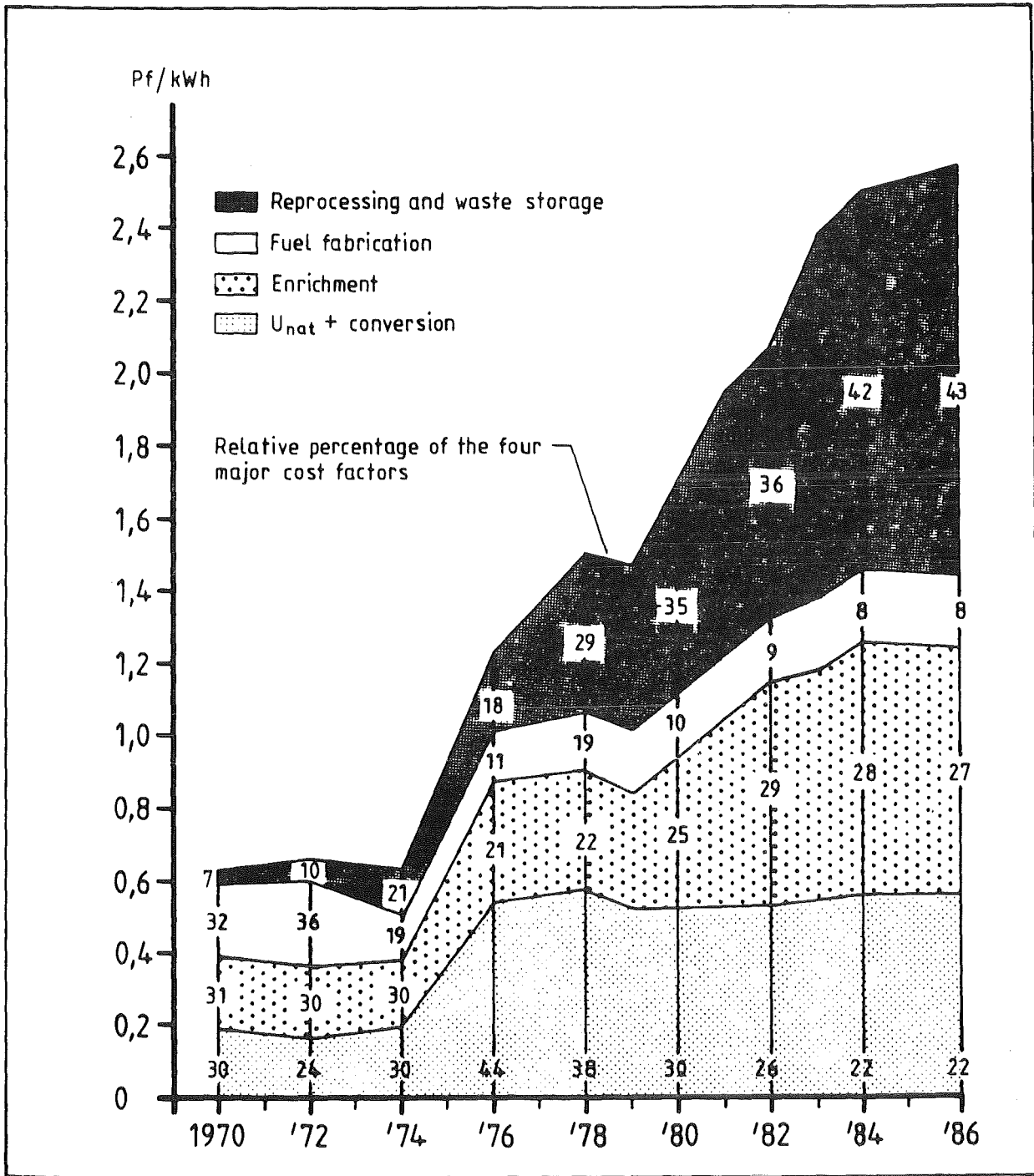
Es ist zu hoffen, daß die vorgebrachten Anregungen dazu mithelfen, die Vorstellungen der Ausleger, Nutzer und Aufarbeiter von LWR-Elementen einander etwas näher zu bringen.



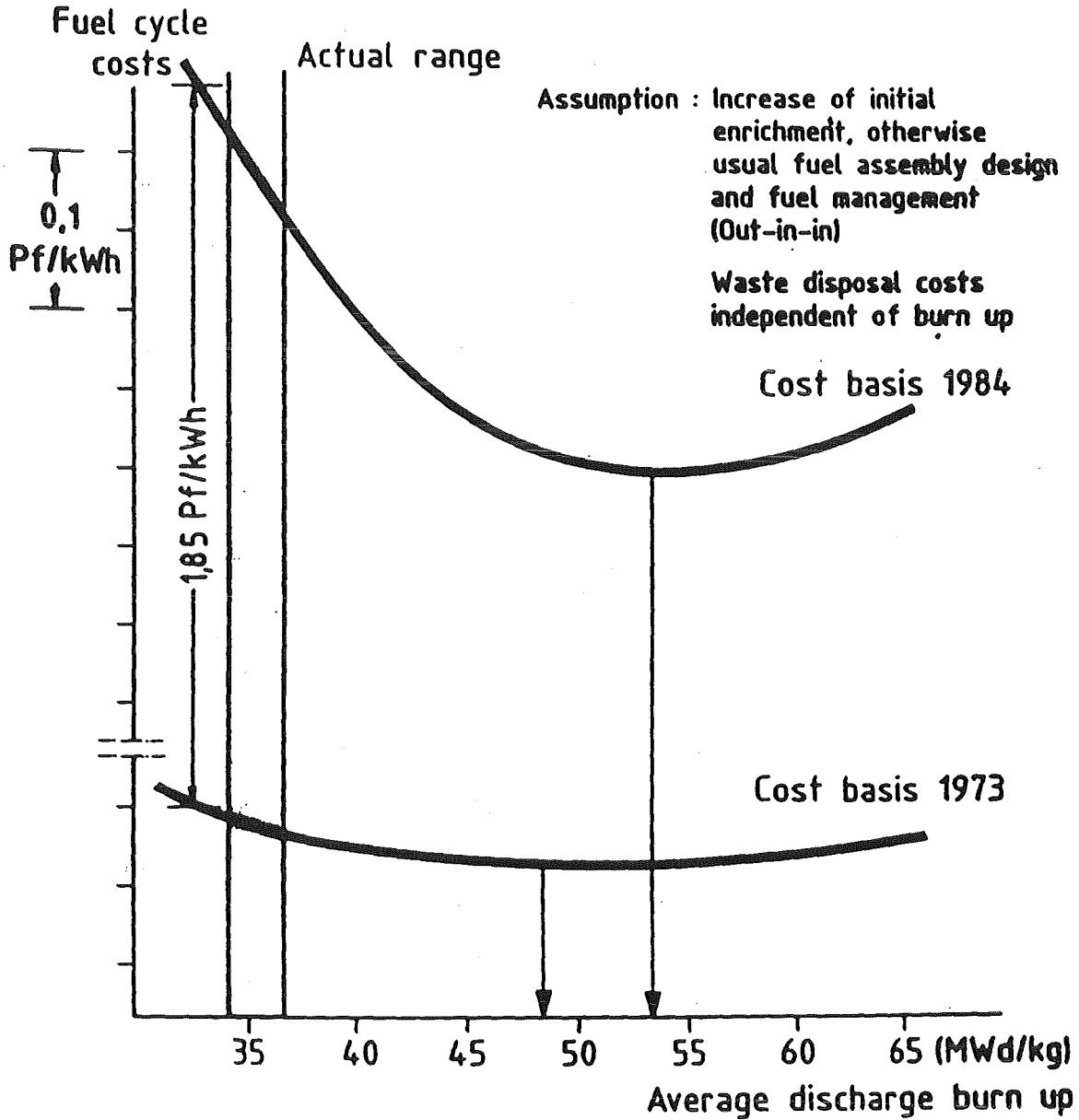
Added Value and Separation
in fuel cycle / kg U 3% enriched



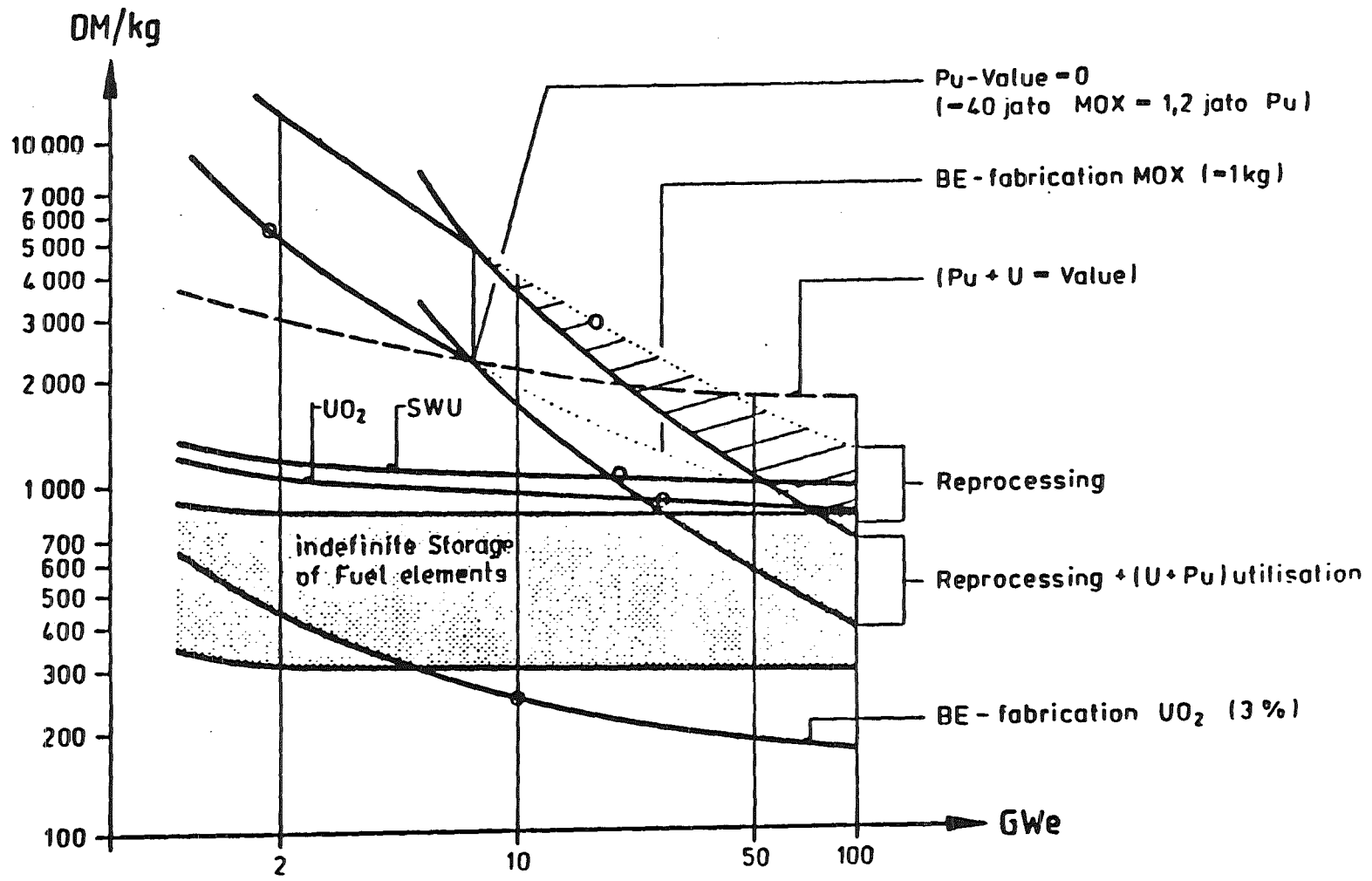
Natururanpreise
 (Jahresmittel, jeweiliger Geldwert)



Development of the fuel cycle costs
(1300 MW_e PWR)

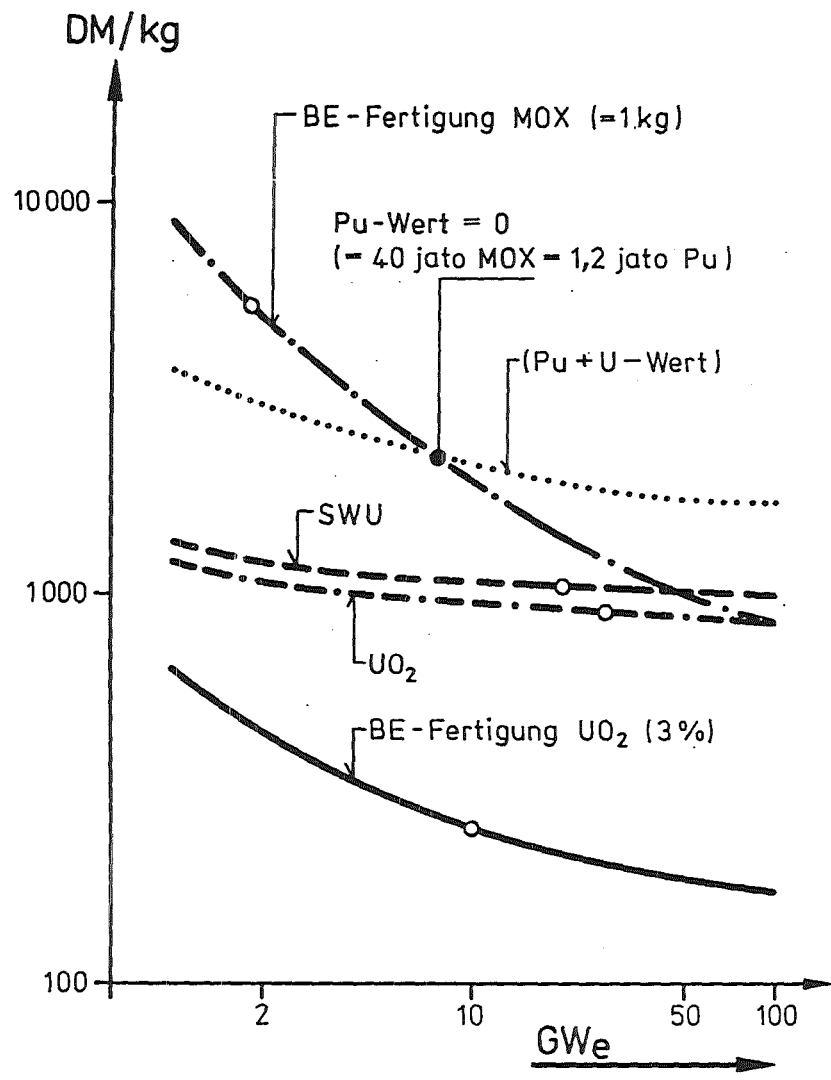


Fuel cycle costs vs. average discharge burn up (Trend)

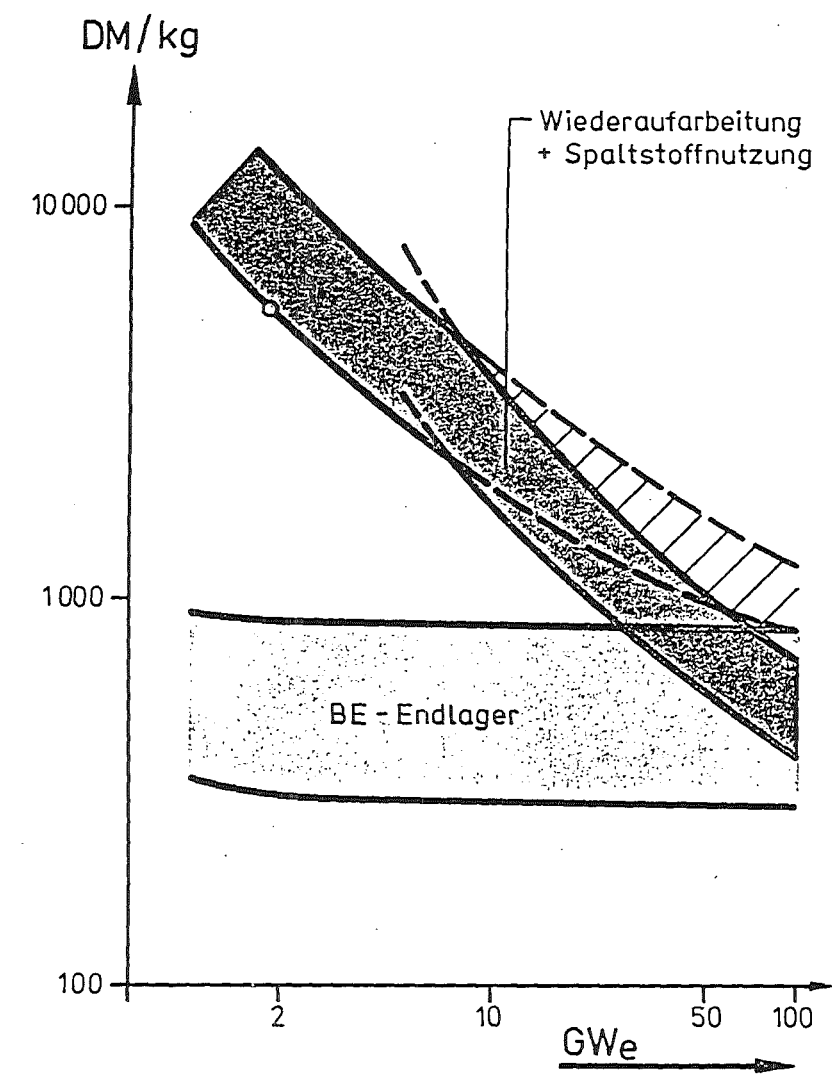


LIGHT WATER-FUEL CYCLE



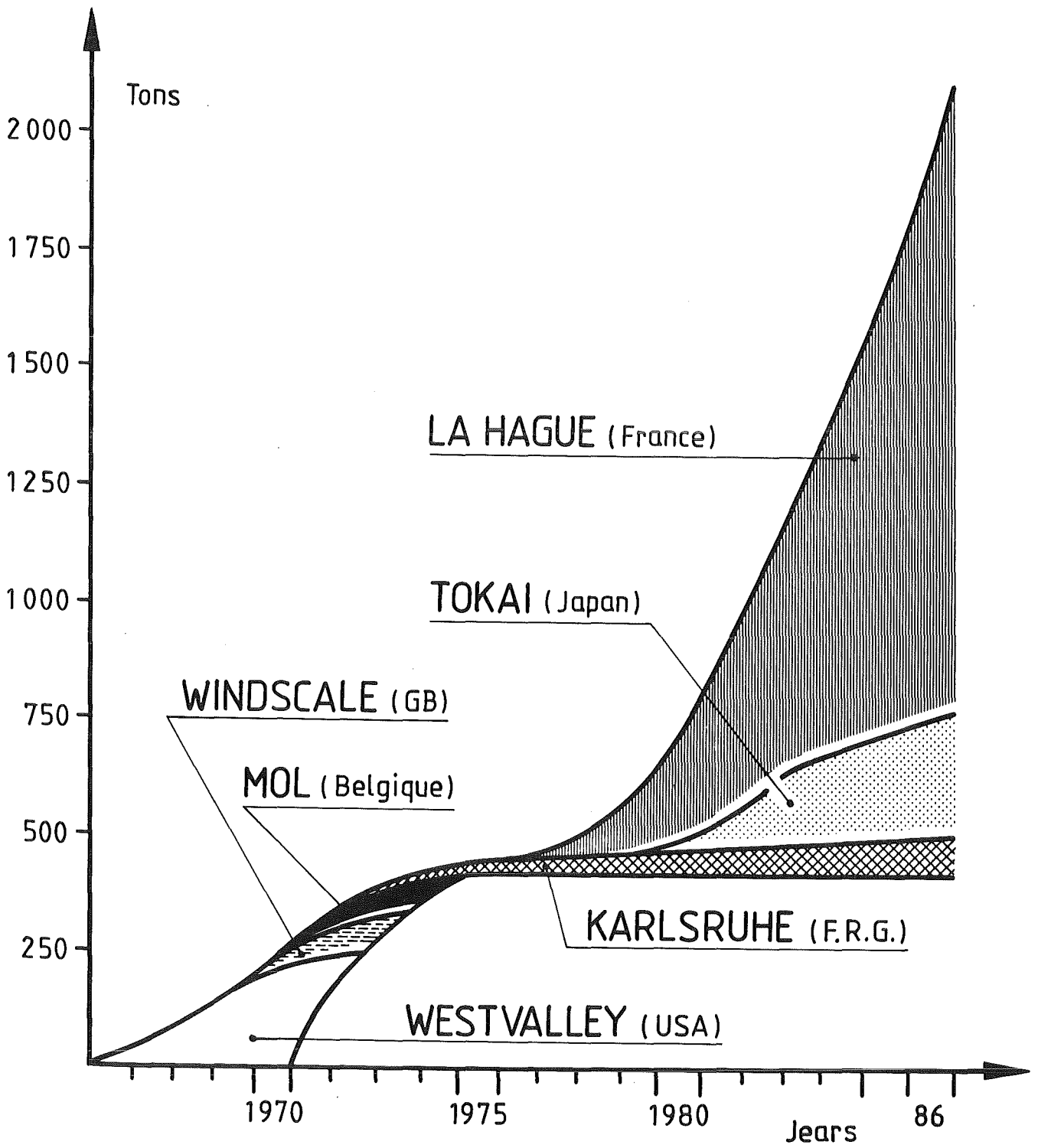


○ = gegenwärtig verfügbare Kapazitäten



LWR - BRENNSTOFFKREISLAUF





CUMULATED LWR FUELS REPROCESSED

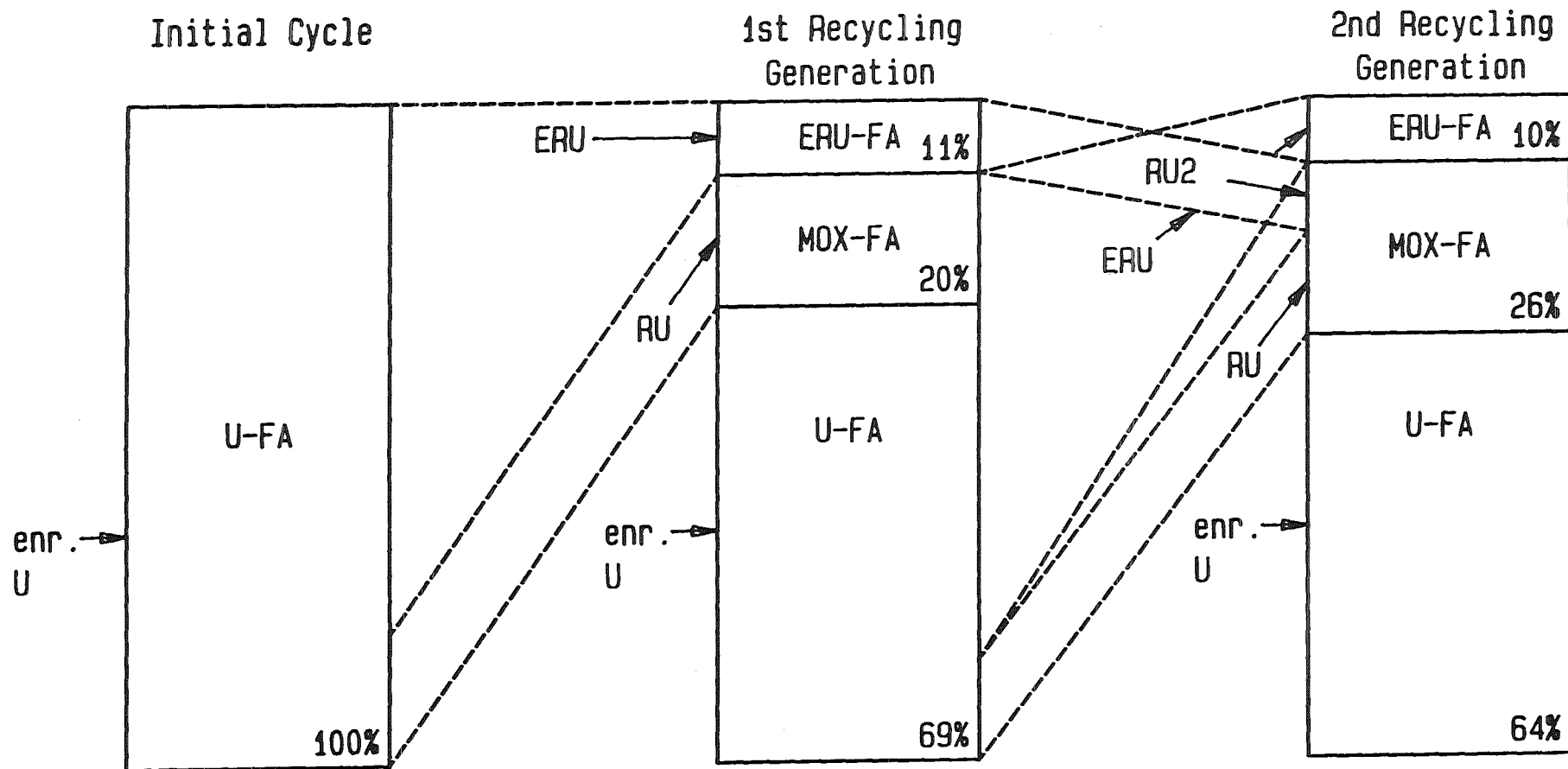


Fig.11: Plutonium Recycling Strategy with Use of Reprocessed U (=RU) as Enriched Reprocessed U (=ERU) in ERU-FAs and as RU and RU2 in MOX-FAs

**Mechanische Auslegung und Betriebsverhalten
fortschrittlicher LWR-Brennelemente**

H. Groß, H.-P. Fuchs, F. Wunderlich, M. Gärtner
Siemens AG, Unternehmensbereich KWU
8520 Erlangen

1. Einleitung

Die Brennelemententwicklung der letzten Jahre stand ganz im Zeichen der Verringerung der Brennstoffkreislaufkosten bei gleichbleibender Sicherheit und Betriebszuverlässigkeit. Wesentlich dazu beigetragen haben die Erhöhung der Entladeabbrände und die Verbesserung der Neutronenökonomie. Die Verbesserung der Neutronenökonomie wurde durch eine Verringerung der parasitären Absorptionen im Brennelement und der Neutronenleckage der Reaktorkerne erzielt. Diese Verbesserungen konnten unter voller Einhaltung der sicherheitstechnischen Anforderungen erreicht werden. Durch den Übergang zu Brennelementen mit höherer Stabzahl und entsprechend niedrigeren Stableistungen konnten die Sicherheitsmargen teilweise sogar erhöht werden. Eine Übersicht des Gesamterfahrungsstandes von Siemens/KWU gibt Tabelle 1.

2. DWR-Brennelemente

Tabelle 2 zeigt den Siemens/KWU-Erfahrungsstand mit DWR-Brennelementen. Trotz einer größeren Anzahl von Brennelementtypen werden nur zwei unterschiedliche Brennstabdurchmesser verwendet, nämlich 10,75 mm und 9,50 mm. Dabei haben die Brennelemente mit den Stäben

mit 9,50 mm Durchmesser die niedrigeren Stableistungen. Der Übergang von den 16x16-Brennelementen der Vorkonvoianlagen zu den 18x18-Brennelementen der Konvoianlagen reduziert die Stableistung um 21 %. Daraus ergeben sich höhere Sicherheitsmargen und ein höheres Abbrandpotential.

Einen Überblick über die wesentlichen technologischen Aspekte von fortschrittlichen DWR-Brennelementen gibt Abbildung 1. Die Verwendung von Zircaloy-Führungsrohren ist schon lange Standard. Ebenso stehen für praktisch alle Brennelementtypen Zircaloy-Abstandhalter zur Verfügung. Lediglich der unterste und der oberste Abstandhalter im Brennelement werden aus Inconel hergestellt, da sie am Rand oder außerhalb der aktiven Länge liegen und deshalb nicht zur Verbesserung der Neutronenökonomie beitragen können. Bei einer 1300 MW-Anlage bedeutet die Einführung von Zircaloy-Führungsrohren eine Anreicherungsersparnis von ca. 0,1 % U-235, und die Einführung der Zircaloy-Abstandhalter ergibt eine weitere Einsparung von ca. 0,05 % U-235 [1]. Zircaloy-Führungsrohre und Zircaloy-Abstandhalter werden aus rekristallisiertem Material hergestellt, um die bestrahlungsinduzierten Dimensionsänderungen gering zu halten.

Die Abstandhalter sind an der Außenseite mit Abweiserfahnen und abweiserfreundlichen Ecken versehen, um ein Verhaken der Brennelemente beim Be- und Entladen des Reaktorkerns zu vermeiden. Zur Verbesserung der Reparaturfähigkeit sind Kopf und Fuß abschraubbar gestaltet.

In fortschrittlichen DWR-Einsatzplanungen wird von Siemens/KWU Gadolinium (Gd_2O_3) als abbrennbarer Absorber verwendet. Tabelle 3 zeigt den Erfahrungsstand. In kompletten Nachladungen sind Brennstäbe mit Gd_2O_3 -Konzentrationen bis zu 9 % eingesetzt worden. Mit einzelnen Brennstäben liegen sogar Erfahrungen bis 12 % Gd_2O_3 vor.

Gadolinium wird sowohl für Erstkernausstattungen wie auch in Nachladungen verwendet. Bei Erstkernen ersetzt das Gadolinium das früher übliche Borsilikatglas, das in speziellen Absorberelementen eingesetzt wurde. Damit entfällt die Entsorgung dieser Absorberelemente. Außerdem besaßen die Absorberelemente am Zyklusende noch eine nicht vernachlässigbare Restabsorption. Bei Nachladungen ist unter Verwendung von Gadolinium eine sogenannte Voll-"Low-Leakage"-Beladung möglich, das heißt, sämtliche neuen Brennelemente werden im Kerninneren und am Kernrand die höchst abgebrannten Brennelemente eingesetzt. Die Absorptionswirkung des Gadoliniums verhindert dabei, daß sich zu Beginn eines Zyklus unzulässig hohe Heißstellenfaktoren ergeben. Für einen 1300 MW-DWR bedeutet dies infolge der verringerten radialen Neutronenleckage eine Anreicherungsersparnis von ca. 0,15 % U-235 bzw. eine Einsparung von vier Nachladebrennelementen bei einem 12-Monate-Gleichgewichtszyklus [1].

3. SWR-Brennelemente

Im Siedewasserreaktor wurde die Stabzahl pro Brennelement erhöht, indem man ausgehend von einer 7x7-Anordnung über die 8x8-Anordnung zu der heutigen 9x9-Anordnung überging. Verglichen mit dem ehemaligen 7x7-Brennelement hat das 9x9-Brennelement in der (9-9Q)-Version eine um 32 % geringere Stableistung.

Das (9-9Q)-Brennelement ist durch einen zentralen, quadratischen Wasserkanal gekennzeichnet [2], der die Position von 9 (3x3) Brennstäben einnimmt (Abbildung 2 und 3). Der Wasserkanal verbessert die Moderation der Neutronen im Inneren des Brennelementes ganz wesentlich. Das erhöht die Brennstoffausnutzung und ermöglicht es, die Anzahl der Anreicherungsstufen auf drei zu verringern und ihre Spreizung wesentlich zu verkleinern [3]. Abbildung 4 zeigt dies im Vergleich zum (8-2)-Brennelement.

Es gibt unterschiedliche Ausführungen des (9-9Q)-Brennelements. In Anlagen mit symmetrischem Wasserspalt (C-Gitter) ist auch der Wasserkanal symmetrisch im Brennelement angeordnet (Abbildung 2). Dagegen ist in Anlagen mit asymmetrischem Wasserspalt (D-Gitter) der Wasserkanal um eine Brennstabreihe in Richtung des kleinen Wasserspaltes verschoben (Abbildung 3). Damit wird eine gleichmäßigere thermische Neutronenflußverteilung über den Brennelementquerschnitt in Anlagen mit D-Gitter erreicht als bei symmetrischer Lage des Wasserkanals möglich wäre.

(9-9Q)-Vorläuferbrennelemente wurden 1986 in Krümmel eingesetzt. Die Inspektionen nach einem Zyklus und nach zwei Zyklen Einsatzzeit bestätigen das erwartete gute Betriebsverhalten. Weitere Vorläuferbrennelemente wurden 1987 in drei Anlagen eingesetzt, und 1988 folgte in Krümmel die erste vollständige Nachladung dieses Brennelementtyps. Der mittlere Entladeabbrand dieser Nachladung wird ca. 40 MWd/kg(U) betragen. Der nächste Schritt werden mittlere Entladeabbrände von ca. 45 MWd/kg(U) sein. Tabelle 4 gibt eine Gesamtübersicht der Betriebserfahrungen im SWR.

Auch im SWR werden "Low-Leakage"-Beladungen zur Verminderung der radialen Neutronenleckage verwendet. Zusätzlich kann die axiale Neutronenleckage durch Natururanenden reduziert werden. Weitere neutronenphysikalische Verbesserungen ergeben sich durch eine axiale Gadoliniumstaffelung in den $\text{UO}_2/\text{Gd}_2\text{O}_3$ -Brennstäben der Brennelemente.

Um PCI-bedingte (PCI = Pellet Clad Interaction) Einschränkungen der Betriebsflexibilität auch bei neutronenphysikalisch optimierten Einsatzplanungen mit großen Leistungsunterschieden zwischen benachbarten Brennelementen zu vermeiden, bietet Siemens/KWU Liner-Hüllrohre an. Der Liner besteht aus einer dünnen Schicht aus reinem Zirkonium auf der Innenseite des Hüllrohrs. Er verhindert [4], daß es bei schnellen Leistungsänderungen durch Spannungsrißkorrosion infolge einer Brennstoff/Hüllrohr-Wechselwirkung (PCI) zu Brenn-

stabdefekten kommt (Abbildung 5). Das Linerkonzept wurde von Siemens/KWU zuerst in Verbindung mit 8x8-Brennelementen eingeführt. Da aber gerade die niedrigen mittleren Stableistungen der 9x9-Brennelemente ein Potential bieten, durch Erhöhung der lokalen Heißstellenfaktoren zu wirtschaftlicheren Betriebsweisen überzugehen, kann man auch mit 9x9-Brennelementen lokale Stableistungen erreichen, die ohne Liner zu PCI-bedingten Einschränkungen führen würden, wenn auch in geringerem Umfang als mit 8x8-Brennelementen. Dies führte dazu, daß der Liner auch in 9x9-Brennelementen eingesetzt wird.

4. Betriebsverhalten

Die wichtigsten Effekte, die aus Sicht der mechanischen Auslegung der Brennelemente unter Umständen die erzielbaren Abbrände begrenzen können, sind:

- die wasserseitige Korrosion der Hüllrohre
- die Erzeugung und Freisetzung gasförmiger Spaltprodukte und der sich dadurch ergebende Innendruckaufbau im Brennstab
- die sich aufgrund der Bestrahlung ergebenden Dimensionsänderungen von Hüllrohren, Brennstoff und Strukturteilen

4.1 Hüllrohrkorrosion

Unter DWR-Bedingungen mit der dort heute allgemein üblichen Kühlmittelchemie bildet sich auf der Außenseite von Zry-Hüllrohren eine gleichförmige Oxidschicht. Dabei ist die Korrosionsrate gegenüber der in Autoklaven-Versuchen außerhalb des Reaktors gemessenen erhöht.

In thermohydraulisch fortschrittlich ausgelegten Druckwasserreaktoren mit relativ hohen Kühlmitteltemperaturen und hier insbesondere in Verbindung mit hohen Stableistungen ist die wasserseitige Korrosion der Hüllrohre heute teilweise begrenzend hinsichtlich der gewünschten Entladeabbrände (Abbildung 6) [5]. Die Oxidschichtdicke zeigt am Brennstab ein charakteristisches Axialprofil mit einem Maximum im oberen Stabdrittel (Abbildung 7). Dieses Axialprofil ist eine Folge der Überlagerung des Einflusses der Kühlmittelaufheizung und der lokalen Stableistung auf die Temperatur an der Grenzschicht zwischen Metall und Oxid, die die Korrosionsrate bestimmt. Bestrahlungsversuche mit Hochleistungsbrennstäben sowie Brennstäben mit hohen Oxidschichtdicken haben gezeigt, daß die Hüllrohrkorrosion zu Brennstabdefekten führen kann. Trägt man den Erfahrungsstand mit Oxidschichten im DWR über der lokalen Wärmestromdichte auf, so läßt sich der Bereich, in dem die Stäbe intakt geblieben sind, von dem Gebiet unzulässiger Korrosion durch eine Grenzkurve abtrennen, die ungefähr einer Kurve konstanter Korrosionsrate am Ende der Einsatzzeit entspricht (Abbildung 8) [6].

Ein Teil des bei der Korrosion entstehenden Wasserstoffs wird vom Hüllrohr aufgenommen (Abbildung 9). Er wird nach Überschreiten der Löslichkeitsgrenze in Form von Hydridplättchen ausgeschieden. Die Ausscheidung beginnt an den relativ kältesten Stellen, das heißt, an der Außenseite der Hüllrohrwand [6].

Im Hinblick auf die angestrebten Abbranderhöhungen wurde von Siemens/KWU schon vor Jahren mit der Entwicklung von korrosionsbeständigerem Hüllrohrmaterial begonnen. Ein Ergebnis dieser Entwicklung ist das PCA-Material (PCA = Prime Candidate Alloy). Es beinhaltet eine Einschränkung des nach der ASTM-Spezifikation für Zry-4 zulässigen Schwankungsbereichs der chemischen Zusammensetzung und der Verunreinigungen, und zusätzlich eine Glühbehandlung mit definiertem kumulativem Glühparameter, eine hohe Kaltverformung im letzten Verformungsschritt und einige weitere Festlegungen (Abbildung 10). Messungen nach zwei Zyklen Einsatzzeit bestätigen, daß mit dem PCA-

Material die Korrosion auf den unteren Bereich des Zry-4-Streubandes eingeschränkt werden kann (Abbildung 11). Daneben untersucht Siemens/KWU auch alternative Legierungen auf Zirkonbasis.

Im Siedewasserreaktor ist die gleichförmige Korrosion aufgrund der niedrigen Kühlmitteltemperatur sehr gering. Hier konzentriert sich das Interesse auf die nodulare Korrosion. Obwohl Siemens/KWU nie Probleme mit nodularer Korrosion hatte, die von Fremdanlagen gelegentlich berichtet werden, wurde eine Entwicklung eingeleitet, die nodulare Korrosion weiter zu verringern. Deshalb wird für den Siedewasserreaktor LTP-Material (LTP = Low Temperature Process) bei der Fertigung von Hüllrohren, Wasserkanälen und Strukturteilen verwendet. Oxidschichtdickenmessungen an Brennstäben mit bis zu drei Zyklen Einsatzzeit bestätigen, daß das LTP-Material eine niedrigere nodulare Korrosion hat als früher verwendetes Material ohne die eingeschränkte Glühbehandlung bei der Fertigung (Abbildung 12) [7].

4.2 Spaltgasfreisetzung

Ein Teil der durch die Spaltungen im Brennstoff entstehenden Spaltprodukte ist gasförmig und wird während des Reaktorbetriebs teilweise aus dem Brennstoff in die Gasräume des Brennstabs freigesetzt. Man muß dabei zwischen der stationären Freisetzung und der transienten Freisetzung unterscheiden. Eine transiente Freisetzung erfolgt durch positive, genügend schnelle Leistungsänderungen (Leistungsrampen) während - wie schon der Name sagt - die stationäre Freisetzung auch im stationären Betrieb erfolgt.

Siemens/KWU hat an einer großen Anzahl von Brennstäben Spaltgasmessungen durchgeführt. Die Abbrände dieser Stäbe reichen bis 53 MWd/kg(U). Dabei wurden auch Daten über die transiente Freisetzung aus Rampentests gewonnen, die in Petten, Studsvik und Biblis durchgeführt wurden.

Die Spaltgasfreisetzung im stationären Betrieb ist bei den üblichen Stableistungen relativ gering. Sie übersteigt im allgemeinen wenige Prozent nicht. Die Abbildungen 13 und 14 zeigen das an charakteristischen Beispielen [8]. Die Stäbe in Abbildung 13 wurden bis zu fünf Zyklen bei Stableistungen von typischerweise zwischen 150 W/cm und 250 W/cm bestrahlt. Die Spaltgasfreisetzung war gering und überschritt 2 % nicht. Es zeigte sich aber eine Tendenz zu höherer Freisetzung mit steigendem Abbrand, obwohl die Stableistung und damit die Brennstofftemperatur nach dem zweiten Einsatzzyklus kontinuierlich abnahm. Die Keramographie dieser Stäbe ergab nur ein geringes Kornwachstum im Pelletzentrum, das nach den zweiten Zyklus fast abgeschlossen war. Ein unterschiedliches Verhalten zeigten die höher belasteten Stäbe aus Abbildung 14. Im zweiten Zyklus, als die Stableistung noch hoch war und schon eine genügende Menge Spaltgas erzeugt war, stieg die Freisetzung deutlich an. Nach dem dritten Zyklus fand praktisch keine weitere Freisetzung mehr statt, was zu einer Abnahme der relativen Freisetzung führt. Die Keramographie dieser Stäbe zeigte ein deutliches Kornwachstum.

Siemens/KWU hat die transiente Spaltgasfreisetzung an ungefähr 200 gerampten Brennstäben gemessen. Abbildung 15 zeigt die integrale transiente Freisetzung von kurzen Brennstabsegmenten [8]. Es ergibt sich ein deutlicher Einfluß von Stableistung und Abbrand. Die hohen relativen Freisetzungswerte dürfen natürlich nicht auf lange Stäbe übertragen werden, da dort nur ein Teil der aktiven Länge bei einer Leistungsrampe auf die hohen Leistungen kommt. Sie machen aber deutlich, daß bei rampenartiger Beanspruchung der Brennstäbe mit merklich höherer Spaltgasfreisetzung gerechnet werden muß, zum Beispiel im Siedewasserreaktor bei 8x8-Brennelementen.

Der Gasdruck in den Brennstäben wird von Siemens/KWU auslegungsgemäß so limitiert, daß auch bei Überschreiten des Kühlmitteldrucks eine unzulässige Kriechdehnung des Hüllrohrs nach außen vermieden wird. Die Auslegung der KWU-Reaktoren erlaubt es, relativ große Plenumvolumina vorzusehen. Das gilt insbesondere für den Druckwas-

serreaktor, dessen Brennstäbe an beiden Enden Plena haben. Daher hat sich aus dem Gasdruckaufbau bisher keine Abbrandlimitierung ergeben. Im KWU-Druckwasserreaktor allgemein und im Siedewasserreaktor zumindest bei 9x9-Brennelementen ist sogar noch ein deutliches Abbrandpotential zu sehen, bevor die Spaltgasfreisetzung limitierend wirken könnte. Etwas anders ist die Situation teilweise in Fremdreaktoren. Die Brennstoffentwicklung zielt jedenfalls auch auf eine Reduzierung der Spaltgasfreisetzung ab. Dies soll über eine Reduzierung der offenen Porosität, eine Erhöhung der Korngröße und eine flachere Nachverdichtungs- und Schwellkurve erreicht werden. Maßnahmen dazu sind zum Beispiel eine Al-Dotierung des Brennstoffs, eine erhöhte Sintertemperatur und eine gezielte Einstellung der Porengrößenverteilung.

4.3 Dimensionsänderungen

Bei den Dimensionsänderungen der Brennstäbe sind vor allem die Durchmesserabnahme der Hüllrohre, das Nachverdichten und Schwellen des Brennstoffs, die sich eventuell aus dem Schwellen ergebende Rückdehnung des Hüllrohrs durch den Brennstoff bei hohen Abbränden und das axiale Wachstum der Brennstäbe zu betrachten.

Bis zu hohen Abbränden wird bei DWR-Brennstäben eine kontinuierliche Durchmesserabnahme der Hüllrohre beobachtet [9]. Erst bei einem Abbrand von ca. 50 MWd/kg(U) ist eine beginnende Abstützung des Hüllrohrs durch den Brennstoff zu erkennen (Abbildung 16). Da zudem Zry bei langsamer Dehngeschwindigkeit eine hohe Dehnfähigkeit besitzt, ist ersichtlich, daß auch bei einer weiteren Erhöhung der heute üblichen Abbrände eine Rückdehnung des Hüllrohrs durch den schwellenden Brennstoff nicht limitierend ist.

Die Dimensionsänderung des Brennstoffs setzt sich zusammen aus einer anfänglichen Nachverdichtung durch eine Vernichtung der feineren Poren und einem darauf folgenden kontinuierlichen Schwellen

durch Einlagerung von Spaltprodukten in die Brennstoffstruktur (Abbildung 17). Nach Abschluß der Nachverdichtung bei Abbränden von 10 - 20 MWd/kg(U) nimmt die Dichte des Brennstoffs mit einer Rate von 1 %/10 MWd/kg(U) ab. Man sieht, daß der ursprüngliche Dichtewert wieder bei einem Abbrand von ca. 35 MWd/kg(U) erreicht wird. Darüber ergibt sich eine Nettozunahme des Tablettenvolumens. Für zukünftige höhere Abbrände wird eine Abflachung der Nachverdichtungs- und Schwellkurve angestrebt. Das kann durch eine geeignete Anpassung der Porengrößenverteilung im Brennstoff erreicht werden.

Das axiale Wachstum der Brennstabhüllrohre ist vom Rekristallisationsgrad und damit von der Festigkeit der Hüllrohre im Fertigungszustand abhängig. Mit zunehmender Festigkeit erhöht sich auch das Wachstum. Das Wachstum von nicht rekristallisierten Hüllrohren ist eine weitgehend lineare Funktion der schnellen Neutronenfluenz (Abbildung 18). Dagegen nimmt die Wachstumsrate vollrekristallisierter Hüllrohre zunächst mit zunehmender Neutronenfluenz ab. Für hohe Fluenzen gibt es Hinweise auf ein eventuell stärkeres Wachstum. Das Wachstum der Hüllrohre wie auch der Strukturteile wird bei der konstruktiven Ausführung der Brennelemente entsprechend dem vorgesehenen Abbrandziel berücksichtigt.

5. Schlußbemerkung

All diese Ausführungen zeigen, daß sowohl die Auslegung der DWR-Brennelemente als auch die der SWR-Brennelemente den heutigen Anforderungen bezüglich erhöhten Abbränden, hohen lokalen Heißstellenfaktoren und Betriebsflexibilität genügen. Aus den Betriebserfahrungen ist zu schließen, daß unter Berücksichtigung der eingeleiteten und zum Teil schon realisierten Optimierungen von Brennstoff- und Hüllrohrmaterial ein Potential für weitere zukünftige Abbrand-erhöhungen besteht.

Literatur

- [1] W.-D. Krebs, R. Holzer, F. Wunderlich, "Auslegung und Einsatzplanung für fortschrittliche Nachladebrennelemente", Atomwirtschaft Atomtechnik, Nr. 8-9, S. 442-448, 1988
- [2] G. Lill, H. Lettau, W. Kraemer, "KWU's new 9x9 BWR design employs a central water channel", Nucl. Eng. International, 33, S. 37-42, 1988
- [3] D. Bender, O. Bender, P. Urban, "Boiling Water Reactor Reload Fuel for High Burnup: 9x9 with Internal Water Channel", Kerntechnik 50, Nr. 4, S. 222, 1987
- [4] H. S. Rosenbaum et al., "Large Scale Demonstration of Barrier Fuel", Int. Symp. on Improvements in Water Reactor Fuel Technology and Utilization", Stockholm, September 15-19, 1986, paper IAEA-SM-288/30
- [5] R. Holzer, "Stand und Perspektiven der Brennelementtechnik", Wintertagung des Deutschen Atomforums, Bonn, 27.-28.01.1987
- [6] F. Garzarolli, H. Stehle, "Behaviour of Core Structural Materials in Light Water Cooled Power Reactors", Int. Symp. on Improvements in Water Reactor Fuel Technology and Utilization", Stockholm, September 15-19, 1986, paper IAEA-SM-288/24
- [7] R. Holzer, H. Knaab, "Recent Fuel Performance Experience and Implementation of Improved Products", ANS Top. Meeting on LWR Fuel Performance, Williamsburg, Virginia, April 17-20, 1988
- [8] R. Manzel, F. Sontheimer, H. Stehle, "Fission Gas Release of PWR Fuel under Steady and Transient Conditions up to High Burnup", Proc. Am. Nucl. Soc., Top. Meeting on Light Water Reactor Fuel Performance, Orlando, Florida, April 21-24, 1985

- [9] H. Groß, R. Manzel, "LWR Fuel Rods for Extended Burnup - Design and Experimental Bases", IAEA Specialists' Meeting on Improved Utilization of Water Reactor Fuel with Special Emphasis on Extended Burnups and Plutonium Recycling, Mol, Belgium, May 7-11, 1984

SIEMENS

Anlagen		mittlere Stableistung (W/cm)	Anzahl BE/BS				max. lok. Abbrand (MWd/kgU)
Typ	Anz.		im Einsatz		kumuliert		
KWU-DWR	15	163-230	2.308	543.952	7.214	1.587.348	64
FREMD-DWR	13	167-222	1.180	279.630	2.323	530.302	62
KWU-SDWR	2	117-232	---	---	5.035	182.840	22
KWU-SWR	10	125-231	4.348	292.996	11.248	671.549	53
FREMD-SWR	3	141-182	716	53.790	730	54.704	48
Gesamt	43	117-232	8.552	1.170.368	26.550	3.026.743	64

Tab. 1: KWU-Brennelement-Betriebserfahrung (Stand 5/88)

SIEMENS

Anlagen- Typ	BE- Typ	Brennstab- Durchmesser (mm)	Mittl. Stablstg. (W/cm)	Anzahl bestrahlter		Ersteinsatz		
				Brenn- elemente	Brenn- stäbe	Standard Design	Zry- FR	Zry- AH
KWU-DWR (Erstkerne Nachladungen)	14-16	10.75	177-194	795	143.100	1968	-	-
	15-20	10.75	192-230	3.092	633.860	1972	1977	1982
	16-20	10.75	194-207	2.933	692.188	1974	1974	1982
	18-24	9.50	162-163	394	118.200	1979	1979	1985
Fremd-DWR (Nachladungen)	14-(16+1)	10.75	167-223	694	124.226	1976	1983	1986
	15-(20+1)	10.75	203	361	73.644	1977	1977	1980
	16-(20+1)	9.50	176	80	18.800	1985	1985	*)
	17-(24+1)	9.50	179	1.188	313.632	1980	1980	1984

Anm.: *) in Entwicklung

Tab. 2: KWU Betriebserfahrung mit DWR-Brennelementen (Stand 5/88)

BE - Typ	16x16-20				18x18-24				16x16-20												17x17-(24+1)						
Anlage	Brokdorf				Konvoi				Biblis-B				Grafenrheinfeld				Grohnde				Brokdorf			Dampierre-3			
Anzahl Gd - BE	8	60	20	8	8	60	20	8	2	2	2	2	24	44	36	32	24	12	36	16	24	4	16	16	8	36	36
Anzahl Gd - BS im BE	12				12				8	4	4	8	4				5	8				12	8		12	8	
Gd ₂ O ₃ Konzentration (w/o)	7		3	5	7		3	5	4	6	4	5	7	7				7	5	5	7	5	7	9			
U235 Anreicherung (w/o)																											
- UO ₂ - BS	2.1	2.8	3.5		1.9	2.5	3.2		3.0	3.5			3.1			3.1	3.5	4.0	3.5	4.0	3.3	3.5					
- UO ₂ /Gd ₂ O ₃ BS	0.7	0.7	0.7		0.7	0.7	0.7		2.5	2.3			0.7			2.0	2.3	2.3	0.7	2.3	2.3	2.4	1.8				
Jahr des ersten Einsatzes	1986				Isar 2 1988 Emsland 1988 Neckarwestheim 2 1988				1980	1981	84	85	86	87	1988	87	1988	1988			83	84	85				
Zyklus Nummer	1				1				4	5	3	4	5	6	7	3	4	2			3	4	5				

Tab. 3: KWU Erfahrung mit UO₂/Gd₂O₃ Brennelementen in Erstkernen und Nachladungen von Druckwasserreaktoren

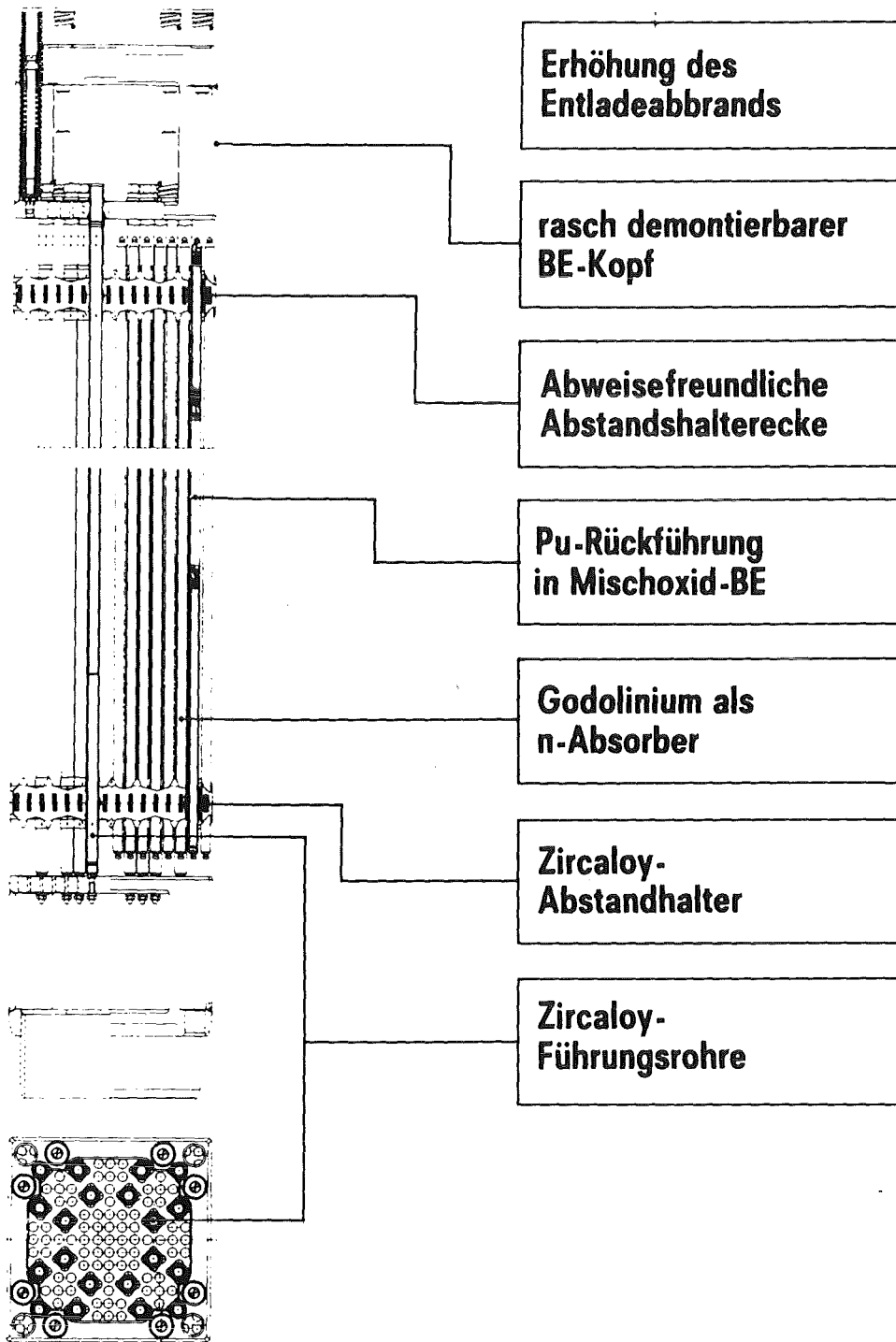
SIEMENS

Anlagen- Typ	BE-Typ	Brennstab- Durchmesser (mm)	Mittl. Stablstg. (W/cm)	Anzahl bestrahlter		Maximaler Abbrand	
				Brenn- elemente	Brenn- staebe	BE- gemittelt (GWdt(U))	Lokal
KWU-SWR (Erstkerne und Nachladungen)	6x6,7x7	14.3	125-230	2.933	128.170	38	53
	8-1	12.5	179-181	3.497	220.311	38	52
	8-2 *)	12.3	177-204	3.162	196.044	32	40
	9-1	10.75	141-158	1.052	84.160	38	48
	9-5 *)	11.0	146	284	21.584	19	26
	9-9Q *)	11.0	154-156	144	10.368	15	21
Fremd- SWR (Nachladungen)	8-2	12.3	182	128	7.936	38	48
	9-1	10.75	141	266	21.280	36	47
	9-5	11.0	148	324	24.624	33	42
	9-9Q *)	11.0	156-170	12	864	8	11

Anm. : *) zum Teil mit Zirkon-Liner-Hüllrohren

Tab. 4: KWU Betriebserfahrung mit SWR-Brennelementen (Stand 5/88)

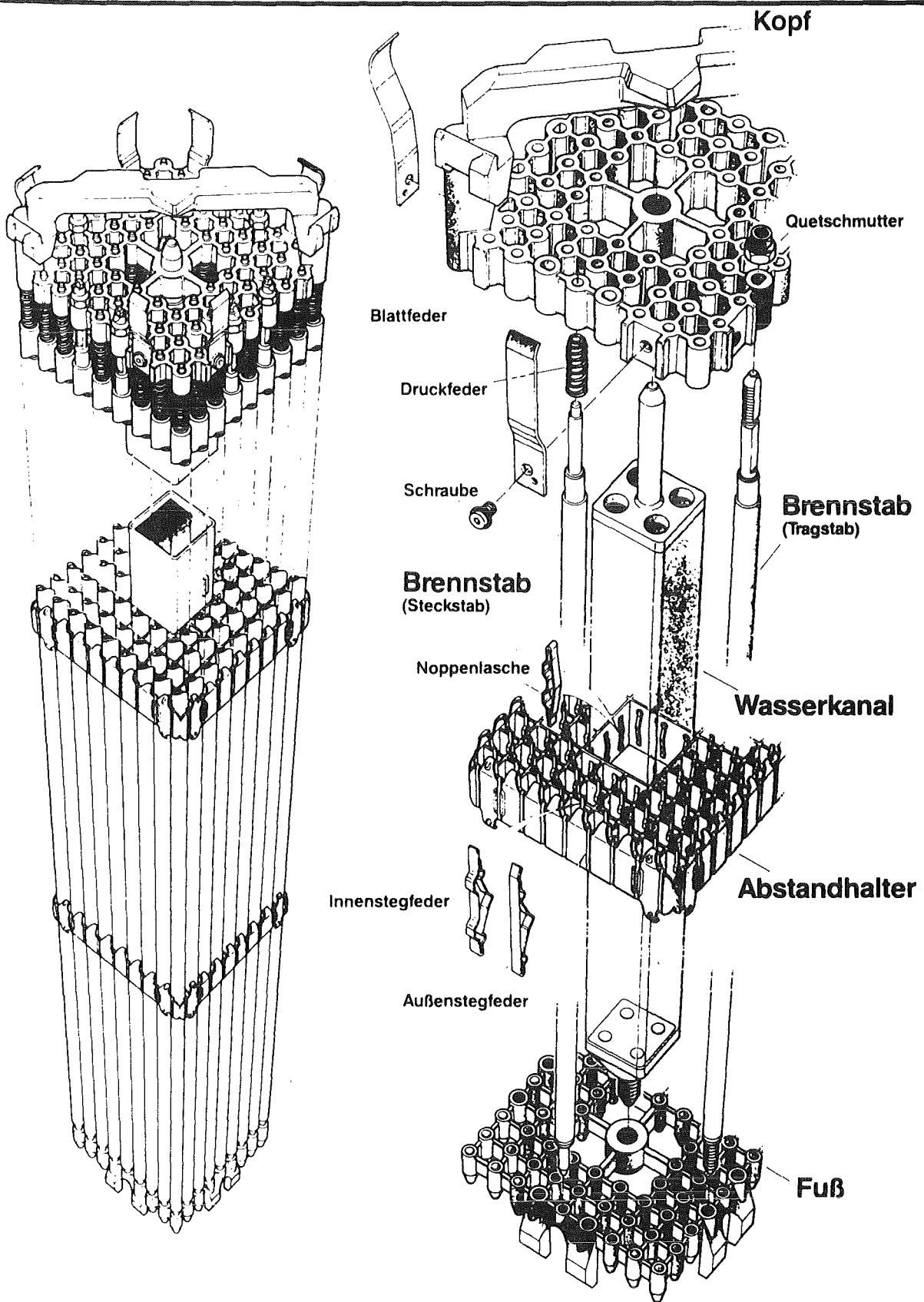
SIEMENS



**DWR-Brennelement
Erreichter Stand des technischen Fortschritts**

Abb. 1

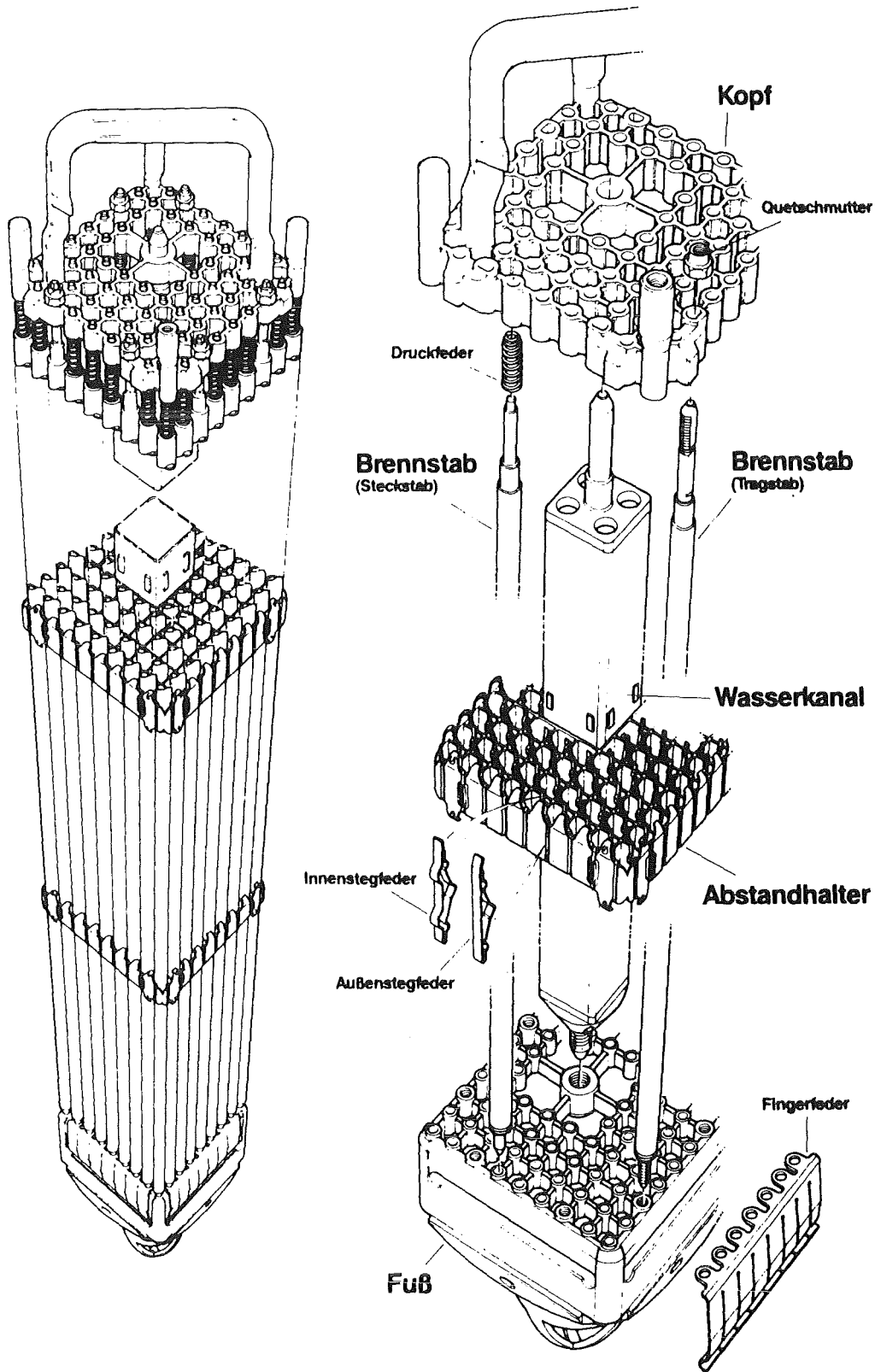
SIEMENS



Brennelement Typ 9-9Q

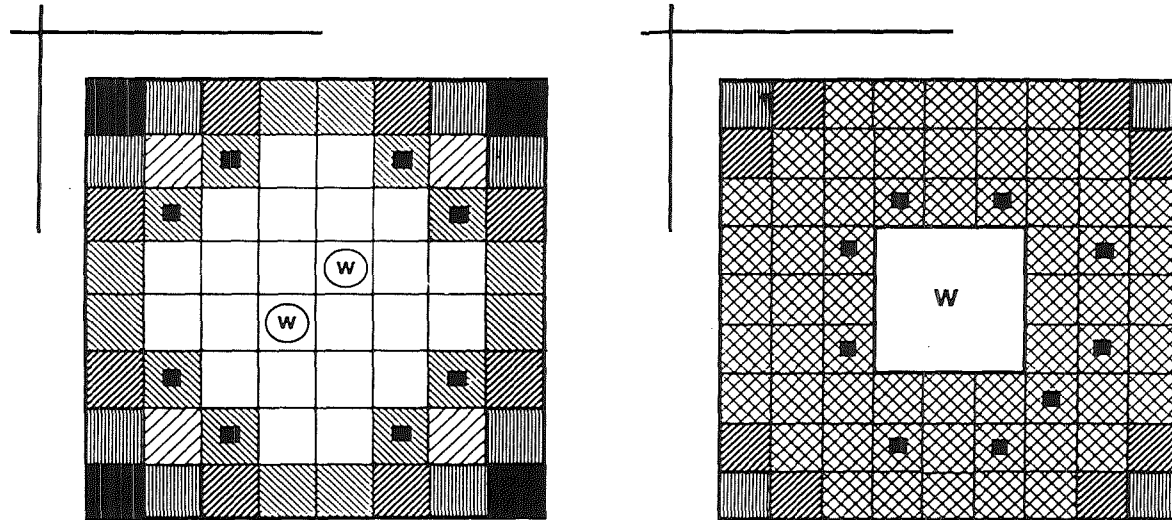
Abb. 2

SIEMENS



Brennelement Typ 9-9Q/134D

Abb. 3













	ca. $0.5 \cdot \bar{e}$		ca. $1.03 \cdot \bar{e}$		Wasserstab
	ca. $0.7 \cdot \bar{e}$		ca. $1.13 \cdot \bar{e}$		Wasserkanal
	ca. $0.9 \cdot \bar{e}$		ca. $1.24 \cdot \bar{e}$	\bar{e}	mittlere U-235 Gitter - Anreicherung
	ca. $0.95 \cdot \bar{e}$				Beimischung des abbrennbaren Absorbers Gd_2O_3

Abb. 4: Vergleich der BE-Querschnitte 8x8-2 und 9x9-9Q

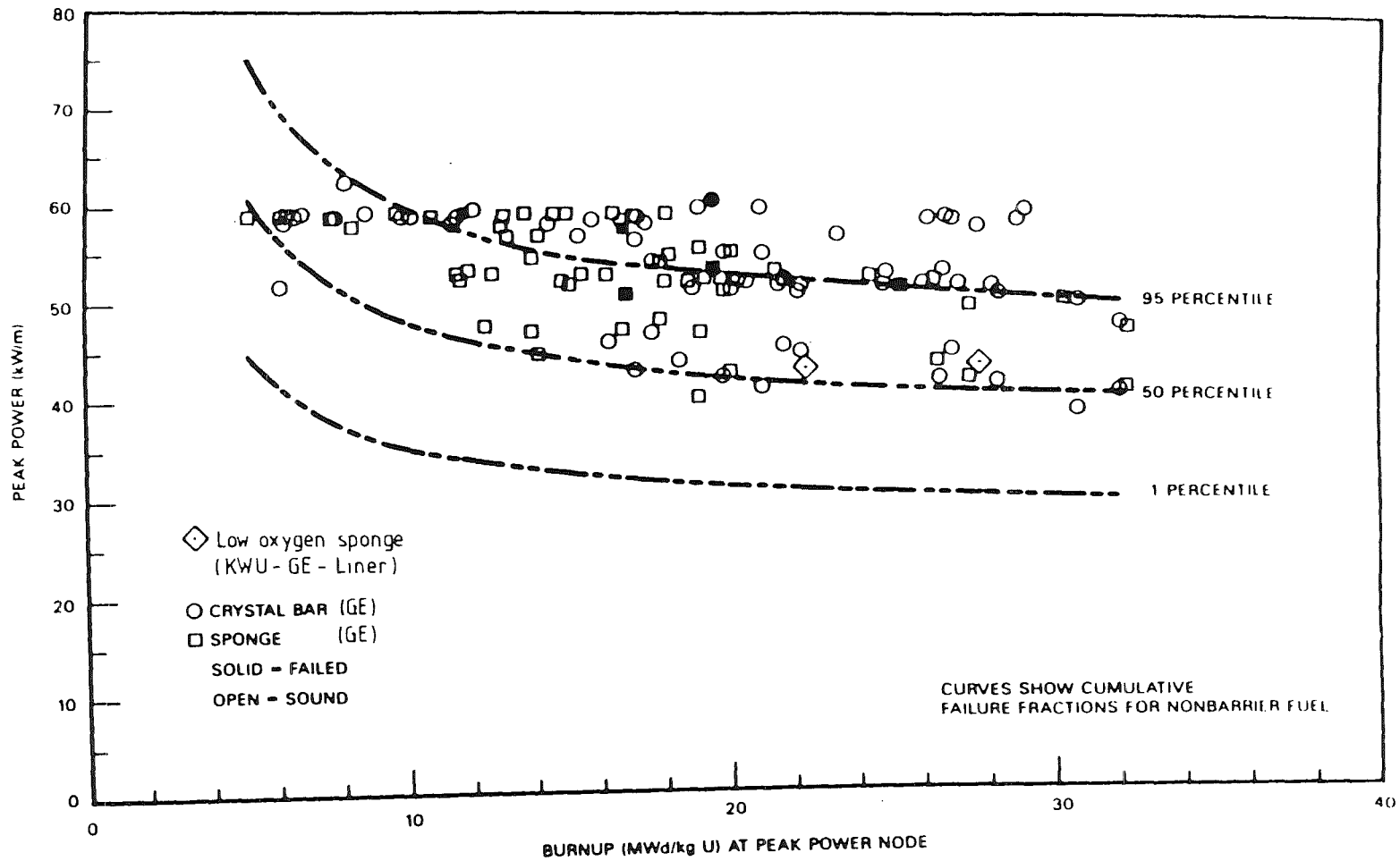


Abb. 5: Leistungsrampenerfahrung mit Zr-Liner-Brennstabsegmenten von GE und KWU

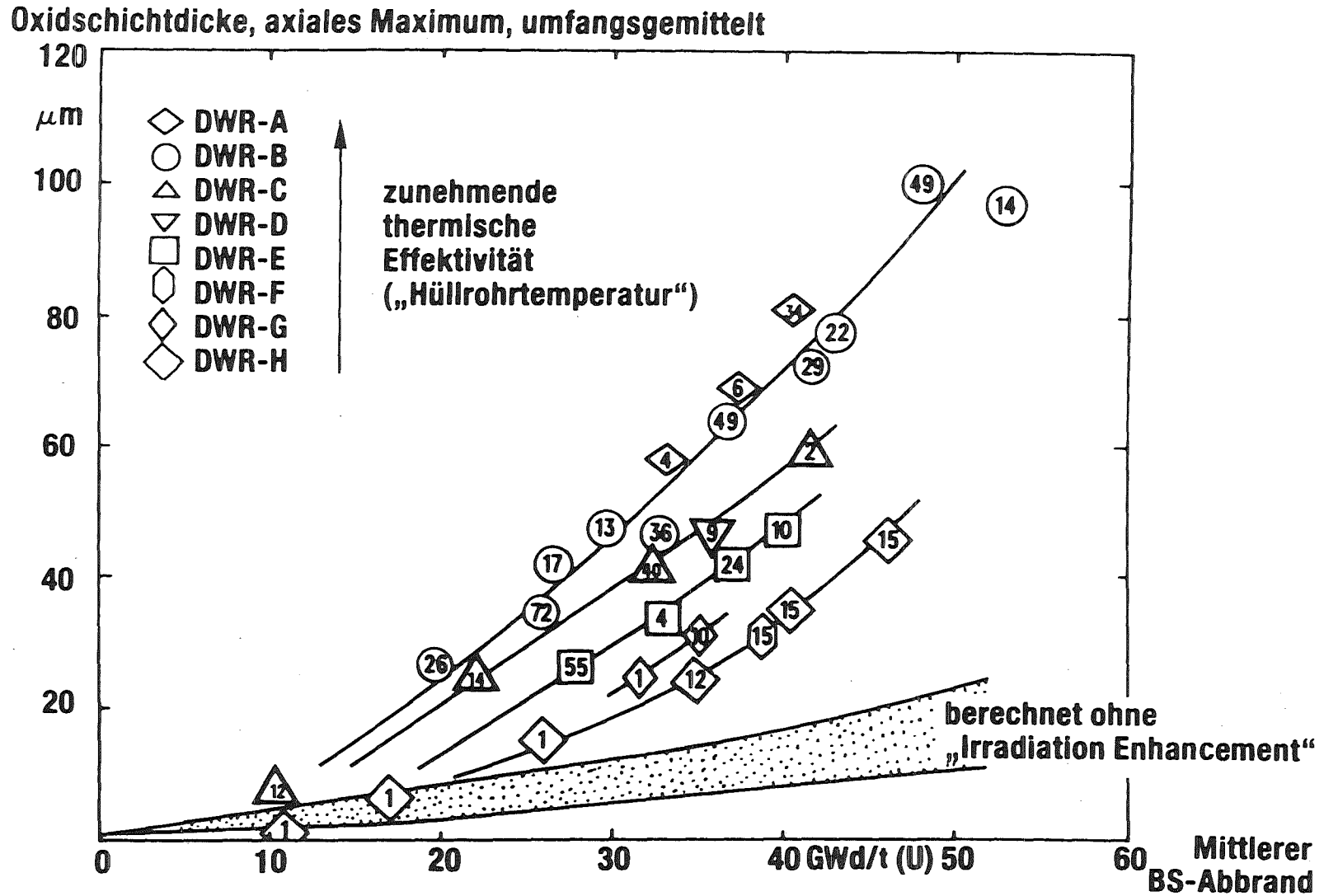


Abb. 6: Oxidschichtdicke über Abbrand in verschiedenen Druckwasser-Reaktoren bis zu 5 Zyklen mit vergleichbarer Leistungsgeschichte (aus Einzelstab-Messungen mit der Oxiddickensonde)

SIEMENS

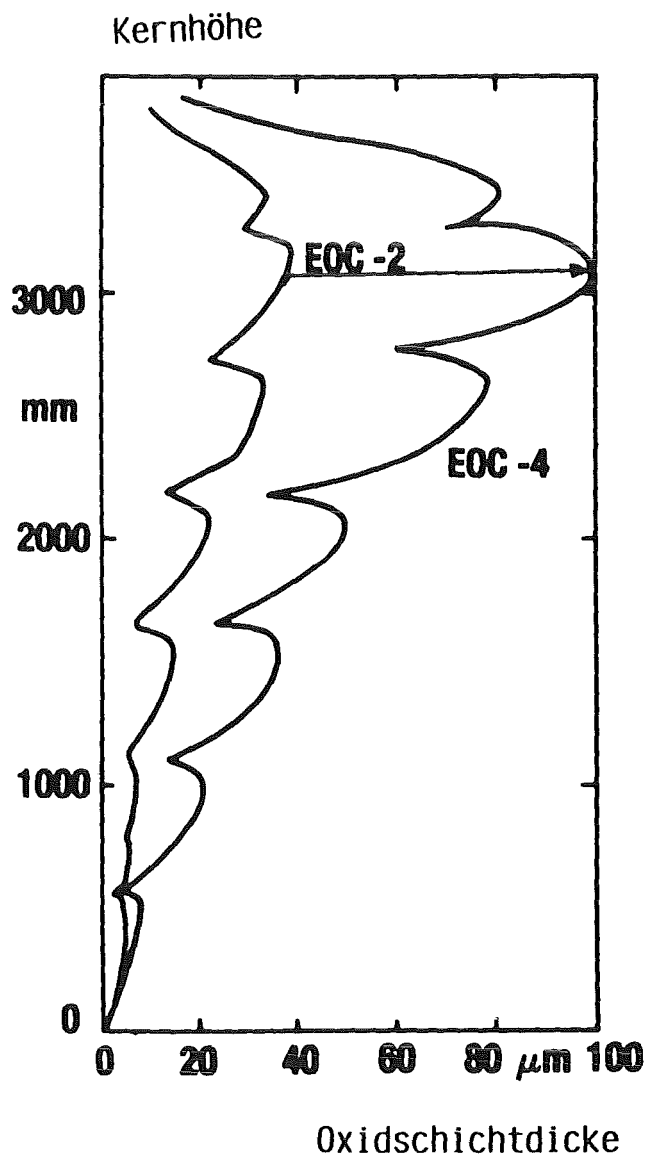


Abb. 7: Axiales Profil der Oxidschichtdicke von DWR-BS

SIEMENS

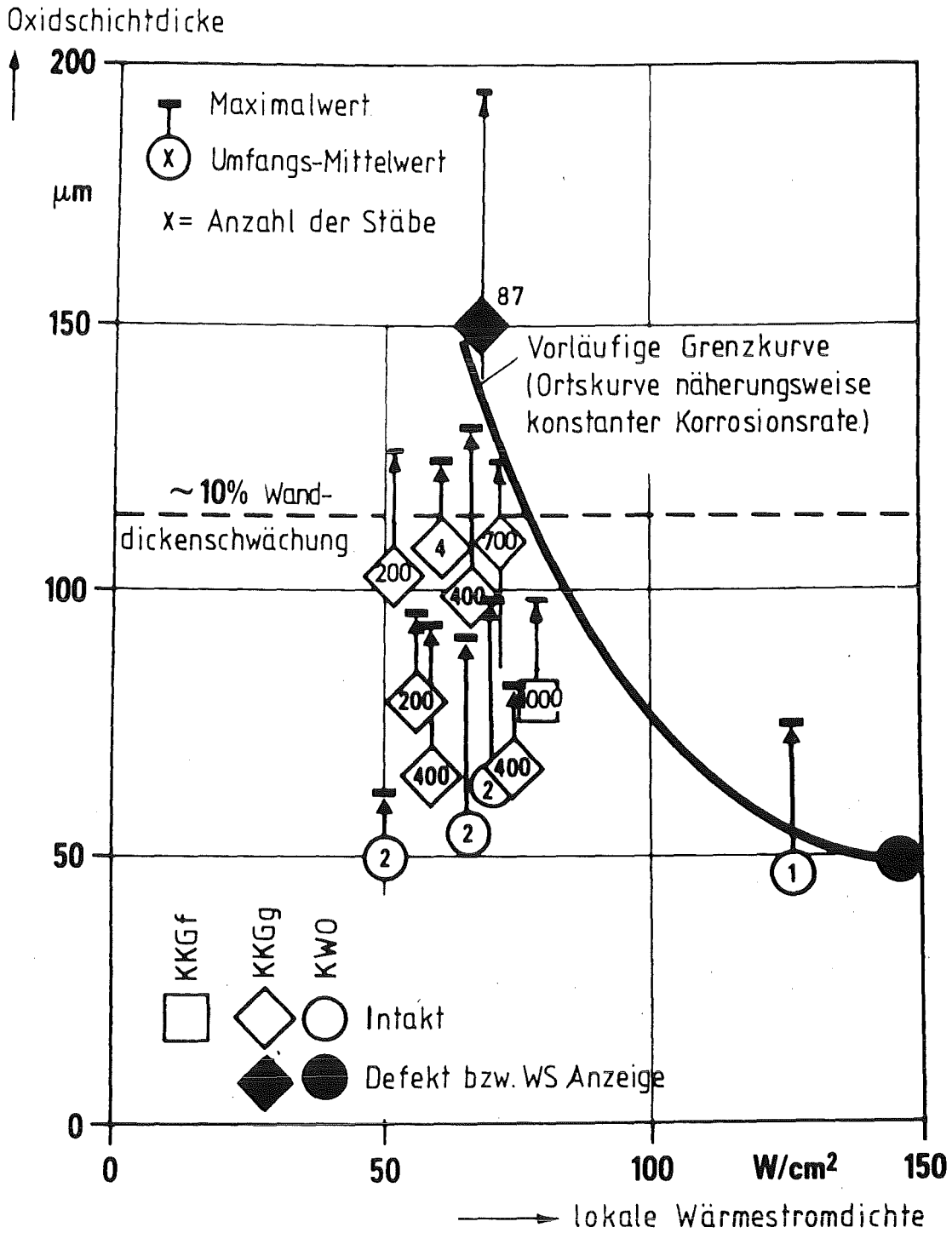
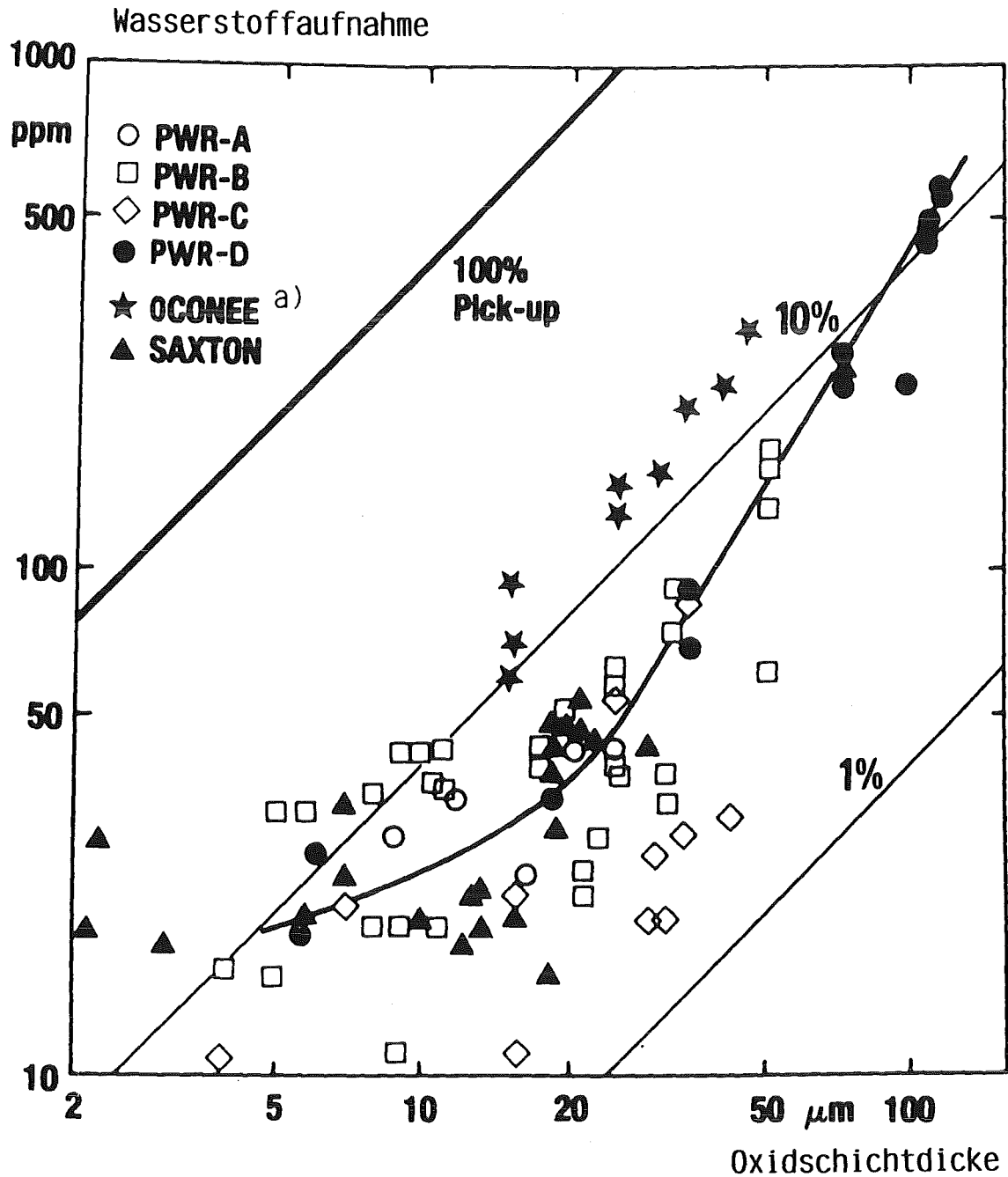


Abb. 8: Erfahrungsstand mit hohen Oxidschichtdicken im DWR

SIEMENS



a) Nicht korrigiert für anfänglichen H-Gehalt

Abb. 9: Wasserstoffaufnahme von Zircaloy-4 Hüllrohren in DWR

Chemische Zusammensetzung								
Legierungselemente					Verunreinigungen			
Sn	Fe	Cr	Fe+Cr	O	C	Si	P	N
1.2-1.45%	ASTM			1000-1500 ppm	<120	50-120	<30	<50
Ingot								
Schrottrückführung			Umschmelzen			Warmumformung		
nach Vereinbarung			3 X			nach Vereinbarung		
Abschrecken aus dem B-Bereich (Wasser)								
Billet	Erwärmung	B-Temp.	Haltezeit	Transportzeit				
gebohrt	induktiv	1050-1200 °C	2-3 min	<15 sec				
Preßling								
Homogene Struktur nach Strangpressen								
Rohrfertigung								
HCW; $\sum A_1 = 7 \times 10^{-10} \dots 40 \times 10^{-10} \text{ h (Q/R=40,000 K)}$								
Brennstab-Fertigung								
kontrolliertes Elektropolieren								

Abb. 10: Definition von Prime Candidate Alloy (PCA) - Zircaloy-4 für verbesserte gleichförmige Korrosion im DWR

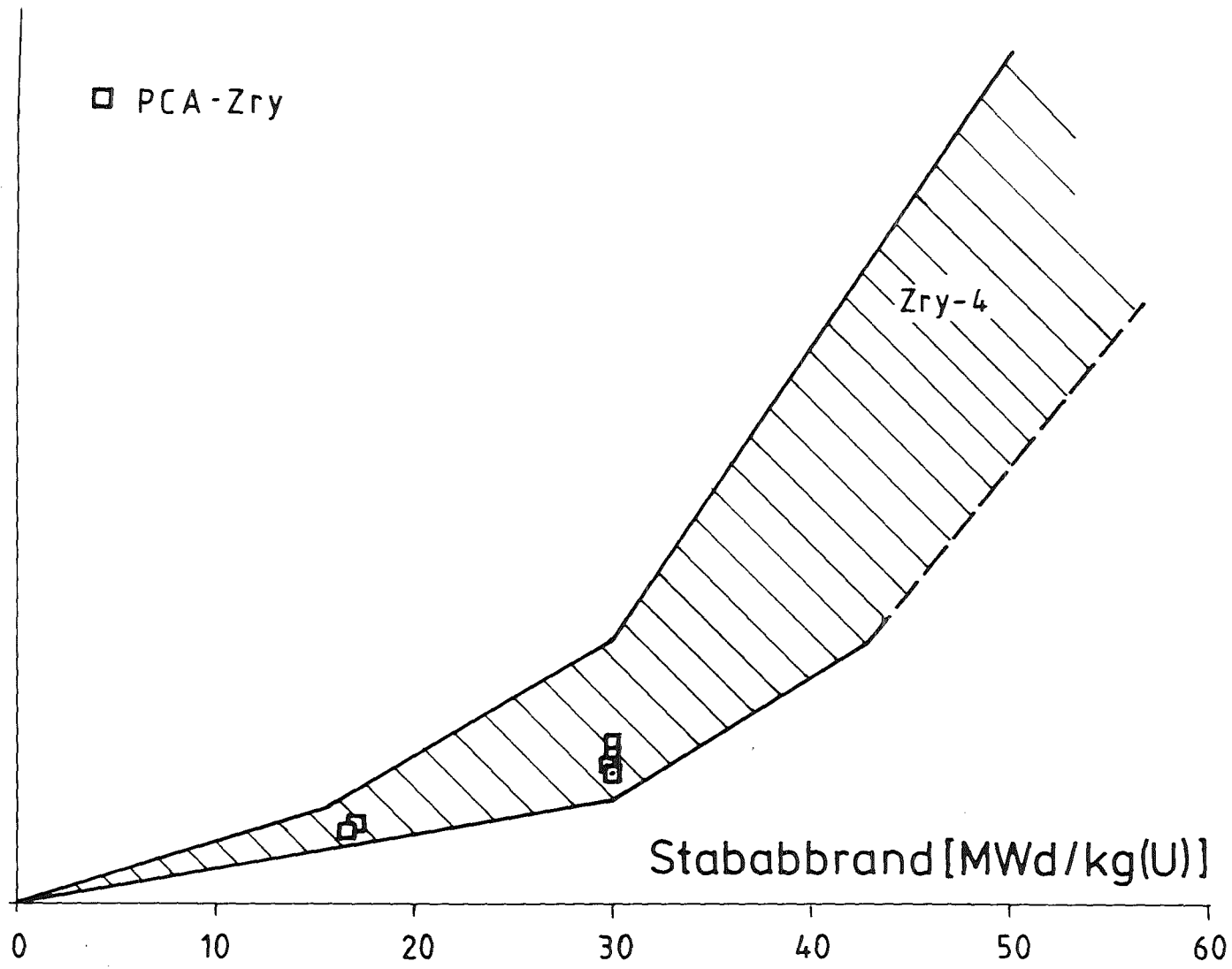


Abb. 11: Korrosionsverhalten von Brennstäben mit PCA-Hüllrohren

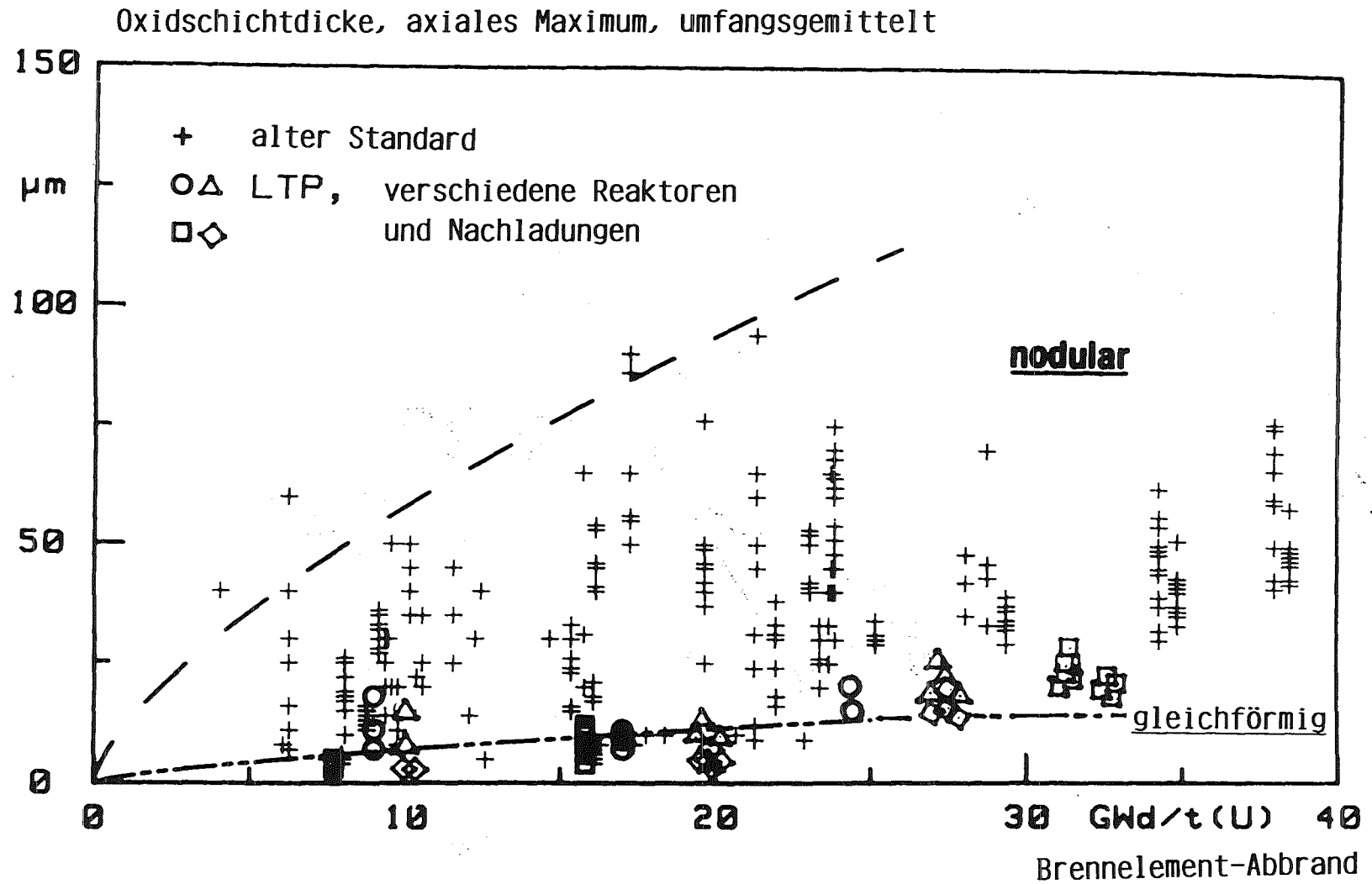


Abb. 12: Korrosion von SWR-Brennstäben

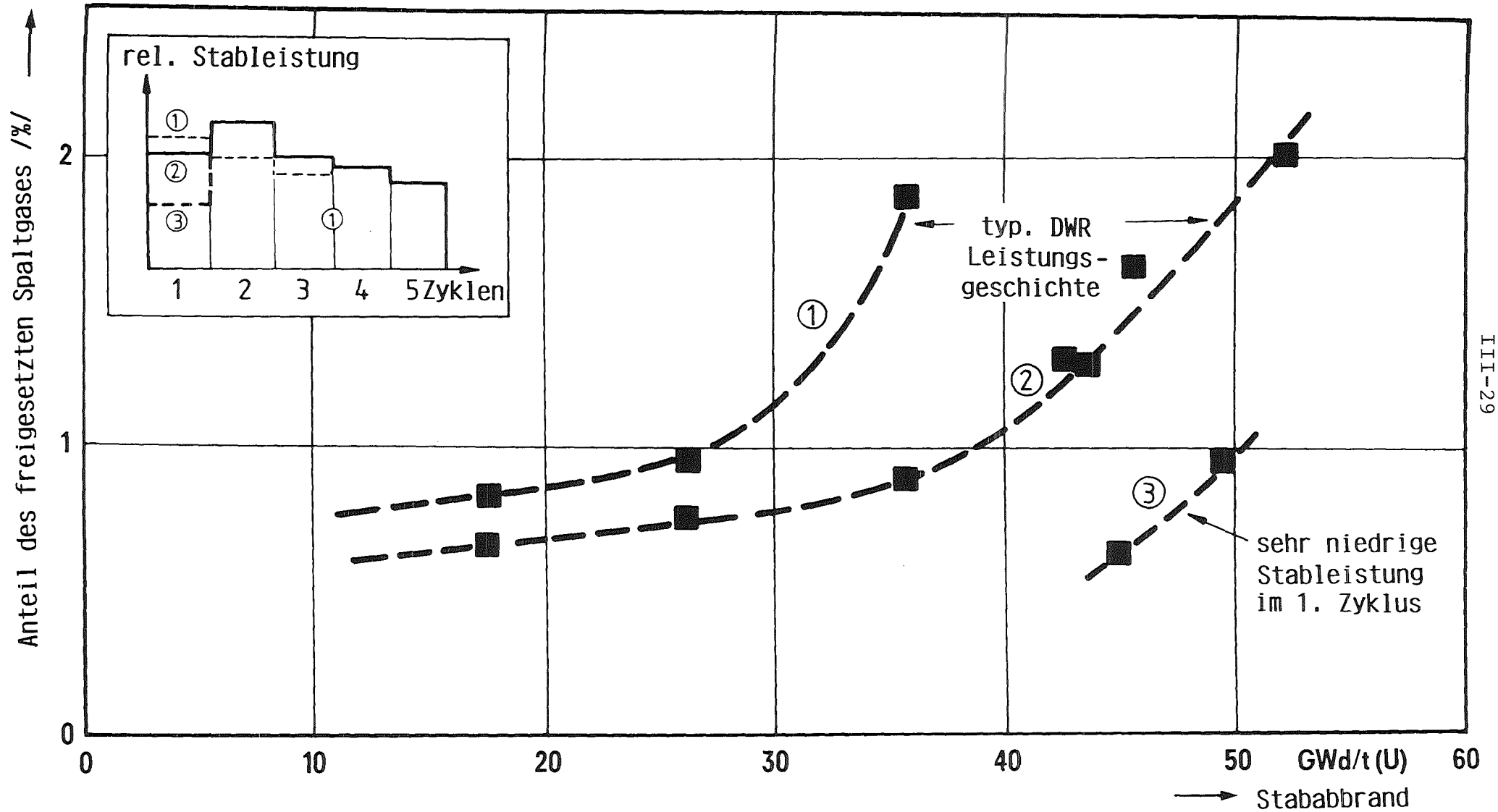
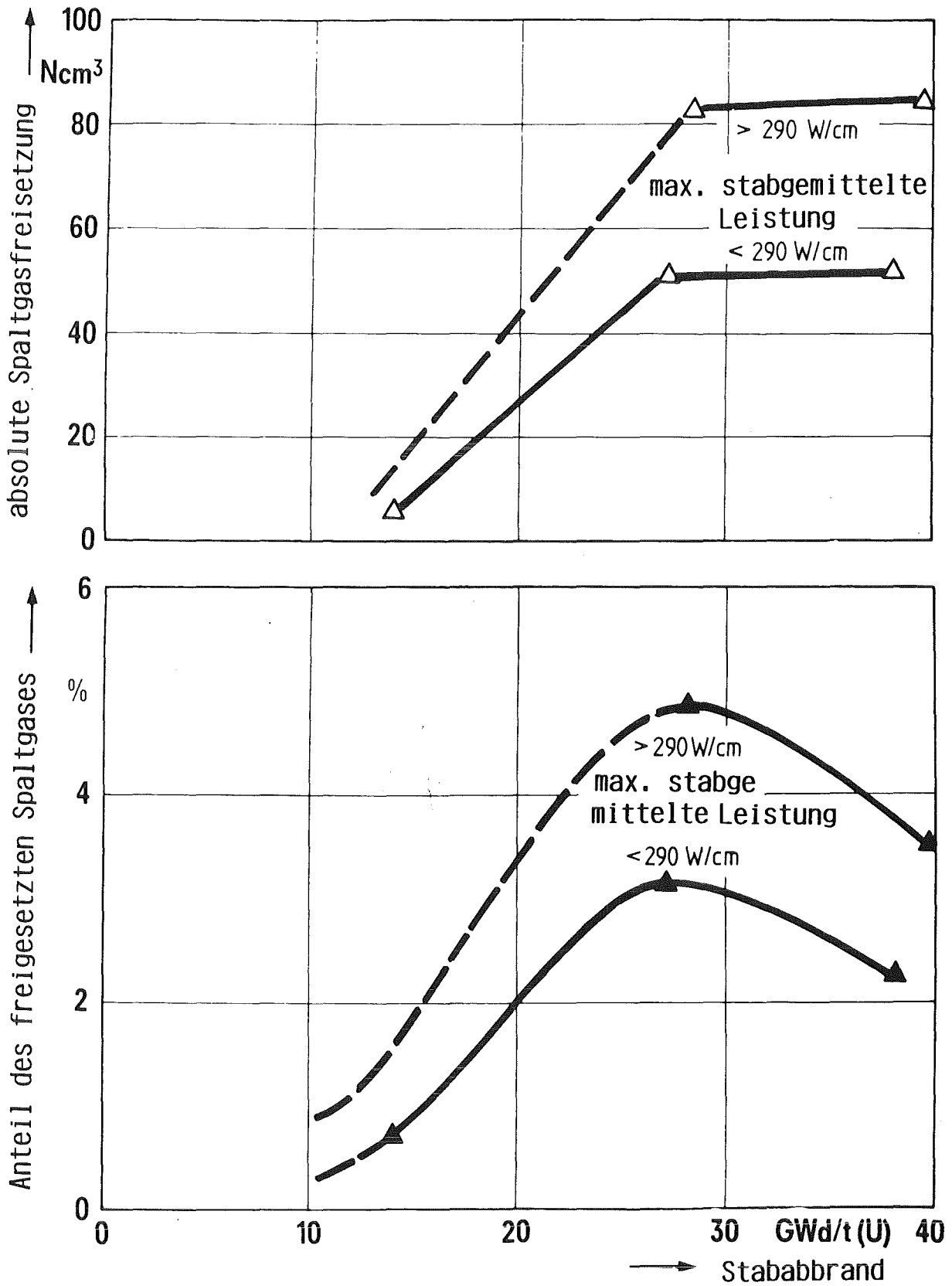


Abb. 13: Spaltgasfreisetzung von Standard DWR-Brennstäben als Funktion des Stababbrandes



Anteil des freigesetzten Spaltgases von Standard DWR-Brennstäben als Funktion des Abbrandes

Abb. 14

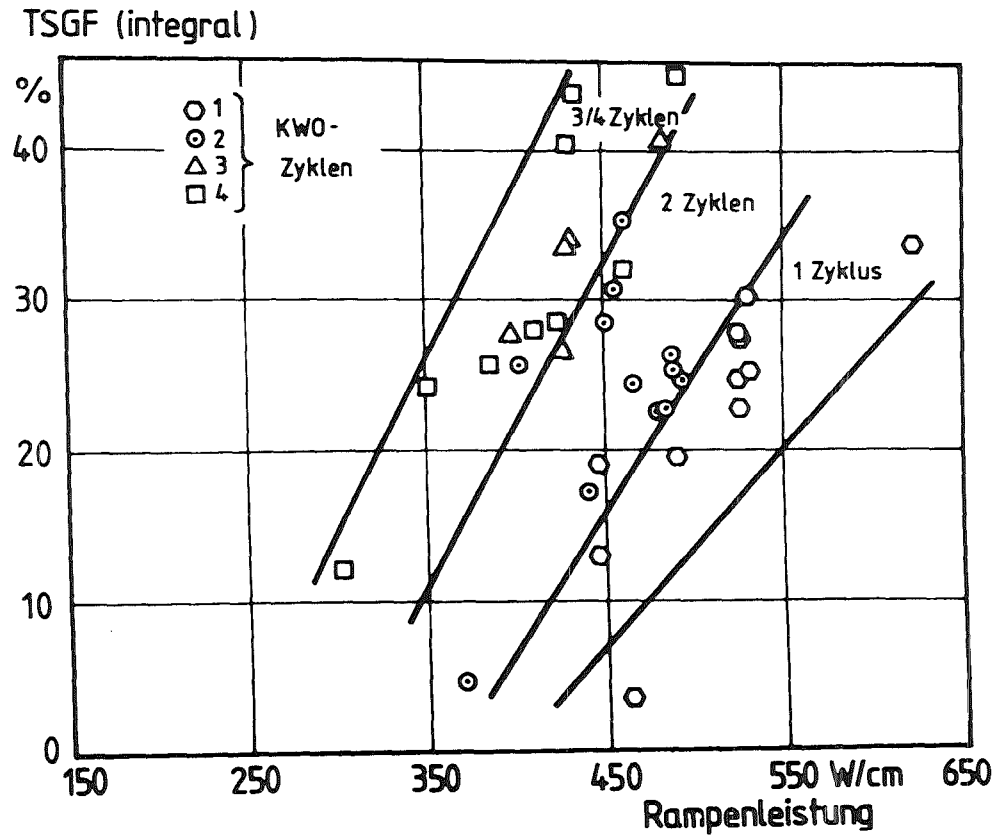


Abb. 15: Integrale transiente Spaltgasfreisetzung (TSGF)

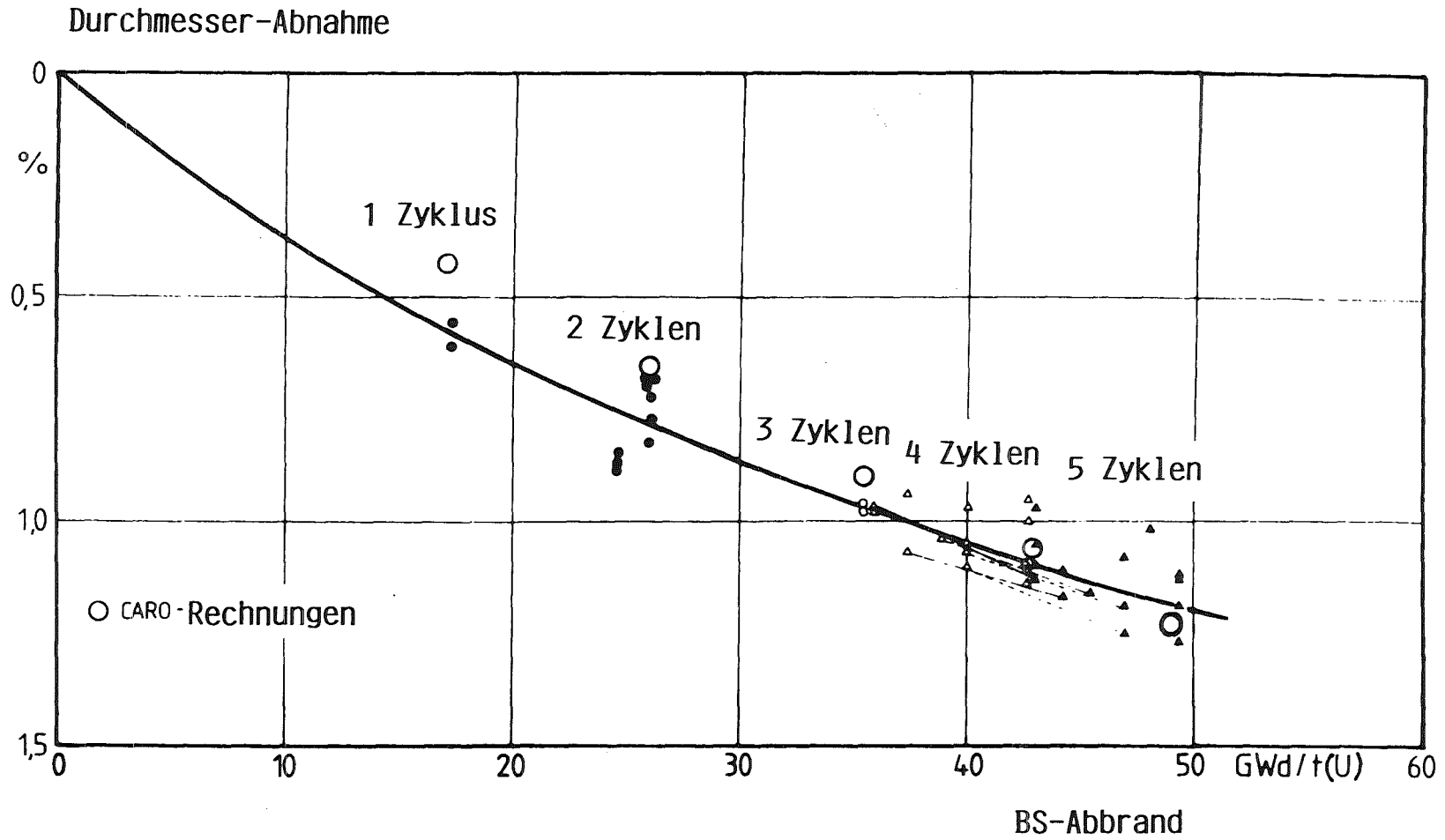


Abb. 16: Berechnete und gemessene Durchmesserabnahme von DWR-BS in Abhängigkeit vom Abbrand

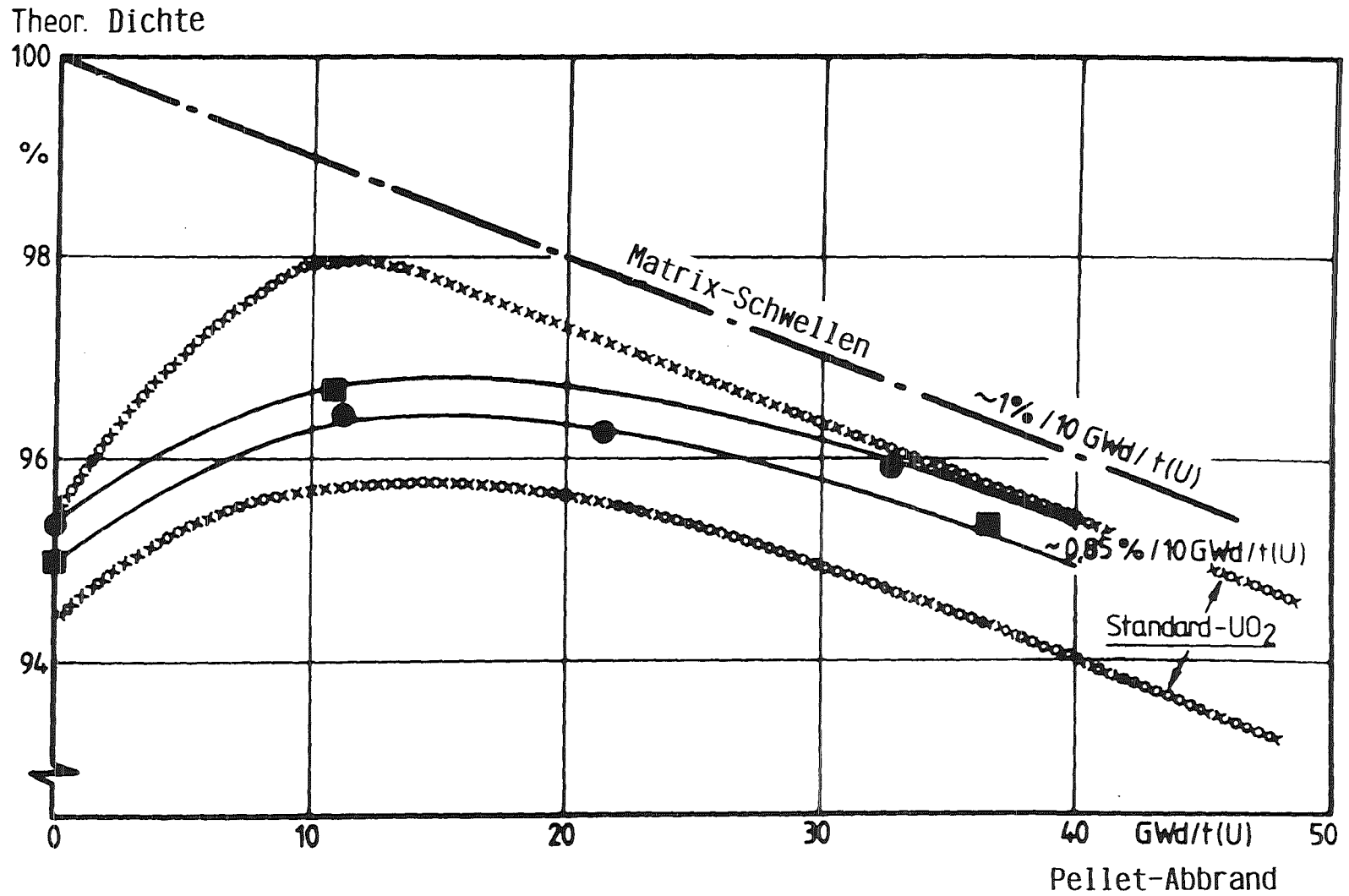
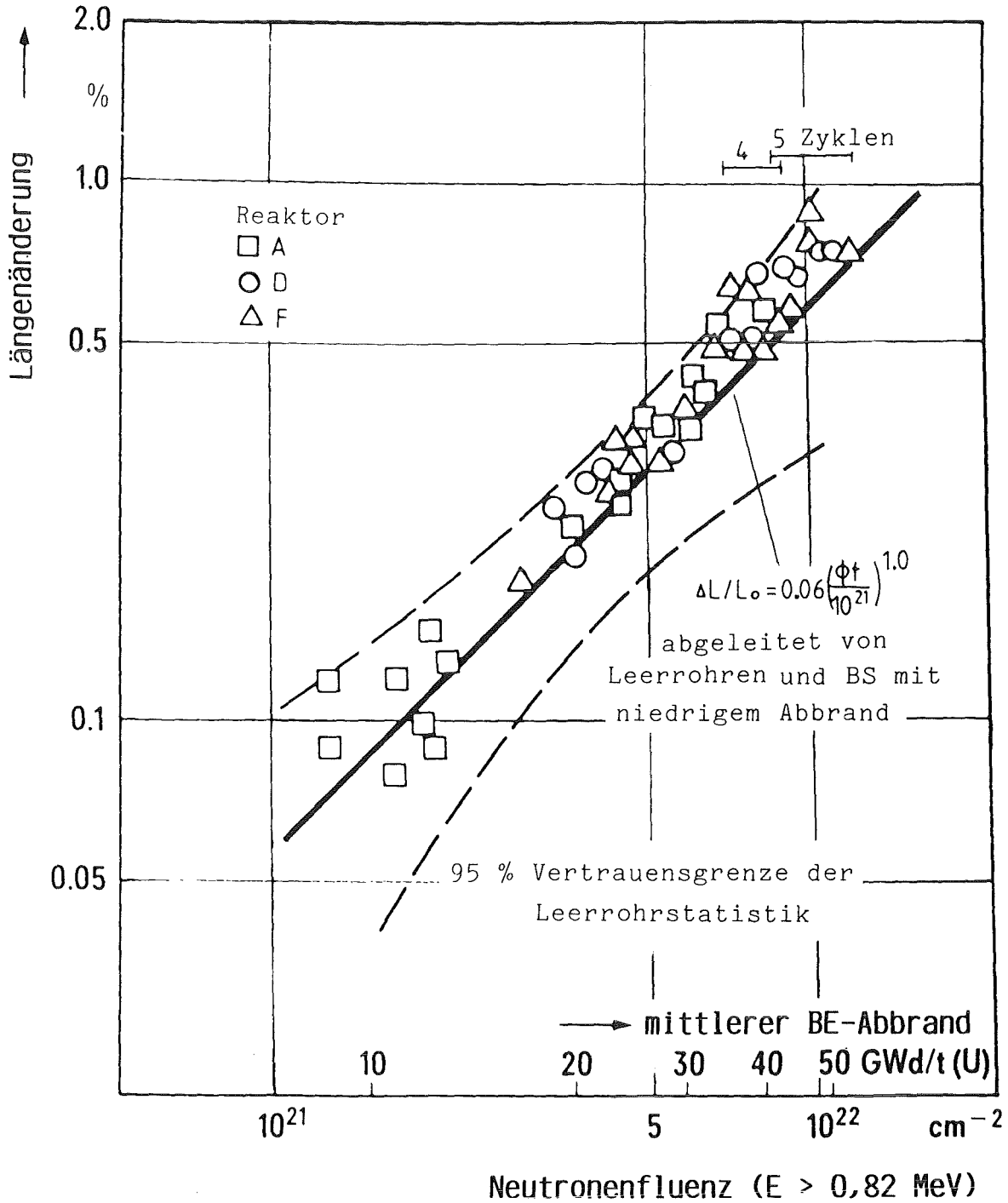


Abb. 17: Nachverdichten und Schwellen von UO₂-Brennstoff

SIEMENS



Längenänderung von DWR-Brennstäben (Zry-4 Hüllrohre, spannungsfrei)

Abb. 18

**BETRIEBSERFAHRUNGEN DER WAK BEI DER WIEDERAUFARBEITUNG
VON HOCHABGEBRANNTEN LWR- UND MOX-BRENNELEMENTEN**

Dr. H.-O. Willax, Dr. M. Weishaupt, Dr. J. Schegk

November 1988


Die WAK wurde in den Jahren 1967 bis 1970 errichtet und ist im September 1971 in Betrieb gegangen.

Aufgabe dieser Versuchsanlage ist eine dreifache (Zitat aus dem damaligen Sicherheitsbericht der WAK):

- Gewinnung von Betriebserfahrungen für Planung, Bau und Betrieb künftiger Entsorgungseinrichtungen in der Bundesrepublik
- Erprobung neu entwickelter Verfahren und Komponenten unter realen Betriebsbedingungen und
- Personalausbildung zur Vermittlung der erforderlichen Fachkunde für Betriebspersonal künftiger Entsorgungseinrichtungen.

Diesen Aufgaben ist die WAK während ihres nun 17jährigen Betriebes erfolgreich nachgekommen, dokumentiert u.a. durch zahlreiche Vorträge, Veröffentlichungen und Berichte. In dieser Zeit (Bild 1) wurden knapp 200 t Uran mit ca. 1000 kg Plutonium aus 7 Kernkraftwerken sowie einem Forschungsreaktor und einem Schiffsreaktor aufgearbeitet.

Bild 1

BE-Typ	Kernkraftwerk	Durchsatz		Abbrand der Brennelemente GWd/tU		Kühlzeit in Jahren		
		t Uran	kg Plutonium	Durchschnitt	Maximum	Durchschnitt	Minimum	
KKS	Kernkraftwerk Stade	15,8	142,4	33,0	34,0	2,7	2,25	
GKN	Kernkraftwerk Neckarwestheim	14,97	140,3	33,1	40,3	3,8	2,55	
KWO	Kernkraftwerk Obrigheim	40,49	333,76	27,8	39,1	4,1	2,4	
KRB	Kernkraftwerk Gundremmingen	11,05	68,04	17,6	19,9	5,8	5,5	
VAK	Versuchsatomkraftwerk Kahl	5,74	29,45	16,5	19,0	4,2	0,7	
HDR	Heißdampfreaktor	6,91	1,49	0,4	0,43	3,78	—	
MZFR	Mehrzweckforschungsreaktor	82,87	320,7	8,7	17,7	3,0	0,4	
FR-2	Forschungsreaktor 2, Karlsruhe	13,7	45,5	12,3	17,2	4,5	0,69	
„Otto Hahn“	Schiffsreaktor	1,93	10,4	21,6	29,1	3,7	2,5	
Stäbe, Bündel	verschiedene Reaktoren	0,96	3,98	14,5	30,0	7,9	4,5	
Summe		193,4	1092	17,2	40,3		0,4	
 WAK	Kernbrennstoffdurchsatz der WAK (9/71 - 11/88)						1.1.3-25	

Diese Aufarbeitungskampagnen wurden begleitet von Meß- und Auswertprogrammen. Von großer Bedeutung in diesem Zusammenhang waren insbesondere die umfangreichen Untersuchungen zum Verhalten des Jodes in der Anlage, welche in den letzten beiden Jahren durchgeführt wurden. Die vielfältigen Erkenntnisse dieser Aufarbeitungskampagnen sind in die Planungen für die WA Wackersdorf eingeflossen bzw. werden noch einfließen und werden auch insbesondere für den Betrieb dieser Anlage von großem Wert sein.

Die Erprobung neu entwickelter Verfahren und Komponenten setzt voraus, daß immer wieder in der Anlage technische Änderungen durchgeführt werden. Dies geschieht im Rahmen sogenannter Interventionsphasen, die bisher ca. 40 % der Gesamtbetriebszeit der Anlage ausmachten. Die durchgeführten Interventionsphasen bestanden jeweils aus einer Reihe von Einzelvorhaben, die zuvor detailliert geplant und genehmigungstechnisch abgearbeitet wurden.

Bisher wurden rund 180 Einzelvorhaben (Bild 2) realisiert, die sich folgenden Kategorien bzw. auslösenden Ereignissen zuordnen lassen:


Kat. 1: Innovationen,
Entwicklungsvorhaben mit 64 Vorhaben

Kat. 2: Sicherheitstechnische Nachrüstungen,
Behördenforderungen mit 39 Vorhaben

Kat. 3: Instandsetzungen,
Komponentenaustausch mit 79 Vorhaben

Bild 2

Anlagenbereich	Kategorie 1 Innovationen, Entwicklungsvorhaben	Kategorie 2 Sicherheitstechnische Nachrüstung, Behördenforderung	Kategorie 3 Instandsetzung Komponenten- austausch	Summe
Brennelement- Behandlung	18	7	17	42
Prozeß	18	9	38	65
Strahlenschutz	4	8	4	16
Analytik	17	7	6	30
Energie- und Medienversorgung	7	8	14	29
Summe	64	39	79	182



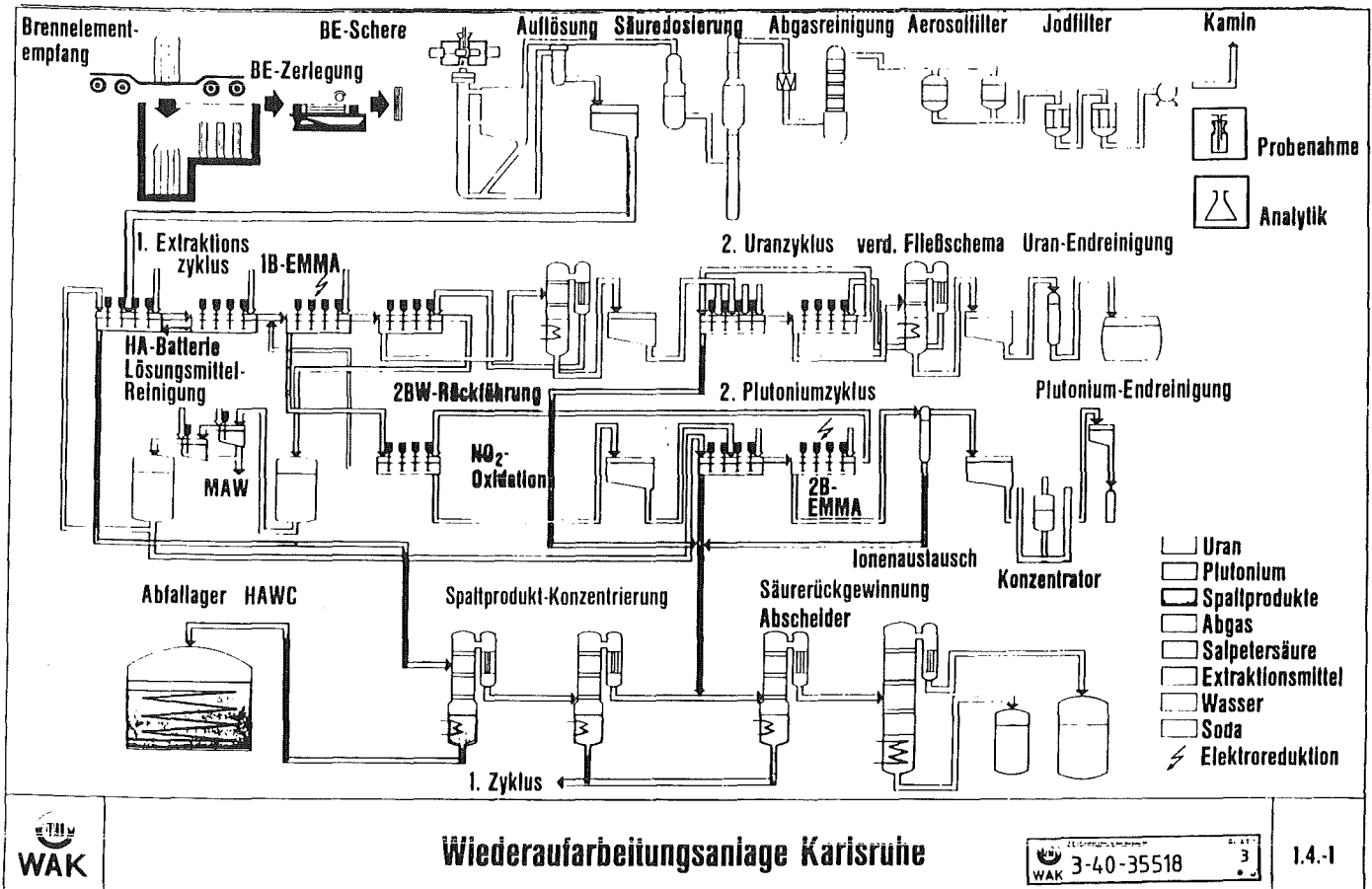
WAK

Einzelvorhaben in der WAK (9/71 – 3/88)

1.1.3-21

In Bild 3 sehen Sie in einem vereinfachten Fließschema der WAK, welche Komponenten im eigentlichen Prozeß während ihrer Betriebszeit gewechselt oder geändert worden sind, wobei nur Vorhaben mit Innovations-Charakter aufgeführt sind. Diese sind in der Darstellung durch Fettdruck hervorgehoben.

Bild 3



Darüber hinaus sind noch einige weitere, wichtige innovative Vorhaben beispielhaft zu nennen, die entweder in der Zwischenzeit realisiert wurden, oder bei denen mit der Ausführung begonnen wurde:

- Einbau eines verbesserten Probennehmers MR3 im Hochaktivteil
- Optimierung der Auflöser- und Behälterabgasreinigungsstrecken
- Fernbediente Demontage der Einrichtungen in einer Abgaszelle

Betrachtet man die gesamte zurückliegende Betriebszeit der WAK, so war für den Erfahrungsgewinn die Aufarbeitung der Brennelemente aus Leichtwasserreaktoren mit Durchschnittsabbränden von über 30 GWd/t U von besonderer Bedeutung. Hierfür war die ursprüngliche Betriebsgenehmigung vom 1.9.1971 mit einem maximal zulässigen Abbrand von 12 GWd/t U und einer Anreicherung vor Bestrahlung bis maximal 1,5 % U-235 nicht ausreichend; es wurden deshalb im Laufe der Zeit verschiedene Anträge nach § 7 Atomgesetz gestellt, um die Genehmigung für die Aufarbeitung hochabgebrannter Brennelemente zu erreichen.

Diese Entwicklung der Rahmenbedingungen zur Wiederaufarbeitung von bestrahlten Kernbrennstoffen in der WAK ist in Bild 4 dargestellt.

Bild 4

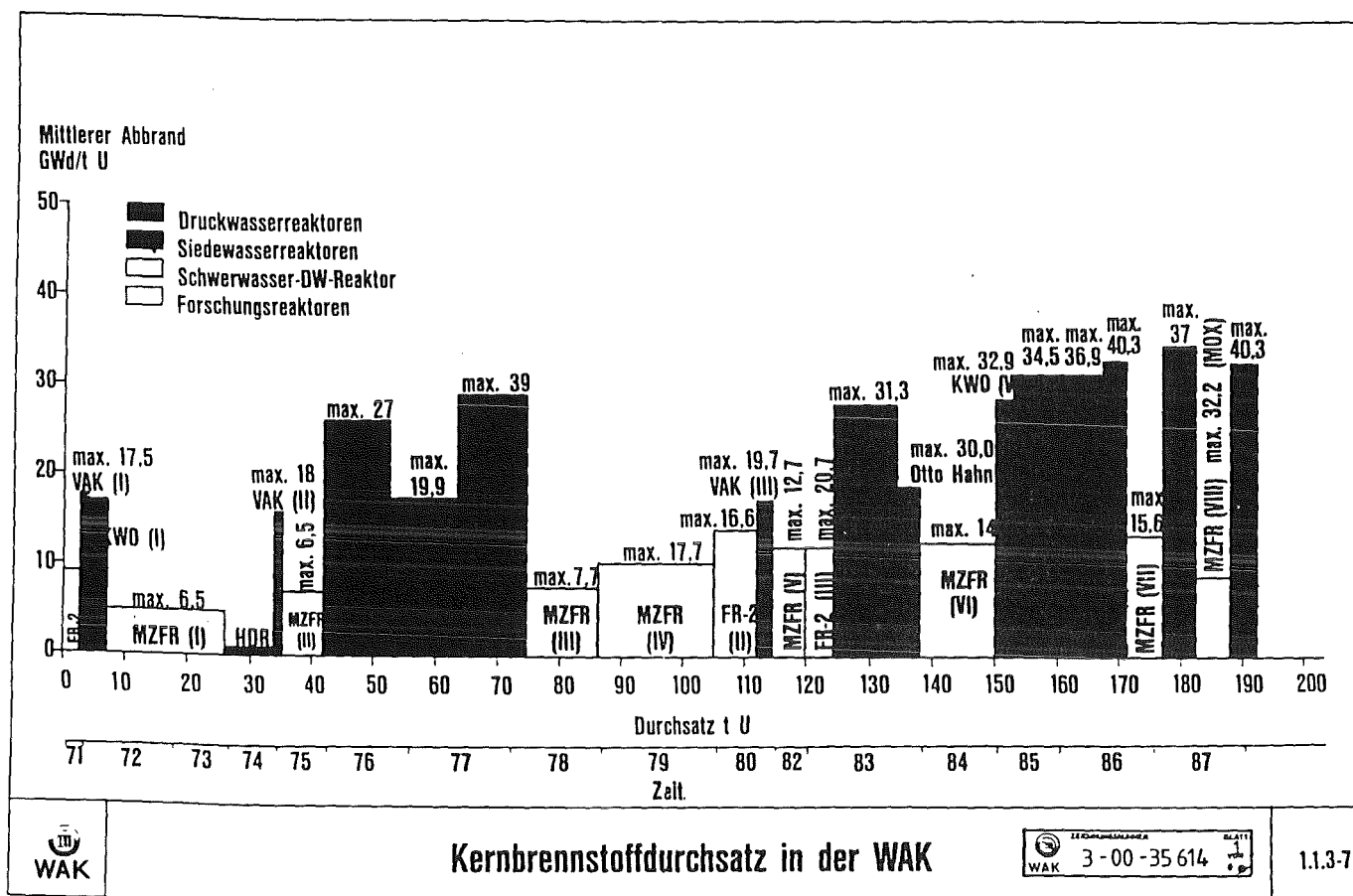
	Betriebsgenehmigungen für die Wiederaufarbeitung			
	1.9.1971	20.12.1971	17.3.1983	28.3.1985
BE-Typen	FR-2 MZFR	FR-2 MZFR VAK KWO	FR-2 MZFR VAK KWO	FR-2 MZFR VAK KWO GKN KKS
U-235 Anreicherung vor Bestrahlung	1,5%	3%	3,1%	3,3%
Abbrand	12 GWd/tU	20 GWd/tU	31,5 GWd/tU	≤45 GWd/tU
Mindestkühlzeit	150 d	250 d	250 d	600 d für ≤40 GWd/tU 650 d für ≤45 GWd/tU
 WAK	Entwicklung der Rahmenbedingungen zur Wiederaufarbeitung von bestrahlten Kernbrennstoffen in der WAK (1971 – 1988)			1.1.3-39

Für drei ausgewählte Betriebsgenehmigungen nach dem 1.9.1971 sind die wesentlichen Rahmenbedingungen wiedergegeben. Diese Rahmenbedingungen, wie U-235-Anreicherung vor Bestrahlung, Abbrand und Mindestkühlzeit, stellen wichtige Schritte in Richtung Aufarbeitung hochabgebrannter Brennstoffe dar. Zwischenschritte sowie Sondergenehmigungen für einzelne Brennelemente oder Kleinmengen mit zum Teil wesentlich höheren Anfangsanreicherungen oder Abbränden sind hier nicht aufgeführt. Heute ist die WAK genehmigungsseitig in der Lage, Brennelemente bis zu einem Abbrand von 45 GWd/t U und einer Anfangsanreicherung vor Einsatz im Kernkraftwerk von 3,3 % U-235 aufzuarbeiten. Für andere Brennstoffe, z.B. MOX, sind gesonderte Genehmigungen weiterhin erforderlich.

Inwieweit waren technische Änderungen in der Anlage erforderlich, um die Aufarbeitung von Brennstoff mit bis zu 45 GWd/t U durchführen zu können? Hierzu mußten einerseits die Abschirmungen in der Anlage und andererseits die Kritikalitätssicherheit betrachtet werden. Technische Änderungen waren aufgrund der Nachrechnungen zu beiden Problemstellungen nicht erforderlich. Um die notwendige Abschirmwirkung zu gewährleisten, wurde die einzuhaltende Mindestkühlzeit auf 600 Tage für Abbrände bis zu 40 GWd/t U bzw. auf 650 Tage für Abbrände bis zu 45 GWd/t U vor Wiederaufarbeitung festgesetzt. Die Nachrechnungen zur Kritikalitätssicherheit der Anlage unter heutigen Randbedingungen ergaben zusätzlich, daß keine administrativen Maßnahmen erforderlich waren.

Die Entwicklung hin zur Wiederaufarbeitung von Brennelementen mit höheren Abbränden zeigt Bild 5.

Bild 5



Jede Aufarbeitungskampagne ist als rechteckige Fläche dargestellt, wobei die Höhe den mittleren Abbrand und die Breite einmal Menge, andererseits die notwendige Zeit für die jeweilige Kampagne wiedergibt. Zusätzlich angegeben ist für jede Kampagne der maximale Abbrand, dargestellt über jeder Rechtecksfläche.

Man sieht, daß die Aufarbeitung von Brennstoff mit Durchschnittsabbränden zwischen 30 und 40 GWd/t U ab Anfang 1985 begonnen wurde; es handelte sich hierbei um Brennstoff aus den Kernkraftwerken Stade und Neckarwestheim. Insgesamt wurden bisher ca. 35 t Brennstoff mit Durchschnittsabbränden über 30 GWd/t U aufgearbeitet. Vom Erfahrungsgewinn her bedeutsam waren natürlich auch die Kampagnen mit Durchschnittsabbränden bis zu 30 GWd/t U, die teilweise schon in der zweiten Hälfte der 70er Jahre durchgeführt wurden. Auch bei den zukünftig geplanten Wiederaufarbeitungskampagnen wird es sich um Brennstoff mit höheren Abbränden, insbesondere aus dem Kernkraftwerk Stade, handeln.

Um die Unterschiede bei der Wiederaufarbeitung von niedrig- bzw. hochabgebrannten Brennelementen aufzuzeigen, sind 3 Aufarbeitungskampagnen ausgewählt worden, die in der WAK 1987 bzw. im Frühjahr 1988 gefahren wurden.

Im einzelnen handelt es sich um die 8. MZFR-Kampagne als Beispiel für niedrig abgebrannte Brennelemente und um die 3. GKN- und 2. KKS-Kampagne, in denen nach unserer Definition hochabgebrannte Brennelemente aufgearbeitet wurden (Bild 6).

Bild 6

	8. MZFR Kampagne	3. GKN Kampagne	2. KKS Kampagne
Kampagnendauer, [d]	59	80	114
Anzahl Brennelemente	99	13	18
Uran, [kg]	5.420	4.433	6.145
Plutonium, [kg]	17	43	59
Mittlerer Abbrand, [GWd/t]	7,3	32,7	34,3
Max. Abbrand, [GWd/t]	14,7	40,3	37,0
Mittlere Kühlzeit, [d]	1.144	1.752	1.095

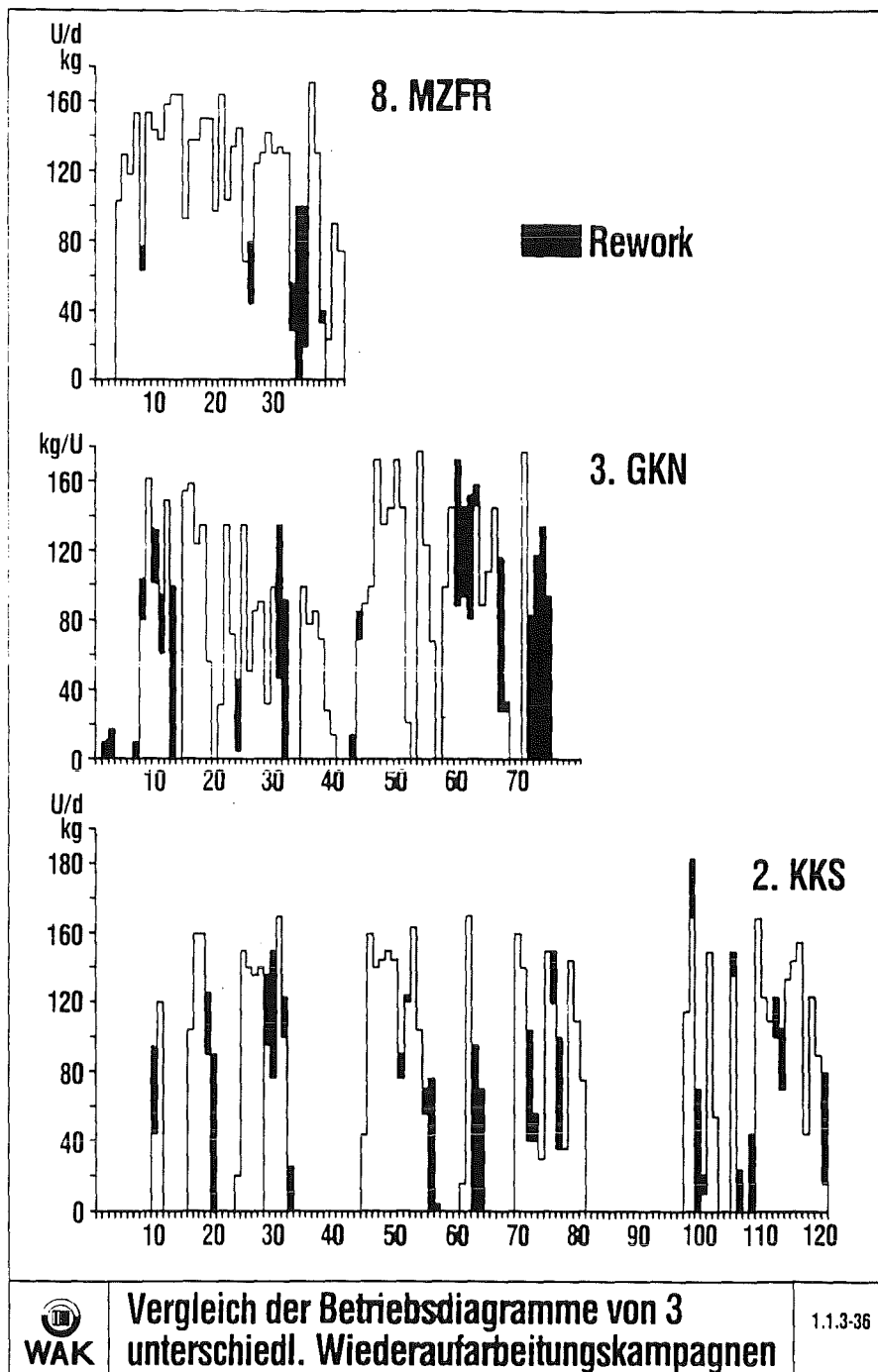
Für die 8. MZFR-Kampagne standen 99 Brennelemente bereit, die kurz vor der Abschaltung des MZFR-Reaktors im Mai/Juni 1984 entladen worden waren. Die nach dem KORIGEN-Rechenprogramm ermittelten Shipper-Werte betragen für alle Brennelemente zusammen 5 420 kg Uran und 17 kg Plutonium. Der mittlere Abbrand für die Brennelemente betrug 7,3 GWd/t Uran. Die relativ große Differenz zum maximalen Abbrand von 14,7 GWd/t Uran resultiert daraus, daß der Reaktor kurz vor der Abschaltung entladen wurde und somit nicht alle Brennelemente die gleiche Standzeit im Reaktor gehabt haben. Im Gegensatz dazu war die Kühlzeit der Brennelemente ausgesprochen homogen.

Bei der 3. GKN-Kampagne handelt es sich um 13 Brennelemente aus dem Kernkraftwerk Neckarwestheim. Die zugehörigen Shipper-Werte betragen für Uran 4 433 kg und für Plutonium 43 kg. Da die in dieser Kampagne aufzuarbeitenden Brennelemente in ihrer Anfangsanreicherung zwischen 1,9 % und 3,3 % Uran-235 variierten, ergibt sich für den mittleren Abbrand ein Wert von 32,7 bzw. ein maximaler Wert von 40,3 GWd/t Uran. Die mittlere Kühlzeit der Brennelemente dieser Kampagne betrug entsprechend des höheren Abbrandes 1 752 Tage.

Um die Unterschiede bei der Wiederaufarbeitung von niedrig- bzw. hochabgebrannten Brennelementen noch deutlicher zeigen zu können, ist eine weitere Wiederaufarbeitungskampagne aufgeführt. Für die 2. KKS-Kampagne standen 18 Brennelemente aus dem Kernkraftwerk Stade zur Verfügung. Diese Brennelemente enthielten, wiederum mit dem KORIGEN-Programm errechnet, 6 145 kg Uran und 59 kg Plutonium. Der mittlere Abbrand der Brennelemente war mit 34,3 GWd/t Uran nochmals um etwas höher als bei GKN. Die Anfangsanreicherung betrug diesmal für alle 18 Brennelemente 3,3 % Uran-235 und die mittlere Kühlzeit der Brennelemente 1 095 Tage.

Die Unterschiede in den Ausgangsmaterialien für die 3 aufgeführten Wiederaufarbeitungskampagnen zeigen sich zunächst im zeitlichen Verlauf der Kampagnen. Für einen besseren Vergleich der Aufarbeitungskampagnen ist ihr zeitlicher Verlauf in einem gemeinsamen Bild dargestellt (Bild 7).

Bild 7



Für alle 3 Wiederaufarbeitungskampagnen ist auf der Ordinate der Uran-Durchsatz pro Tag aufgetragen. Auf der Abszisse sind die Betriebstage des 1. Extraktionszyklus der einzelnen Kampagnen wiedergegeben. In allen 3 Betriebsdiagrammen ist die Aufarbeitung nicht spezifikationsgerechter, sogenannter Rework-Chargen gekennzeichnet.

Mit den niedrig abgebrannten Brennelementen der 8. MZFR-Kampagne konnte eine Zeitverfügbarkeit von ca. 95 % erreicht werden. Unter Zeitverfügbarkeit wird die Summe aus Aufarbeitungs- und Reworkzeit verstanden, bezogen auf die Betriebszeit. Während der 59 Kampagnentage zeigt das Betriebsdiagramm ein recht geschlossenes Bild, in dem auch die Anzahl der Rework-Chargen sehr niedrig liegt.

Die Wiederaufarbeitung der hochabgebrannten Brennelemente in der 3. GKN-Kampagne dauerte 80 Tage. Bedingt durch den höheren Abbrand der Brennelemente sank die Zeitverfügbarkeit auf unter 70 %. So ist Anzahl der Rework-Chargen deutlich angestiegen, und man erkennt einzelne längere, durch Störungen verursachte Betriebsstillstände.

Noch gravierender werden die Unterschiede im Betriebsdiagramm bei einem Vergleich zwischen der 8. MZFR- und der 2. KKS-Kampagne. Der nochmalige Anstieg im mittleren Abbrand der Brennelemente ergab nur noch eine Verfügbarkeit von ca. 50 %. Die Betriebsstillstände werden häufiger und dauern zum Teil mehrere Tage hintereinander. Auch hier ist eine deutliche Zunahme der Anzahl der erforderlichen Rework-Chargen erkennbar.


Da alle 3 hier miteinander verglichenen Wiederaufarbeitungskampagnen von den gleichen Mitarbeitern ausgeführt wurden, ist eine unterschiedlich personelle Betriebsführung für die Entstehung der Extraktions-Betriebsdiagramme nicht verantwortlich.

Nachfolgend werden nun die wesentlichen Schritte der Wiederaufarbeitung separat miteinander verglichen.

Zunächst zum Brennstoffaufschluß, bestehend aus Zerlegen und Schneiden der Brennelemente, Auflöserprozeß und Filtrierung der Brennstofflösung. Eine Gegenüberstellung der erzielten Daten ist in Bild 8 wiedergegeben.

Bild 8

	8. MZFR Kampagne	3. GKN Kampagne	2. KKS Kampagne
BE-Zerlegung	problemlos	problemlos	problemlos
Auflösemethode	Säuredosierung	Säuredosierung	Säuredosierung
Hülsen	blank	blank	blank
Filtration Brennstofflösung			
– filtrierte Brennstofflösung	klar, gelb	klar, dunkel	klar, dunkel
– Schwebstoffe	keine sichtbaren	geringe Mengen	geringe Mengen
– Nettogewicht Filterrückstand	4,3 kg/tU	5,3 kg/tU	7 kg/tU



Vergleich Brennstoffaufschluß für 3 Wiederaufarbeitungskampagnen

1.3.5-11

In der MZFR-Kampagne waren 3 Brennelemente für eine Auflösercharge zu zerlegen und die freigelegten 111 Brennstäbe in den Auflöserkorb zu schneiden. Beim Zerschneiden gab es keine Besonderheiten. Alle Chargen wurden nach der Methode der Säuredosierung gelöst. Bei dieser Methode werden nach dem Schneiden der Brennstäbe 200 l 3molare HNO_3 zugegeben. Die Lösung wird auf 80°C erhitzt, bevor unter weiterem Erhitzen im Verlauf von ca. 4 Stunden weitere 2.200 Mole HNO_3 der Lösung zugegeben werden. Die Brennstofflösung wurde über ein Polypropylen-Sackfilter abgezogen, das nach jeder Charge gewechselt wurde. Die Filtersäcke enthielten im Durchschnitt 4,3 kg Rückstand/t Uran, gemessen mit Hilfe einer Federwaage. Die filtrierte Lösungen waren gelb und klar und enthielten keine sichtbaren Schwebstoffanteile.

Handhabung und Zerlegen der 13 GKN-Brennelemente erfolgte nach der gleichen Technik. Das Zerlegen der Brennelemente bereitete ebenfalls keine Probleme. Die jeweils 205 Brennstäbe wurden aus dem Brennelementgitter herausgezogen und in 2 Magazinen mit je 103 bzw. 102 Stäben abgelegt. Nach dem Zerschneiden wurden die Brennstabteile nach der Methode der Säuredosierung gelöst. Die Auflösungen waren jeweils vollständig. Hülsenkorb und ausgelaugte Hülsen waren blank und ohne erkennbare Rückstände. Die Filtration der Brennstofflösungen erfolgte wiederum über ein Polypropylen-Sackfilter und verlief zufriedenstellend. Im Regelfall wurde wiederum pro Charge ein Filter verbraucht, welches nach dem Einsatz gezogen wurde; der Filterrückstand betrug im Durchschnitt 5,3 kg/t Uran. Die filtrierte Brennstofflösungen waren dunkel und klar, es waren nur geringe Mengen fein verteilter Schwebstoffe zu erkennen.


Auch bei der 2. KKS-Kampagne bereitete das Zerlegen der Brennelemente, Schneiden der Brennstäbe und Auflösen des Brennstoffes keine Probleme. Aus jedem Brennelement wurden 2 Auflöserchargen mit 102 bzw. 103 Brennstäben zusammengestellt. Das Auflösen erfolgte ohne Besonderheiten, wiederum nach der Methode der Säuredosierung. Die Auflösungen waren vollständig, Auflöserkorb und Hülsen waren blank. Bei der Filtration der Brennstofflösungen fielen im Durchschnitt 7 kg Rückstand/t Uran an.

Dieser Anstieg im Gewicht des Rückstandes von 4,3 auf 7 kg/t Uran ist ein erster Hinweis auf zu erwartende Betriebsstörungen während der Kampagne. Aus WAK-Erfahrung bedeutet ein höherer Rückstand auch eine größere Menge Feinfeinstoff, der das Filter passiert und dadurch eine erhöhte Anzahl von Betriebsstörungen aufgrund von Verstopfungen in Rohrleitungen und Extraktionsbatterien nach sich zieht.

Der nächste Schritt bei der Wiederaufarbeitung ist das Einspeisen der Brennstofflösung - im chemischen Fließbild als HAF bezeichnet - in den 1. Extraktionszyklus. Eine Gegenüberstellung der durchschnittlichen HAF-Zusammensetzung für die 3 zu vergleichenden Wiederaufarbeitungskampagnen ist in Bild 9 dargestellt.

Bild 9

Mittlere Zusammensetzung der HAF-Chargen		8. MZFR Kampagne	3. GKN Kampagne	2. KKS Kampagne
Uran	g/l	215	214	229
Plutonium	g/l	0,31	1,88	1,85
HNO ₃	mol/l	3,6	3,3	3,5
Beta-Aktivität	GBq/l	850	2600	5100
Zirkon-95	GBq/l	< 1	3	3,9
Niob-95	GBq/l	< 1	< 1	7
Ruthen-106	GBq/l	79	100	430
Caesium-137	GBq/l	140	740	950
Cer-144	GBq/l	148	300	770



Vergleich der HAF-Zusammensetzung für 3 unterschiedliche Aufarbeitungskampagnen

1.4.2-5

Bei ungefähr gleichem Urangehalt pro Liter ergeben sich selbstverständlich große Unterschiede im Plutoniumgehalt aufgrund des verschiedenen Abbrandes zwischen MZFR einerseits und GKN/KKS andererseits. Deutlich auch die Unterschiede in Bezug auf die Beta-Aktivität und die verschiedenen Einzelnuclidaktivitäten, resultierend aus unterschiedlichen Abbränden und Kühlzeiten. Der Einfluß der mittleren Kühlzeit bei etwa gleichen mittleren Abbränden für KKS- und GKN-Brennstoff zeigt sich deutlich. Die KKS-Brennelemente wiesen im Schnitt ca. 1.100, die GKN-Brennelemente ca. 1.750 Tage Kühlzeit auf.

Das Betriebsergebnis der Extraktionen wird am einfachsten dadurch verdeutlicht, indem man für die hier ausgewählten Wiederaufarbeitungskampagnen die Gesamtdekofaktoren für die Extraktionszyklen vergleicht (Bild 10).

Bild 10

Deko-Faktoren						
Element	8. MZFR Kampagne		3. GKN Kampagne		2. KKS Kampagne	
	U	Pu	U	Pu	U	Pu
Zr-95	$>5 \cdot 10^4$	$1,5 \cdot 10^6$	$>1 \cdot 10^6$	$>3 \cdot 10^4$	$2 \cdot 10^6$	$2 \cdot 10^5$
Nb-95	$>1 \cdot 10^5$	$1,5 \cdot 10^5$	$>10^6$	$>3 \cdot 10^4$	$2 \cdot 10^5$	$4 \cdot 10^5$
Ru-106	$6,4 \cdot 10^5$	$2,5 \cdot 10^7$	$1,1 \cdot 10^5$	$>2 \cdot 10^5$	$3,4 \cdot 10^6$	$2,4 \cdot 10^6$
Cs-137	$6 \cdot 10^6$	$4 \cdot 10^8$	$>10^8$	$>10^7$	$9,8 \cdot 10^7$	$5 \cdot 10^7$
Ce-144	$2 \cdot 10^6$	$2 \cdot 10^7$	$>1 \cdot 10^7$	$>8 \cdot 10^5$	$5 \cdot 10^6$	$>1 \cdot 10^6$
Pu	$1,2 \cdot 10^6$	—	$1 \cdot 10^6$	—	$1,8 \cdot 10^6$	—



**Vergleich der in der Extraktion erzielten Deko-Faktoren
für 3 unterschiedliche Aufarbeitungskampagnen**

1.4-5

Die Dekofaktoren sind definiert durch das Konzentrationsverhältnis der betrachteten Nuklide vor der Einspeisung in die Extraktion und nach Abschluß der Endreinigung, jeweils bezogen auf die Mengeneinheit von Uran bzw. von Plutonium.

Betrachtet man die erreichten Dekofaktoren für die Einzelnuclide, bezogen auf Uran, so ist nahezu durchweg ein Anstieg von MZFR über GKN zu KKS aufgrund der steigenden Spaltproduktaktivität festzustellen. Dies kann ganz besonders am Beispiel von Ruthen-106 gezeigt werden. Der Ruthengehalt ist bei MZFR und GKN mit ca. 500 GBq pro kg Uran etwa gleich, bei KKS ist dieser um den Faktor 4 höher.

Die Dekofaktoren, bezogen auf Plutonium, zeigen beim Vergleich GKN und KKS ebenfalls die Abhängigkeit von der ursprünglichen Spaltproduktaktivität. Dies gilt nicht, wenn man diese beiden Brennstoffe mit MZFR vergleicht. Die Dekofaktoren bei MZFR liegen meist höher. Dies resultiert aus den unterschiedlichen Plutonium-Absolutmengen.

Das Ergebnis, was sich aus der Betrachtung der Dekofaktoren ergibt, läßt sich wie folgt formulieren: Höherer Abbrand beinhaltet höhere Spaltproduktaktivität und erfordert damit höhere Dekofaktoren, um die geforderten Endproduktspezifikationen zu erreichen. Dies bedeutet wiederum einen höheren Anteil an Rework-chargen, was sich in den Betriebsdiagrammen auch gezeigt hat.

Ein weiteres Kriterium bei einem Vergleich von Wiederaufarbeitungskampagnen von niedrig- und hochabgebrannten Brennelementen bilden die während der Auflösung entstandenen gasförmigen oder leicht flüchtigen Radionuklide. In der WAK sind Rückhaltevorrichtungen für Aerosole, Jod und Tritium vorhanden. Krypton-85 und Kohlenstoff-14 werden wegen ihrer geringen radiologischen Wirkung im Rahmen des KfK-Abluftplanes ohne Rückhaltung an die Atmosphäre abgegeben. Eine Zusammenstellung der emittierten radioaktiven Stoffe während der 3 ausgewählten Kampagnen ist in Bild 11 wiedergegeben.

Bild 11

Emission		8. MZFR Kampagne	3. GKN Kampagne	2. KKS Kampagne	Zulässig nach Abluftplan/a
Alpha-Aerosole	MBq	0,2	0,3	0,5	370
Beta-Aerosole	MBq	10,2	23,0	34,0	$7,4 \cdot 10^4$
Tritium	TBq	1,3	2,6	4,2	37
Kohlenstoff-14	GBq	25,2	68,0	92,0	610
Krypton-85	TBq	357,0	1150,0	1900,0	$1,3 \cdot 10^4$
Strontium-90	MBq	1,1	3,3	9,6	$3,7 \cdot 10^3$
Iod-129	MBq	34,0	31,0	37,0	$1,5 \cdot 10^3$
Plutonium-241	MBq	4,8	8,0	16,0	$1,5 \cdot 10^4$

Bei dieser Gegenüberstellung der Emissionswerte ist zusätzlich für eine bessere Beurteilung der zulässige Jahresabluftplanwert gemäß dem KfK-Abluftplan angegeben. Eine Beurteilung der Emissionen gemäß dem Jahresabluftplanwert ist zulässig, da die hier aufgeführten 3 Wiederaufarbeitungskampagnen im Jahr 1987 bzw. bis ins Frühjahr 1988 gelaufen sind. Deutlich muß herausgestellt werden, daß nicht nur der zulässige Abluftplanwert eingehalten wurde, sondern zum Teil um mehrere Größenordnungen unterschritten wurde. Vergleicht man die einzelnen Emissionen in den 3 Kampagnen, so muß allgemein festgestellt werden, daß es bei den Emissionen keine nennenswerten Unterschiede gibt, unabhängig davon, ob Brennelemente mit niedrigem oder hohem Abbrand aufgearbeitet werden. Die in der Tabelle leicht unterschiedlichen Werte resultieren aus der unterschiedlichen Kampagnendauer. Während die 8. MZFR-Kampagne nur 59 Tage dauerte, waren für die 2. KKS-Kampagne 114 Tage notwendig.

Nun zu den radioaktiven Abfällen, die bei den drei betrachteten Aufarbeitungskampagnen anfielen: In Bild 12 sind sowohl die flüssigen als auch die Festabfälle aufgeführt.

Bild 12

	8. MZFR Kampagne	3. GKN Kampagne	2. KKS Kampagne
Flüssige Abfälle [m³/tU]:			
HAWC	0,5	1,0	1,7
MAW _{or}	0,4	0,9	1,0
MAW _w	11,0	8,2	8,6
SAW _w	61,7	61,2	84,6
Festabfälle [m³/tU]:			
MAW	1,9	2,2	4,7
SAW	9,0	13,2	21,4

In allen drei hier miteinander verglichenen Wiederaufarbeitungskampagnen wurden die Abfälle auf die jeweilige Tonne wiederaufzuarbeitendes Uran bezogen. Der hochaktive flüssige Abfall nimmt deutlich zu, was damit zusammenhängt, daß in der Anlage aufgrund ihrer Auslegung bestimmte Aktivitätskonzentrationswerte eingehalten werden müssen, was zu niedrigeren Aufkonzentrationsfaktoren im 1W-Verdampfer bei steigenden Abbränden bzw. Spaltproduktaktivitäten führt. Zusätzlich wirken sich bei KKS die vermehrten Betriebsstörungen aus. Der organische flüssige Abfall resultiert aus den Raffinaten der Kerosin-Waschstufen der Mischabsetzer und steigt durch den höheren Reworkanteil an.

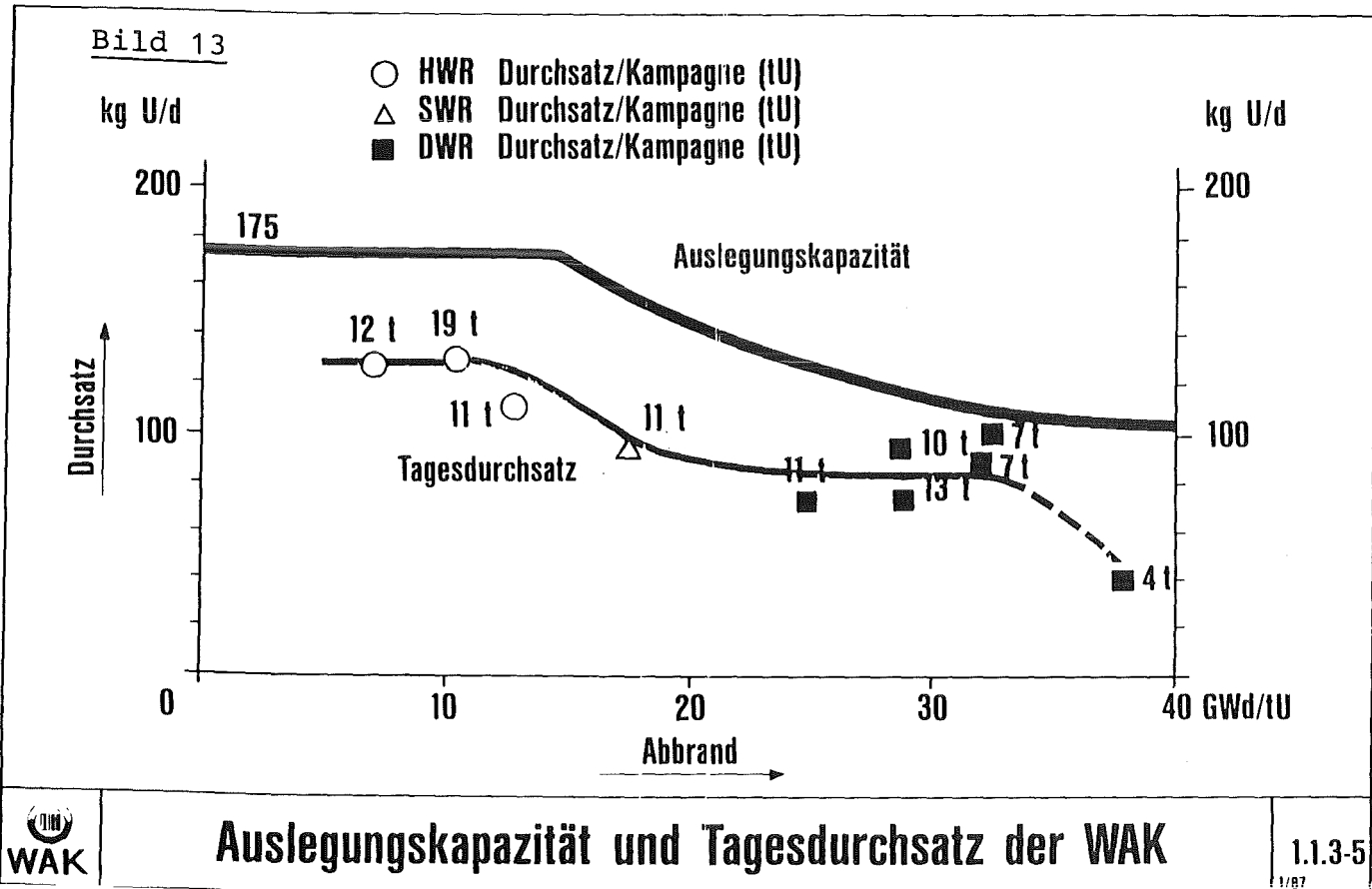
Was den übrigen wäßrigen, flüssigen Abfall anbelangt, so werden keine signifikanten Mengenunterschiede erkennbar. Sowohl für den mittelaktiven als auch für den schwachaktiven flüssigen, wäßrigen Abfall bewegt sich die angefallene Menge sowohl für die niedrig abgebrannten als auch für die hochabgebrannten Brennelemente in der gleichen Größenordnung.

Bei den mittelaktiven Festabfällen handelt es sich um die betonierten Abfälle aus dem Zerlege- und Auflöserbetrieb. Diese Abfälle - es handelt sich hierbei um Hülsen, Feedfilter mit Feedklärschlamm beladen, Strukturmaterial und sonstige Abfälle aus der Headendzelle - müssen strikt getrennt gesammelt und konditioniert werden. Der höhere Anfall bei KKS im Vergleich zu MZFR und GKN ist auf die hier deutlich höhere Anzahl der benötigten Feedklärfilter zurückzuführen, von denen jeweils nur einer in ein Abfallfaß gegeben werden darf.

Die Menge an schwachaktiven Festabfällen spiegelt lediglich die jeweilige Kampagnendauer wieder; der Anfall ist praktisch unabhängig von der Art der aufgearbeiteten Brennstoffe. Im wesentlichen handelt es sich um brennbare und nicht brennbare Abfälle wie Dekomaterialien, Handschuhe, Werkzeuge und anderes mehr, was beim Betrieb einer derartigen Anlage anfällt.

Um den Vergleich der drei Aufarbeitungskampagnen zu vervollständigen, werden im folgenden die erzielten Verfügbarkeiten der drei Aufarbeitungskampagnen einander gegenübergestellt.

Es wird unterschieden zwischen Zeitverfügbarkeit und Arbeitsverfügbarkeit. Die Zeitverfügbarkeit ist definiert als Summe der Aufarbeitungs- und Reworkzeit, bezogen auf die Betriebszeit, wobei diese der Kampagnendauer gleichzusetzen ist. Die Arbeitsverfügbarkeit ist definiert als mittlerer Tagesdurchsatz, bezogen auf den Nominaldurchsatz. Dieser Nominaldurchsatz ist abbrandabhängig, was in Bild 13 dargestellt ist.




Die jeweiligen Abbrände entsprechen bestimmten Plutonium-/Uran-Verhältnissen. Da ab dem 2. Plutoniumzyklus der Tagesdurchsatz von Plutonium maximal 1 kg beträgt, was einem Abbrand von ca. 15 GdW/t U entspricht, sinkt ab diesem Punkt der mögliche Tagesdurchsatz von zunächst 175 kg/d auf 105 kg/d bei Abbränden von 40 GdW/t U. Dieser Sachverhalt wird durch die obere Kurve im Bild wiedergegeben. Gleichzeitig sind die effektiv erzielten Tagesdurchsätze aller größeren Wiederaufarbeitungskampagnen, d.h. > 5 t U, dargestellt. Man erkennt, daß diese Werte dem Trend der Maximalkurve folgen; setzt man sie zum Maximalwert beim jeweiligen Abbrand in Beziehung, so ergeben sich Arbeitsverfügbarkeiten von 48 bis 84 %, im Mittel über die Gesamtbetriebszeit von 67 %.

In Bild 14 sind die erzielten Verfügbarkeiten dargestellt. Sowohl für die Zeitverfügbarkeit als auch für die Arbeitsverfügbarkeit ist der Trend eindeutig.

Bild 14

	8. MZFR Kampagne	3. GKN Kampagne	2. KKS Kampagne
Zeitverfügbarkeit = $\frac{\text{Aufarbeitungs- + Reworkzeit}}{\text{Betriebszeit}}$	96%	66%	52%
Arbeitsverfügbarkeit = $\frac{\text{mittlerer Tagesdurchsatz}}{\text{def. Nominaldurchsatz}}$	74%	60%	51%
Mittlerer Tagesdurchsatz [kg U/d]	122	66	52
Ausfallzeiten [h]			
– aus technischen Gründen	287	444	634
– äußere Anlässe	321	114	242


Verfügbarkeitsvergleich von 3 unterschiedl. Aufarbeitungskampagnen
1.1.3-38

Die Wiederaufarbeitung von hochabgebrannten Brennelementen geht eindeutig zu Lasten der Verfügbarkeit der Anlage. Dies zeigt sich auch im mittleren Tagesdurchsatz, ausgedrückt in kg Uran/d, der in den hier aufgeführten Beispielen um mehr als die Hälfte zurückgeht, je höher der Abbrand ist. Betrachtet man die Ausfallzeiten, so lassen sie sich in 2 Kategorien einteilen, zum einen in Ausfallzeiten aus technischen Gründen, zum anderen in Ausfallzeiten, bedingt durch äußere Anlässe.

Unter äußeren Anlässen sind Betriebsunterbrechungen aufgrund ausstehender Genehmigungen oder ungünstiger meteorologischer Verhältnisse zu verstehen. Ungünstige meteorologische Verhältnisse bedeuten Nordwind, weil dann keine Auflösungen durchgeführt werden können. Das bei diesem Prozeß freigesetzte Krypton würde die Monitore in einzelnen Gebäuden des Kernforschungszentrums beeinflussen.

In der 8. MZFR-Kampagne waren die Ausfallzeiten aus technischen Gründen hauptsächlich durch mechanische Störungen an den automatischen Probenehmern bedingt. Demgegenüber gab es nur wenige hydraulische Störungen in den Mischabsetzerbatterien. Die Ausfallzeiten, bedingt durch äußere Anlässe, waren z. B. darauf zurückzuführen, daß ungünstige meteorologische Bedingungen eine Verschiebung von Auflösungen nach sich zogen.


Die Zunahme der Ausfallzeiten aus technischen Gründen bei der 3. GKN-Kampagne ist auffällig. Die Ausfallursachen lassen sich in 4 Gruppen mit ähnlicher Ausfalldauer zusammenfassen, nämlich Verstopfen von Befüll- und Entleerleitungen der Verdampfer, Verstopfen der Auflöserentleerung, Verstopfen von Probenehmern und hydraulische Störungen im 1. Zyklus.

Die Ausfälle sind durch den zunehmenden Feststoffgehalt der Brennstofflösung bedingt, sowohl vor als auch nach der Feed-Klärung. Besonders zeitraubend war die Behebung der Verstopfungen des Entleerungsdampfstrahlers des Auflösers. Das Freispülen der Probenahmeleitungen erfolgte in der Regel schnell und problemlos.

Eine nochmalige Zunahme der Ausfallzeiten aus technischen Gründen ist bei der KKS-Kampagne festzustellen. Im wesentlichen handelt es sich um die gleichen Ursachen wie bei der 3. GKN-Kampagne. Die hohe Zahl an Ausfallstunden, bedingt durch äußere Anlässe in der 2. KKS-Kampagne, waren hauptsächlich auf eine Störung der Probenahme der HAWC-Lagerbehälter zurückzuführen, so daß keine Transfers von HAWC-Lösung in die LAVA aufgrund einer behördlichen Anweisung erfolgen durfte.

Im Herbst 1987 wurde erstmalig ein LWR-Mischoxid-Brennelement in der WAK aufgearbeitet. Das Brennelement (Bild 15) bestand aus 180 Einzelstäben, die zum Teil nach dem sogenannten OKOM- und zum Teil nach dem AUPuC-Verfahren hergestellt worden waren.

Bild 15

Abmessungen:	3055 x 200,3 x 200,3 mm
Anzahl Brennstäbe:	180, davon
	64 n. d. OKOM-Verf. 2,0% Pu-fiss
	58 n. d. OKOM-Verf. 3,2% Pu-fiss
	58 n. d. AUPuC-Verf. 3,2% Pu-fiss
Brennstoffmasse:	267,3 kg Uran
	11,7 kg Plutonium
Einsatzzyklus:	3
Vollasttage:	881
Abbrand:	32175 MWd/t U
Kühlzeit:	1148 d
 WAK	KWO-MOX-Brennelement Nr. 11-38
	1.1.3-34

Das Brennelement war in drei Zyklen bis zu einem Abbrand von 32,2 GWD/t Uran im Kernkraftwerk Obrigheim eingesetzt. Im August 1984 wurde das Brennelement entladen, im Mai 1986 zur WAK transportiert und im Oktober 1987 aufgearbeitet.

Für Nachbestrahlungsuntersuchungen waren aus dem Brennelement insgesamt 21 Stäbe gezogen worden, so daß für die Aufarbeitung noch 159 Brennstäbe mit 239 kg Brennstoff zur Verfügung standen.

Für die Auflösung waren die Brennstäbe im mechanischen Headend vereinzelt und in zwei Chargen zusammengestellt worden, die OKOM- und AUPuC-Brennstäbe im gleichen Verhältnis enthielten. Die Auflösung selbst wurde auf zwei verschiedene Methoden durchgeführt, um eventuelle Einflüsse auf das Löseverhalten aufzufinden. Bei der ersten Auflösung wurde nach der Methode der Säuredosierung verfahren. Für die zweite Charge wurde der Brennstoff in den Lösekorb des Auflösers geschnitten, die gesamte zur Auflösung benötigte Säuremenge zugegeben und die Lösung dann bis zum Sieden erhitzt.

In beiden Fällen betrug die Kochzeit der Auflösung ca. 8 Stunden. Zur Auflösung eventuell an den Hülsen verbliebener Brennstoffreste wurde eine Nachauflösung mit ca. 200 l 3m HNO₃ durchgeführt.


Um Aussagen zur Löslichkeit des Brennstoffes zu bekommen, wurden verschiedene Untersuchungen durchgeführt:

1. Visuelle Kontrolle von Auflöserkorb und Hülsenschüttung nach der Auflösung.
2. Bestimmung des Spaltstoffgehalts an den Hülsen mittels passiver und aktiver Neutronenmessung mit einem Hülsenmonitor, der vom Kernforschungszentrum Karlsruhe entwickelt und gebaut wurde, und der seit Januar 1986 zu Versuchszwecken in der Headend-Zelle der WAK installiert ist.

3. Gewichtsbestimmung des Feedklärschlammes mittels Wägung des Feedfiltereinsatzes.
4. Bestimmung des Restfeststoffgehaltes in der filtrierten Brennstofflösung.
5. Bestimmung des Spaltstoffgehaltes im Feedklärschlamm mittels passiver und aktiver Neutronenmessung, d.h. mit dem schon erwähnten Hülssenmonitor.
6. Bestimmung der Zusammensetzung des Feedklärschlammes mittels physikalischer und chemischer Untersuchungsmethoden.

Die Ergebnisse der beiden Auflösungen vom 12. und 26. Oktober 1987 sind in Bild 16 zusammengefaßt.

Bild 16

	1. Charge	2. Charge
Datum der Auflösung	12. Oktober 1987	26. Oktober 1987
Art der Auflösung	Säuredosierung	Batch-Verfahren
Visuelle Kontrolle der Hülssen	blank, keine Rückstände	blank, keine Rückstände
Gewicht Feedklärschlamm	560 g	600 g
Restfeststoffgehalt der Brennstofflösung	0,76 g/l	0,45 g/l
Plutonium-Bestimmung in den Hülssen	ca. 0,04%	ca. 0,14%
Plutonium-Bestimmung im Feedklärschlamm	ca. 0,18%	ca. 0,07%
 WAK	Daten zur Auflösung des KWO-MOX-Brennelementes	
		1.3.5-9a

Unabhängig vom Löseverfahren zeigten Auflöserkorb und Hülsen bei der visuellen Kontrolle keine Rückstände. Die gemessenen Feedklärschlammengen sind bei beiden Auflösungen vergleichbar. Die Menge von ca. 600 g entspricht einem Wert von ungefähr 5 kg/t Brennstoff und ist damit vergleichbar mit derjenigen von GKN-Brennstoff.

Die Gesamtverluste an Plutonium in den Hülsen und im Feedklärschlamm sind in beiden Fällen etwa gleich, nämlich ca. 0,2 %, bezogen auf die Plutonumeingangsmenge.

Im weiteren Verfahrensablauf ergaben sich keine Besonderheiten. Die Brennstofflösung war vor der Eispeisung in die Extraktionszyklen mit abgereicherter Uranyl-nitratlösung auf das Spaltstoffniveau von Uranoxid-LWR-Brennstoff eingestellt worden. Weder bei der Extraktion noch bei Produktfeinreinigung, Konzentrierung und Abfüllung wurden Abweichungen vom normalen Betriebsverlauf beobachtet.

Zusammenfassend kann also festgestellt werden, daß die Aufarbeitung des KWO-MOX-Brennelementes keine signifikanten Unterschiede im Vergleich zur Aufarbeitung von Uranoxid-LWR-Brennelementen ergeben hat.

Nachdem bereits seit mehr als 15 Jahren das in der WAK zurückgewonnene Plutonium zu MOX-Brennstoffen verarbeitet und in mehreren deutschen Kernkraftwerken erfolgreich zur Stromerzeugung eingesetzt wird, markiert diese erste Wiederaufarbeitung von MOX-Brennstoff aus Leichtwasserreaktoren den erfolgreichen Start des zweiten Umlaufs des Energierohstoffs Plutonium im nuklearen Brennstoffkreislauf.

- Bild 1: U- und Pu-Durchsatz in der WAK
- Bild 2: Einzelvorhaben in der WAK (9/71-3/88)
- Bild 3: Fließschema WAK
- Bild 4: Entwicklung der Rahmenbedingungen zur Wiederaufarbeitung von bestrahlten Kernbrennstoffen in der WAK (1971-1988)
- Bild 5: Kernbrennstoffdurchsatz in der WAK
- Bild 6: Datenvergleich von Brennelementen zur Wiederaufarbeitung
- Bild 7: Vergleich der Betriebsdiagramme von 3 unterschiedlichen Wiederaufarbeitungskampagnen
- Bild 8: Vergleich Brennstoffaufschluß für 3 Wiederaufarbeitungskampagnen
- Bild 9: Vergleich der HAF-Zusammensetzung für 3 unterschiedliche Aufarbeitungskampagnen
- Bild 10: Vergleich der in der Extraktion erzielten Deko-Faktoren für 3 unterschiedliche Aufarbeitungskampagnen
- Bild 11: Vergleich der radioaktiven Emissionen für 3 unterschiedliche Aufarbeitungskampagnen
- Bild 12: Radioaktive Abfälle bei 3 unterschiedlichen Aufarbeitungskampagnen
- Bild 13: Tagesdurchsatz in der WAK in Abhängigkeit vom Abbrand
- Bild 14: Verfügbarkeitsvergleich von 3 unterschiedlichen Aufarbeitungskampagnen
- Bild 15: KWO-MOX-Brennelement 11-38
- Bild 16: Daten zur Auflösung des KWO-MOX-Brennelementes

**Entwicklungsstand und -ziele bei der
Wiederaufarbeitung von Kernbrennstoffen**

K. Ebert und H. Schmieder

Die heutigen F&E-Arbeiten zur Wiederaufarbeitung haben folgende Ziele:

- Einfacher und damit billiger.
- Zuverlässiger und damit sicherer.
- Minimierung des Abfallvolumens und damit akzeptabler.

Diese Ziele sollen zusammengefaßt dargestellt durch folgende Arbeitsschwerpunkte erreicht werden:

- Vereinfachung der Trennprozesse.
- Kompaktere Apparate (höhere Raum-Zeit-Ausbeute).
- Rechnergeführte Prozeßregelung und Automation.

Bei der Abgasreinigung sind unsere Entwicklungsarbeiten soweit fortgeschritten, daß sie im internationalen Vergleich als führend angesehen werden können. Mit dem Frigen-Waschverfahren zur Rückhaltung von Krypton-85, das auch Kohlenstoff-14 und alle anderen Schadstoffe so gut wie restlos aus dem Auflöserabgas zurückhält, wurde der verfahrenstechnisch einfachste Prozeß in die Planung für Wackersdorf übernommen. Er hat nach nur sechs Jahren Entwicklungszeit seine technische Reife in einer automatisch betriebenen Pilot-Anlage nachgewiesen. Die noch ausstehenden Entwicklungsarbeiten dieses F&E-Vorhabens sind:

- Einpassung der Kr-Rückhaltung in die WAW Planung.
- Kr-Konditionierung:
Fixierung in Metallen oder Zeolithen.
- Verfahrenstechnische Verbesserungen der Iodbehandlung:
Ioddesorption aus der Brennstofflösung.
Neue Rückhalteverfahren im Behälterabgas ?

Im Extraktionsprozeß, der eigentlichen Wertstoffrückgewinnung, wurde schon vor Jahren ein großes Vereinfachungspotential erkannt, an dem schwerpunktmäßig im IHCH des Kernforschungszentrums gearbeitet wird. Hauptziel ist die Verkürzung des Extraktionsprozesses, der heute noch fünf Extraktionszyklen benötigt (s. Abb.1).

Eingehende Studien mit unserem Prozeßmodell VISCO und begleitende Untersuchungen mit den Anlagen LABEX und MINKA lieferten Ergebnisse, die darauf schließen ließen, daß prinzipiell die geforderte Trennleistung auch in nur einem einzigen Extraktionszyklus erreicht werden kann.

Nach der Wiederinbetriebnahme der modernisierten MILLI-Anlage im September 1988 wurde erstmals versucht diesem Ziel näher zu kommen. Das Experiment verlief außerordentlich erfolgreich; dabei ist zu erwähnen, daß ein extrem hochabgebrannter und relativ kurz gekühlter SBR-Brennstoff verwendet wurde. In der Abb. 2 sind die wesentlichen Ergebnisse dieser Versuchskampagne zusammengefaßt. Neben den in allen Fällen erreichten Trennleistungssteigerungen im ersten Extraktionszyklus konnte auch die sichere Vermeidung von Pu-Akkumulationen, die sich vereinfachend auf das Kritikalitätskonzept auswirkt, nachgewiesen werden.

Das KfK Konzept der Solventwäsche mit CO_2 -beladener Hydrazinhydratlösung, das den mittelaktiven Abfall vermeidet, der bei Anwendung der Sodawäsche entstehen würde, konnte ebenfalls erfolgreich demonstriert werden.

Aufgrund dieser Ergebnisse ist es nicht mehr sinnvoll, die Feinreinigung, die mit dem einzyklischen Prozeß nur dann erforderlich ist, wenn Betriebsstörungen bei der Extraktion auftreten, mit weiteren Extraktionszyklen durchzuführen. Vielmehr erscheint es zweckmäßig die Eingangsstufe der Brennstoffrefabrikation so zu gestalten, daß sie diese Aufgabe mitübernimmt. Aus diesem Grund bearbeiten wir, zunächst für das Uran, die Nitratkristallisation als Feinreinigungsschritt, die gleichzeitig zu einer Konzentrierung des Produktes führt.

Die Abb. 3 faßt die bisher erreichten Ergebnisse mit diesem neuen Feinreinigungsverfahren zusammen. Es darf erwartet werden, daß auch im Falle von nicht optimaler Betriebsführung mit der Verfahrenskombination Extraktion-Kristallisation die geforderten Produktspezifikationen erreicht werden können.

Damit würde sich eine ganz wesentliche Vereinfachung für den gesamten Trennprozeß ergeben, was der Vergleich von Abb. 4 mit Abb. 1 deutlich macht.

Eine weitere Reduzierung des Raumbedarfs der Prozeßzellen kann durch kompaktere Apparate erreicht werden. Zur Zeit richtet sich dabei unser Hauptaugenmerk auf die Extraktionsapparate. Ein Ziel ist die Entwicklung einer elektrochemisch arbeitenden Zentrifugalextraktoratterie zur U-Pu-Trennung.

Eine wesentliche Rolle bei allen experimentellen Entwicklungsarbeiten spielt das im IHCH entwickelte mathematische Prozeßmodell VISCO, mit dessen Hilfe die Versuchskampagnen konzipiert und begleitet werden. Dies führt zu einer erheblichen Reduzierung der Experimentierzeit.

Die Weiterentwicklung des Prozeßmodells zielt sowohl auf rechnergeführte Prozeßregelung und Automation, als auch auf die Entwicklung eines Prozeßsimulators, der u. a. für die Ausbildung von Personal und die Demonstration von nicht bestimmungsgemäßen Betriebszuständen und somit für Sicherheitsfragen.

Wenn die genannten Entwicklungen, die ein beträchtliches Potential zur Kostensenkung im Brennstoffkreislauf enthalten, zur technischen Reife geführt werden sollen, bedarf es ihrer Demonstration in einer technisch repräsentativen Pilot-Anlage. Eine solche Anlage gibt es in der BRD nicht. Es ist nun Aufgabe der Geldgeber, das ist die öffentliche Hand und die Energieversorgungsunternehmen, zu entscheiden, ob die bisher angelegten Gelder sich auch langfristig auszahlen sollen, oder nicht. Wird dies bejaht, darf der technische Entwicklungsweg nicht abgebrochen werden, der u. a. auch einen wichtigen Beitrag zur Erhöhung der öffentlichen Akzeptanz der Kernenergie leisten kann.

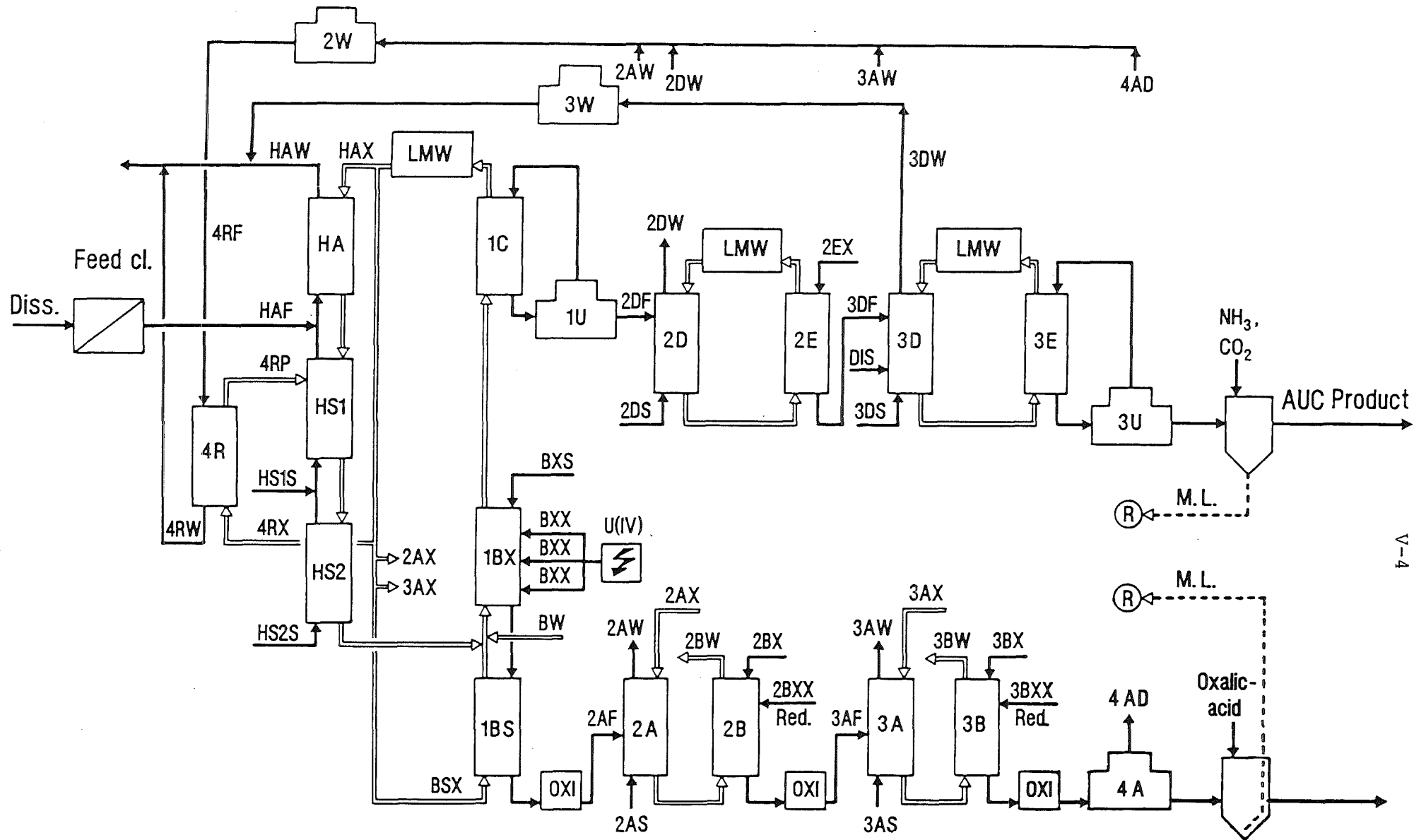










Abb. 1 Traditioneller PUREX-Prozeß

KfK IHCH

- | | | | | | | | | | |
|---|------------------------------|---|------------------|---|---------------|---|----------------|----------------------------------|--------------------|
|  | Verdampfer |  | Extraktor |  | Solventwäsche |  | Rezyklierung | Diss. = Auflöser | M.L. = Mutterlauge |
|  | Fällung oder Kristallisation |  | Elektrolysezelle |  | Oxidation |  | Solventklärung | Feed cl. = Speiselösungsklä rung | |

	Erforderlicher DF ¹⁾	Bisher in MILLI erreicht ²⁾ DF	Vorausgesagt ³⁾ DF	In MILLI 1988 erreicht ⁴⁾ DF	In PUTE erreicht ⁵⁾ DF
Ru	$\sim 10^4$	$\sim 2 \cdot 10^3$	10^{4-5}	+ +	
Zr	$< 10^4$	$\sim 10^3$	10^{4-5}	+	
Cs	$< 10^6$	$\leq 10^5$	$\sim 10^5$	+	
Tc			10	+ +	
Np	$\sim 10^2$		2	+	
Pu	$\sim 10^6$	$\leq 10^4$	$> 10^4$		+ +

- 1) U-Produkt, 33 GWd/t, 7 a; 2) HAF/HS2P, KNK NY-203, max. 100 GWd/t, 10 Monate;
 3) U-Produkt, ENC 86, Genf u. a.; 4) HAF/HS2P, KNK NY-205, max. 170 GWd/t, 16 Monate;
 5) mit zweigeteilter ELKE; + Voraussage bestätigt

Pu-Akkumulationen	vermeidbar	+ ⁶⁾	
6) auch in LABEX u. MINKA demonstriert			
Solventwaschabfall ⁷⁾	vermeidbar	+	

7) HDBP Bildung geringer als in früheren Prozessen

Abb. 2 STAND "ONE - CYCLE" KONZEPT, OKT. 88

	Nb-95	Zr-95	Ru-106	Cs-137	Ce-144	Sb-125	Np	Pu	Abkühlzeit von 30°C auf -30°C
mit U (IV)	40	22	910	1340	100	280	1660	270	60
	62	24	1190	3060	100	nd	320	240	60
	70	150	450	600	nd	nd	nd	350	60
mit U (IV)	26	26	320	1000	100	nd	900	84	10
ohne U (IV)	67	19	2560	4800	100	nd	—	5	60
	116	25	2400	3400	100	nd	2	4	60

V-6

KfK

IHCH

Abb. 3 Dekontaminationsfaktoren für reale Prozeßlösungen (1UC)
(LWR-Brennstoff 3% Abbrand, Kühlzeit 2,5 a)

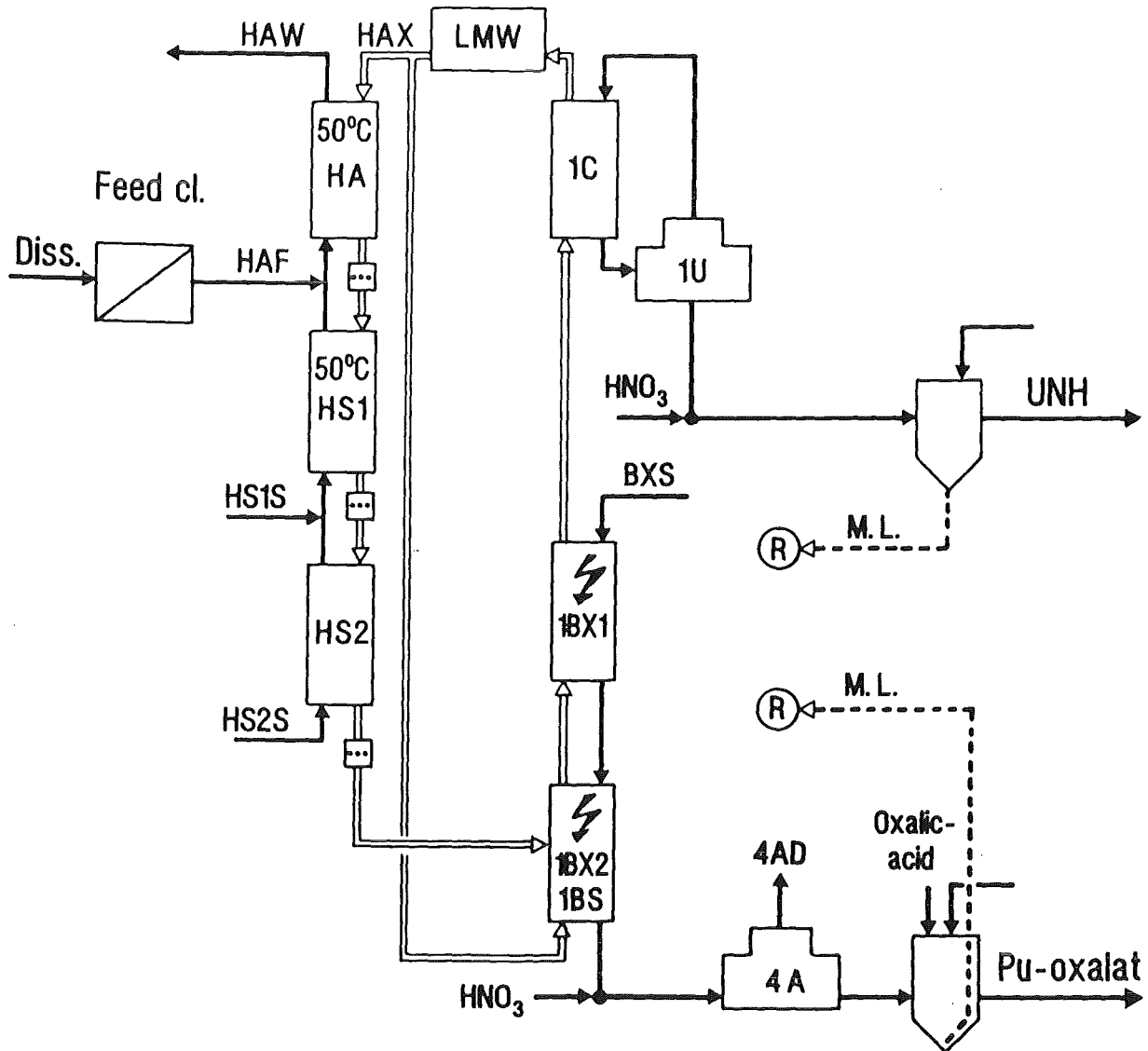


Abb. 4 Konzept eines einzyklischen Prozesses
(Legende siehe Abb. 2)

Neue Brennelemententwicklungen der ABB

K. Ehlers ABB Reaktor

G. Vesterlund ABB Atom

1. Einleitung

ABB Atom ist seit mehr als 20 Jahren aktiv tätig auf dem Gebiet der LWR Brennelemententwicklung. Ursprünglich konzentrierte man sich auf Brennelemente für Siedewasserreaktoren, aber seit 1980 werden auch DWR-Brennelemente - zunächst auf Basis von Westinghouse Lizenzen für Westinghouse Reaktoren - hergestellt.

Ein direktes Ergebnis des Zusammenschlusses zwischen ASEA und BBC ist die Zusammenfassung der Ressourcen der ABB Reaktor und der ABB Atom mit dem Ziel ein modernes Brennelement für Druckwasserreaktoren auf den deutschen Markt zu bringen.

2. Brennelemente für Siedewasserreaktoren

Die wichtigste Verbesserung für den Markt der Siedewasserbrennelemente war 1981 die Einführung des SVEA Elementes mit dem Wasserkreuz. Mit diesem neuen Design konnten für die EVU's die Brennstoffzykluskosten deutlich reduziert werden bei gleichzeitig verbesserten thermischen und mechanischen Eigenschaften, wobei bei einigen Anlagen auch die LOCA Margen vergrößert werden konnte.

Unter Beibehaltung des 8 x 8 Gitters wurden vier sog. Minikanäle mit jeweils 4 x 4 Brennstäben getrennt durch das Wasserkreuz eingeführt. Wegen der verbesserten Sicherheitsmargen und der günstigeren Brennstoffzykluskosten wurde das neue Konzept sowohl von den Genehmigungsbehörden wie auch den EVU's akzeptiert, so daß ab 1988 bei ABB Atom nur noch SVEA Brennelemente hergestellt werden.

Ein wichtiger Meilenstein bei der Einführung des SVEA Elementes war der Nachweis ausreichender Strömungsstabilität. ABB Siedewasser-Reaktoren mit spezieller Instrumentierung ermöglichen den direkten Vergleich der Strömungscharakteristiken an 8 x 8 und SVEA Brennelementen, und es konnte gezeigt werden, daß das Wasserkreuzdesign bei gleichen Betriebsbedingungen stabiler als das 8 x 8 Design ist. Damit war der Weg frei für den nächsten Schritt die Einführung des SVEA 96/100 Konzeptes, welches im Hinblick auf mechanische und thermische Eigenschaften eine weitere Optimierung darstellt. Für die Siedewasserreaktoren der ABB wird das sogenannte SVEA 100 Brennelement angeboten; hier sind die 4 x 16 Stäbe des SVEA 64 durch 4 x 25 Stäbe ersetzt. Dabei wird der erprobte SVEA Brennelementkasten unverändert übernommen.

Für Siedewasserreaktoren mit engerem Gitter ist ein größerer Wasseranteil im Zentrum des Brennelementes optimal. Er wird realisiert, in dem man aus jedem Minikanal einen Brennstab entfernt und das Wasserkreuzzentrum vergrößert. Dieses Brennelement wird unter dem Markennamen SVEA 96 angeboten (siehe Abb. 1).

Die wichtigsten Abmessungen der SVEA 96/100 Elemente zeigt Tabelle 1.

Tabelle 1: Hauptabmessungen für SVEA 96/100 Brennelemente

	SVEA 64	SVEA 100
Gitterabstand (mm)	15.5	12.4
Äußerer Stabdurchmesser (mm)	11.63	9.62
Hüllrohrdicke (mm)	0.74	0.63

Beide Brennelementtypen weisen die gleichen Gitterabstände und Stabdurchmesser auf.

Die Vorteile des SVEA 96/100 Konzeptes lassen sich wie folgt zusammenfassen:

Der Übergang von 64 auf 96 bzw. bei 100 Brennstäbe führt zu einer niedrigeren linearen Stableistung bzw. zu höheren Brennelementleistungen. Durch höhere Brennelementleistungen lassen sich die Brennstoffzykluskosten verbessern, während niedrigere lineare Stableistung Margen ergeben, die sowohl bei der Erhöhung des Abbrandes wie auch zur Vermeidung von PCI-Beschränkungen genutzt werden können. Bei gleicher Brennelementleistung verringert sich die lineare Stableistung von 45 auf 30 kW/m. Damit liegt man in einem Bereich, der ein Betrieb ohne PCI-Beschränkungen erlaubt. Denn Betriebserfahrungen wie auch breit angelegte Versuchsserien in Testreaktoren zum Lastrampenverhalten haben gezeigt, daß bei Stablängenleistungen unterhalb 30 kW/m durch Steuerstabbewegungen keine PCI Fehler über lokale Leistungsspitzen verursacht werden (siehe Abb. 2).

Selbst gegenüber dem SVEA 64 Brennelement mit Liner-Brennstäben weist das SVEA 96 Konzept größere PCI Margen aus, da bei Brennstäben mit Liner die Differenz zwischen den betrieblichen Leistungsmaxima und abgesicherten PCI Schwellwerten kleiner ist.

Die deutlich verringerten linearen Stableistungen ermöglichen andererseits Abbranderhöhungen. Beim 8 x 8 Design ist die abbrandlimitierende Größe die Spaltproduktfreisetzung. Der Systemdruck wird bei Abbränden von ungefähr 40 MWd/kg Uran erreicht. Selbst unter Ausnutzung eines erweiterten "Lift Off" Kriteriums von 15 MPa für den zusätzlichen Innendruck ist der Abbrand des 8 x 8 Brennelementes auf ca. 60 MWd/kg Uran beschränkt.

Andere den Abbrand limitierende Phänomene sind temperaturabhängig, wie beispielsweise die chemische Wechselwirkung mit dem Hüllrohr, die Korrosion und die Wasserstoffversprödung.

Unter betrieblichen Gesichtspunkten ergeben die verbesserte Margen neben einem vereinfachten Ladeschema noch andere Vorteile. So zeigen fehlerhafte Brennstäbe mit geringen linearen Stabileistungen deutlich kleinere Spaltgasfreisetzungen. In ABB Reaktoren ist die Fehlerrate zwar sehr niedrig und liegt im Mittel bei einem fehlerhaften Brennstab pro drei Reaktorzyklen, wobei Ursache zumeist die Einwirkung von Fremdkörpern ist. Während Brennstäbe mit hohen Leistungen bis zu 100 MBq/s Xe 133 freisetzen liegen die entsprechenden Werte bei Brennstäben mit niedrigerem Leistungsniveau typischerweise bei ca. 2 MBq/s. Auch die Urankontamination hängt in ähnlicher Weise von der Stabileistung ab.

In der BRD ist der Einsatz von aufgearbeitetem Brennstoff und damit von MOX Brennelementen ein wichtiger Gesichtspunkt des Brennstoffkreislaufes. HEW und ABB Atom haben gerade kürzlich die erforderlichen Genehmigungsschritte abgeschlossen um SVEA 64 MOX Brennelemente im KKW Brunsbüttel einzusetzen. Die erste Lieferung durch COMMOX in Belgien ist für 1989 geplant und hängt von der endgültigen Freigabe durch die Genehmigungsbehörden des Landes Schleswig-Holstein ab.

Natürlich sind die größeren Margen des SVEA 96/100 Designs auch für MOX Brennelemente von Vorteil. Die verbesserten mechanischen und thermischen Eigenschaften erlauben einen erhöhten Abbrand und damit auch eine erhöhte Plutoniumbeladung. Letzteres ist ein wichtiger ökonomischer Faktor bei der Anwendung von MOX-Brennstoffen.

Zur Wiederaufarbeitung der SVEA Brennelemente wurde gemeinsam mit Cogema eine Studie durchgeführt. Danach können SVEA Brennelemente in gleicher Weise behandelt werden wie die 8 x 8 Brennelemente. Dazu werden wie beim Transport frischer SVEA Brennelemente die vier Brennstabbindel der Unterkanäle zu einem Bündel zusammengefasst, welches dann im Head-end Schritt in gleicher Weise zerkleinert wird wie die 8 x 8 Bündel.

Zur Frage der Wiederaufarbeitung von SVEA Brennelementen in Wackersdorf wird zur Zeit von HEW eine Studie initiiert mit dem Ziel, die SVEA Brennelemente innerhalb des Brennelementkastens zu transportieren.

Die ersten 42 SVEA 100 Brennelemente sind seit 1986 in Forsmark-3 und Oskarshamn-3 eingesetzt. Die erste komplette Nachladung wird 1990 für Oskarshamn-3 ausgeliefert. Lieferungen von SVEA 96 Brennelementen starten ebenfalls 1990 hier in Philippsburg, dabei werden zunächst 1990 4 DEMO geliefert, 1991 folgen 28 und eine vollständige Nachladung im Jahre 1992 (siehe Abb. 3).

3. Brennelemente für Druckwasserreaktoren

Mit dem Begriff ASEA jetzt ABB Atom stellt sich automatisch die Verbindung zu Siedewasserreaktoren bzw. Siedewasserreaktorbrennelementen her. Aber auch auf dem Gebiet der Druckwasserbrennelemente ist ABB bereits erfolgreich tätig, wie nachfolgende Tabelle 2 zeigt. Darüberhinaus hat ABB Atom zur weiteren Assemblierung Brennstäbe an Westinghouse geliefert (siehe Tabelle 2, dritte Spalte).

Tabelle 2: Brennelementlieferung der ABB Atom für Druckwasserreaktoren

Reaktor	Anzahl der BE	Brennstäbe für
Ringhals-3	148	157
Ringhals-4	46	157
Beznau 1	60	
Comanche Peak		193

Das von ABB Atom zur Zeit angebotene 17 x 17 Brennelement mit 9,5 mm Brennstäben besitzt einen Voll-Zirkaloy Abstandshalter und axial abgestuftes Gadolinium. Das DNB Verhalten wurde durch Einführung der WRB-1 Korrelation verbessert.

Zwischenzeitlich ist die Entwicklung eines fortgeschrittenen Brennelementes angelaufen, dessen wesentliche Merkmale die folgenden sind:

- Ein Voll-Zirkaloy Abstandshalter mit niedrigem Druckverlust zur Vermeidung von Strömungsumverteilungen in Mischkernen, die noch Brennelement mit Inconel-Abstandshaltern mit geringerem Druckverlust enthalten. Das erste DEMO Element dieses neuen Designs wird 1989 in Ringhals-3 eingesetzt. Der neue Abstandshalter zeigt die gleichen Konstruktionsmerkmale wie die bisherigen Zirkaloy Abstandshalter, der einzige Unterschied ist die Höhe des Abstandshalters, die durch die diagonale Anordnung des Federn auf 38 mm reduziert wurde. Alle anderen wesentlichen Eigenschaften, wie Federkonstanten, Wandstärken usw. bleiben unverändert.
- Ein Sieb zum Auffangen loser Teile oder Fremdkörper im Fußstück des Brennelementes, da Betriebserfahrungen zeigen, daß die Hauptursache für Brennstabsschäden Reibkorrosion durch Fremdkörpereinwirkungen ist.

Typische Schäden treten am unteren Abstandshalter auf, wo die Fremdkörper - meistens Späne, Leitdrähte - aufgefangen werden. Um derartige Schäden weitgehend einzuschränken, werden zur Zeit alle Brennelemente für Druckwasserreaktoren mit einem derartigen Fremdkörpersieb angeboten. Bei diesem Design haben die Löcher im Fußstück einen auf ca. 4 mm reduzierten Durchmesser. Um den Druckabfall in etwa konstant zu halten wird die Zahl der Löcher entsprechend erhöht.

Eine Maschenweite von 4 mm scheint aufgrund der vorliegenden Betriebserfahrungen ausreichend zu sein, da nur Fremdkörper mit Abmessung größer als 5 mm zu ernsthaften Brennstabfehlern führen.

- Hüllrohrmaterialien mit verbesserter Korrosionsbeständigkeit. Das Korrosionsverhalten der Hüllrohre - dies gilt insbesondere für alle Druckwasserreaktoren mit erhöhten Kühlmittelleintrittstemperaturen - ist zur Zeit ein den Abbrand limitierende Größe.

Zu dieser Fragestellung läuft seit 1984 ein groß angelegtes Entwicklungsprogramm, in dem insbesondere der Einfluß von Herstellungsparametern sowie die Chemie des Zirkaloy untersucht werden. Es zeigt sich das der Herstellungsprozeß für das Korrosionsverhalten sehr wichtig ist und hier insbesondere die Wärmebehandlungsschritte für eine optimale Mikrostruktur verantwortlich sind. Auch die Chemie spielt eine wesentliche Rolle, Zinn sollte bei Zry-4 z.B. am unteren Spezifikationslimit liegen. Weiter haben zunächst Versuche in Autoklaven bei 400° C und einer Versuchsdauer von bis zu 200 Tagen gezeigt, daß Zry-2 gegenüber Zry-4 ein bis zu einem Faktor zwei besseres Korrosionsverhalten zeigt. Reaktortests haben dieses Verhalten bestätigt. Nach zwei Zyklen im Ringhals-3 Reaktor zeigte Zry-2 gegenüber Zry-4 unter vergleichbaren Bedingungen einen um den Faktor zwei besseres Korrosionsverhalten. DEMO Elemente mit Zry-2 Stäben sind daher in Ringhals-3 seit 1986 im Einsatz.

4. Zusammenfassung

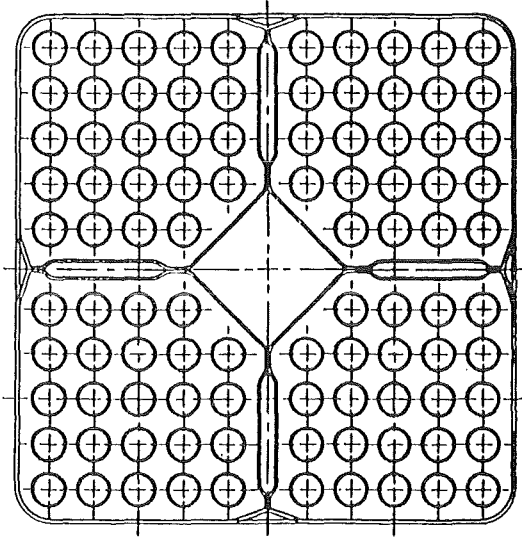
Die Verbesserung der betrieblichen Sicherheit sowie der Brennstoffzykluskosten sind die treibenden Kräfte bei der Entwicklung neuer ABB Brennelementkonzepte, wie die Einführung des SVEA Konzeptes im Jahre 1981 zeigte.

Mit dem SVEA 96/100 Design eröffnet sich die Möglichkeit zur Verbesserung der betrieblichen Sicherheit durch ein PCI-festes Brennelement wie auch die Möglichkeit zur Erhöhung des Abbrandes.

Auch für die Druckwasserbrennelemente gelten diese Zielsetzungen, wobei unter Beibehaltung des Sicherheitsstandes durch Einführung von Voll-Zirkaloy Abstandshaltern, des axial abgestuften Gadoliniums und die Entwicklung eines korrosionsbeständigen Hüllrohres insbesondere wirtschaftliche Aspekte angesprochen sind.

Abbildung 1:

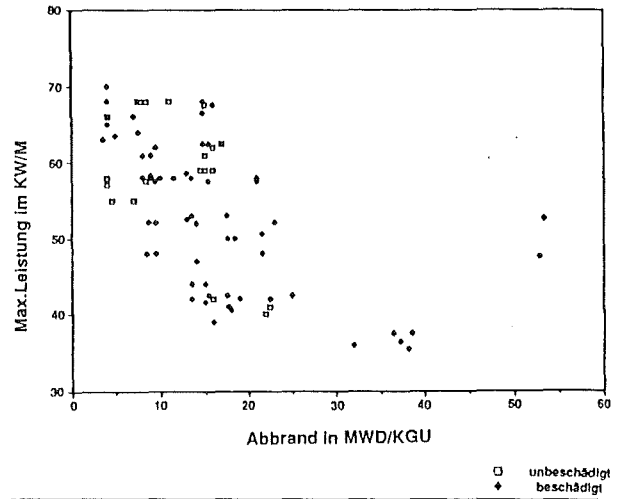
SVEA 96
Prinzipielle Anordnung der Brennstäbe
und des Wasserloches



KTG-88 1

Abbildung 2:

Rampen Versuche der ABB-Atom



KTG-88 4

Abbildung 3:

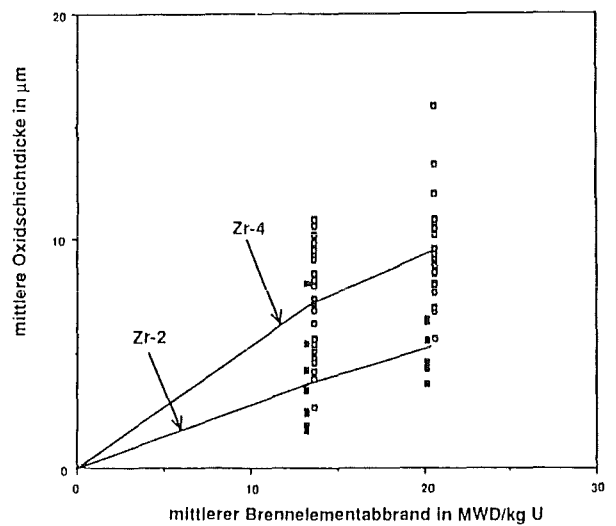
Betriebserfahrungen und Lieferverpflichtungen für
SVEA 96/100 Brennelemente

	86	87	88	89	90	91	92	93
Oskarshamn 2					16			
Oskarshamn 2	4	4	20	30	RL	RL	RL	RL
Forsmark 3	2	4	8		RL	RL	RL	
TVO II				8				
Phillipsburg 1					4	28	RL	

KTG-88 7

Abbildung 4:

Oxidschichtdicke als Funktion des Abbrandes
für Zr-2 und Zr-4 (Ringhals 3)



KTG-88 6

Der Beitrag "Ein Vergleich der Verteilung von Spaltprodukten im LWR-Brennstoff vor und nach einer Transiente" lag bei Redaktionsschluß nicht vor.

NEUE ENTWICKLUNGEN UND BETRIEBSERFAHRUNGEN MIT LWR-BRENNELEMENTEN

G.A. SOFER, K.-H. BLANK, ANF

Die Advanced Nuclear Fuels Corporation (ANF)⁽¹⁾ liefert Kernreaktorbrennelemente und zugehörige Dienstleistungen für Druck- und Siedewasserreaktoren in Europa, den USA und dem Fernen Osten. Während der 19 Jahre ihres Bestehens fertigte ANF in den beiden Fertigungsanlagen Richland, USA, und Lingen, BRD, mehr als 16.300 DWR- und SWR-Brennelemente für 43 Reaktoranlagen. Dabei wurde eine Reihe von Neuerungen zur Verbesserung des Betriebsverhaltens der Elemente realisiert.

A. DWR-Brennelemente

ANF fertigte die erste DWR-Nachladung mit einer 15x15 Brennstab-anordnung für den Betrieb ab 1975 in einer 3-Loop Anlage in den USA. Auf diese Erstlieferung folgten bisher noch 10 weitere Nachladungen für die gleiche Anlage. Insgesamt wurden 103 DWR-Nachladungen für 14 US-Anlagen und für 8 europäische Anlagen verschiedener Hersteller geliefert. Die bisher erzielten maximalen Abbrände im BE-Mittel sind in der Tabelle 1 aufgezeigt; die BS-Schadensfreiheit ist ebenfalls angegeben. Sie beträgt insgesamt 99,996 % und liegt für neuere Auslegungen bei nahezu 100 %.

Im folgenden werden einige der von der ANF im Laufe der Jahre vorgenommenen Neuerungen in der Auslegung mehr oder weniger detailliert angesprochen. In Tabelle 2 sind die einzelnen Punkte zusammengefaßt dargestellt.

(1) ehemals Exxon Nuclear Company, Inc.

1. Hüllrohrauslegung

Zu Beginn der siebziger Jahre war in der US-Anlage Ginna plastisches Kollabieren der BS-Hüllrohre eines anderen Herstellers beobachtet worden. Um diesem Fehlermodus vorzubeugen, wurden die Brennstäbe seit 1974 von allen Herstellern mit Vorinnendruck beaufschlagt. ANF wählte als zusätzliche Sicherheitsmaßnahme eine dickere Hüllrohrwand (0,79 mm), die 1974 bei Einführelementen für Ginna zum erstenmal zum Einsatz kam und sich als erfolgreich erwies. Durch die dickere Hüllrohrwand wurde generell die Zuverlässigkeit der mechanischen Auslegung erhöht, was sich u.a. in der hohen Fehlerfreiheitsrate selbst für BE-Abbrände im Bereich von 40 bis 50 GWd/tU äußert. Die dickere Hüllrohrwand erlaubt auch die mit hohem Abbrand einhergehende, durch Korrosion verursachte Wanddickenschwächung, ohne die geforderte Integrität der Hülle zu gefährden. Der Nachweis dafür wurde unfreiwillig durch in den Jahren 1982 bis 1984 gefertigte Rohre erbracht. Diese Rohre wurden nach einem geringfügig abgewandelten Prozeß gefertigt und Restbestände sind heute noch teilweise im Einsatz. Im Extremfall wurden 165 µm Oxiddicke entsprechend etwa 100 µm (0,1 mm) Wanddickenschwächung bei einem mittleren BS-Abbrand von ca. 36 GWd/tU gemessen, ohne daß Brennstabversagen beobachtet wurde. Zum Vergleich: Bei gleicher Leistungsgeschichte werden für das ANF-Standardhüllrohr lokale Maxima unter 40 µm gemessen.

2. Zircaloy für Abstandshalter und Führungsrohre

Im Jahre 1975 wurde von ANF in den ersten DWR-Nachladungen in den USA und 1978 in der BRD ein Abstandshalter mit einer Struktur aus Zircaloy anstelle von Inconel eingesetzt und seither standardmäßig verwendet. Bisher wurden mehr als 5.700 Brennelemente für 22 DWR mit Zircaloy-Abstandshaltern bestückt. Dabei wurden in 3 Anlagen maximale BE-Abbrände zwischen 46 und 50 GWd/tU erzielt, ohne daß Korrosionsprobleme aufgetreten sind. Insgesamt fielen 5 Stäbe durch nicht durch äußere Einflüsse bedingte Reibkorrosion zwischen Stab und Abstandshalter aus.

Das Führungsrohr aus Zircaloy anstelle von Edelstahl folgte 1978 mit dem Ersteinsatz in einem europäischen DWR.

Durch diese beiden Neuerungen waren Einsparungen über verminderte Anreicherung im Werte von \$ 25/kgU (Zry-AH) bzw. \$ 80/kgU (Zry-Führungsrohr) zu erzielen. Inzwischen ist die Verwendung von Zircaloy für beide BE-Komponenten von allen Herstellern übernommen worden. Der Zircaloy-AH enthält in seiner Standardausführung noch eine in Form eines Streifens eingesetzte Feder. Weiter unten wird noch auf eine reine Zircaloy-Ausführung eingegangen.

3. Gadolinium-Absorber im Brennstoff

Seit 1978 liefert ANF in den USA DWR-Brennelemente mit im Brennstoff integriertem Gd_2O_3 -Absorber. Die Gadoliniumkonzentration wurde beginnend mit 1 % schrittweise erhöht, wobei erste europäische Lieferungen 1982 mit 4 % und später auch mit 8 % und 10 % Gadolinium folgten.

Die Nutzung von im Brennstoff integriertem Gadoliniumoxidabsorber ist heute eine vollständig erprobte, zuverlässige Entwicklung, die für die Erreichung einer oder mehrerer der folgenden Zielsetzungen angewandt wird:

- o Ausreichende Anreicherung und ausreichender Reaktivitätskoeffizient der Moderatortemperatur für Reaktorzyklen von 14 bis 24 Monaten Dauer
- o 'Low-Radial-Leakage' Kernbeladung zur Verminderung der Brennstoffkreislaufkosten und der RDB-Versprödung durch den schnellen Neutronenfluß (Verringertes F_R bei IN-OUT Kernbeladung)
- o Reduzierung der Fertigungskosten im Vergleich zu getrennt verkapselten brennbaren Absorbern
- o Wegfall der Notwendigkeit zur getrennten Handhabung und Entsorgung von Brennelementen mit getrennt verkapselten brennbaren Absorbern

Die mit Gd-haltigen Brennelementen erreichten Abbrände bei 100 % BS-Fehlerfreiheit sind in Tabelle 3 gezeigt. Bei keinem der etwa 6.650 Gd-Stäben, die in 9 DWR-Anlagen bis zu einem maximalen BE-Abbrand von ca. 50 GWd/tU bestrahlt wurden, war Brennstabversagen beobachtet worden. Untersuchungen der Gd-Stäbe im Reaktorbecken und in Heißen Zellen ließen keine bedenklichen Anzeichen erkennen. Die experimentell über dem Tablettenradius ermittelte Gd-Konzentration konnte analytisch sehr gut verifiziert werden, s. Abbildung 1. Zur Anwendung kam das Programm CASMO/MICBURN-2.

4. Fremdkörperabweisende Auslegungen

Ein Teil von Brennstabschadensfällen, nämlich etwa 3 pro 100.000 im Einsatz befindlichen Stäben, ist auf die Einwirkung loser metallischer Fremdkörper im Kühlmittel zurückzuführen. Diese Schäden entstehen in der Regel im Bereich weniger Zentimeter oberhalb des unteren Endstopfens. Zur Abwehr dieses Schadensmechanismus entwickelte ANF seit 1987 eine Reihe weitgehend fremdkörperresistenter Auslegungen, u.a. ein verlängerter massiv ausgeführter unterer Endstopfen, ein auf dem Fußstück aufsitzender Abstandshalter aus Inconel und ein Fußstück mit kleinen Durchflußöffnungen. In einer im Frühjahr 1989 zum Einsatz kommenden Ausführung, werden diese Auslegungsmerkmale gemeinsam angewandt. Hierdurch können nur Fremdkörper mit einer Partikelgröße unter 4 mm über das Fußstück gelangen. Fremdkörper dieser Größe verursachen gewöhnlich keinen Schaden.

Die Abbildung 2 soll das Prinzip der Auslegung veranschaulichen. Sie zeigt eine Seitenansicht von Fußstück und unterstem Abstandshalter. Der Abstandshalter ist so plaziert, daß nach unten keine Lücke zum Fußstück entsteht und seine Bauhöhe ist der Position des Abstandshalters an einem benachbarten Standardelement angepaßt. Dadurch wird die Ausbildung eines Bypasses in Querrichtung verhindert.

5. Brennelement mit Hochleistungsabstandshalter

In dieser BE-Ausführung weichen lediglich die Abstandshalter von der Standardausführung (Zircaloy-Struktur und Inconel-Federstreifen) ab. Die neue Abstandshalterausführung besteht rein aus Zircaloy (ohne Inconel-Federn) und ist in Abbildung 3 gezeigt. Die Innenstruktur besteht aus parallelen Doppelstegen, die durch ihre Formgebung Kühlmittelkanäle ausbilden, die gleichzeitig die AH-Federn zur Brennstabstützung darstellen. Die Federwirkung kommt durch die elastische Verformung der Streifen beim Einführen der Brennstäbe zustande. Die mechanische Festigkeit des neuen Abstandshalters ist höher als die des Standard-AH aus Zircaloy mit Einfachstegen; Tests zur seitlichen Belastbarkeit haben eine Erhöhung der Festigkeit um mindestens 25 % je nach Auslegung ergeben.

Die Kühlmittelkanäle sind an der stromabwärts gelegenen Seite des Abstandshalters zur Brennstabachse in einem optimierten Winkel geneigt und sorgen so für eine wirksame Kühlmitteldurchmischung von einem Bereich des Brennelementes in die Nachbarbereiche. Das Ergebnis dieser verbesserten Durchmischung ist eine gleichmäßigere Enthalpieverteilung und ein erhöhter kritischer Wärmefluß.

Die Auslegung ist strömungsgünstig gestaltet, so daß der Druckverlust des Hochleistungsabstandshalters (HL-Abstandshalter) nur etwa 70 % des Druckverlustes eines bimetallischen ANF-Standardabstandshalters mit Vermischungsfahnen beträgt. Der verminderte Druckabfall des HL-Abstandshalters erlaubt es, in den Brennelementebereichen hoher Enthalpie zwischen die HL-Abstandshalter Mischgitter, siehe Abbildung 4, einzubauen, ohne daß es dadurch zu einem höheren Druckabfall über das Brennelement verglichen mit der Standardauslegung kommt.

Das Aussehen eines Brennelementes mit HL-Abstandshalter und Mischgitter ist schematisch in Abbildung 5 am Beispiel eines BE mit insgesamt 8 Abstandshaltern und 3 Mischgittern dargestellt. Im Axialbereich hoher Kühlmittelenthalpie und geringstem Abstand

zur kritischen Heizflächenbelastung sind zwischen die HL-Abstandshalter auf der halben AH-Spanne Mischgitter eingebaut, welche die Kühlmittelturbulenz neu beleben und damit die kritische Heizflächenbelastung erhöhen. Die AH an den beiden BE-Enden sind von der herkömmlichen bimetallischen Ausführung mit Inconel-Feder, um strömungsinduzierte Schwingungen der freien Stabenden mit Sicherheit auszuschließen.

Es wurden umfassende DNB-Versuche an 5x5 Stabanordnungen mit voller BE-Länge durchgeführt, wobei die Parameter für Druck, Kühlmittelstrom, Stabdurchmesser, Stabmittenabstand und axiale Leistungsverteilung im praktisch interessanten Bereich variiert wurden. Die Ergebnisse der Versuche lassen darauf schließen, daß die Brennelemente mit HL-Abstandshaltern und Mischgittern einen um 16 % bis 20 % höheren kritischen Wärmefluß bei gleicher Enthalpie erreichen werden als die nach der herkömmlichen ANF-Auslegung gefertigten Brennelemente.

Das Problem der Reibkorrosion zwischen Abstandshalter und Brennstab mußte für den HL-Abstandshalter genau untersucht werden, da Zircaloy wesentlich schneller unter Bestrahlung relaxiert als Inconel. Dieser Sachverhalt geht aus Abbildung 6 hervor. Nach etwa 25 GWd/tU mittlerem Stababbrand ist mit einer völligen Relaxation der Zircaloy-Feder zu rechnen, wohingegen bei Inconel selbst bei sehr hohen Abbränden noch eine Restvorspannung vorhanden ist. Unter Berücksichtigung der Streuung bezüglich Dimensionen und Materialeigenschaften ergibt sich für die Auslenkung der Zircaloy-Feder der Bereich entsprechend Abbildung 7. Da das Aufkriechen des Hüllrohres durch den äußeren Überdruck mit einer Durchmessererminderung verbunden ist, entsteht gemäß sehr konservativer Rechnung sogar ein Spalt zwischen Brennstab und AH-Feder. Daher wurden in die Reibkorrosionstests, die mit Brennelementen voller Abmessung durchgeführt wurden, auch Fälle mit künstlich eingestellten Spalten einbezogen. Die Spalte wurden über die gesamte BE-Länge an den AH-Positionen, wie in Abbildung 8 gezeigt, eingestellt und das BE über 1.000 Stunden bei Reaktorbedingungen bezüglich Durchfluß, Druck und Temperatur getestet.

Das Ergebnis einer Reihe von Versuchen ist qualitativ in Abbildung 9 dargestellt. Man erkennt, daß für den bimetallischen AH die Abriebtiefe erwartungsgemäß mit zunehmender Federauslenkung bzw. Federkraft zunimmt. Bei Vorliegen einer verschwindenden Federauslenkung bzw. Federkraft hat die Abriebtiefe ein Minimum und sie steigt mit zunehmender Spaltgröße stark an. Für den HL-Abstandshalter und das Mischgitter konnte keine meßbare Abriebtiefe ermittelt werden mit Ausnahme einiger Kontaktstellen mit den Noppen des Rahmenbleches (s. Abbildung 5). Das gute Reibkorrosionsverhalten des HL-Abstandshalters wird plausibel, wenn man sich die Ausdehnung der Kontaktstellen zwischen Brennstab und Abstandshalter für die verschiedenen Auslegungen vor Augen hält. Die Abbildung 10 zeigt diese Kontaktstellen an der abgewickelten BS-Oberfläche. Im Extremfall des bimetallischen AH ist sowohl für die Feder als auch die Noppen nur eine begrenzte Kontaktfläche vorhanden. Beim HL-Abstandshalter hingegen liegt vorwiegend Linienkontakt vor, womit sich das günstige Abriebverhalten selbst bei Vorhandensein von Spalten erklären läßt. Neuere Auslegungen verwenden auch für die Rahmenbleche linear ausgebildete Kontaktbereiche.

Mit Brennelementen, die den HL-Abstandshalter enthalten, werden zusammenfassend die folgenden Vorteile erwartet:

- o 16 % - 20 % Verbesserung im kritischen Wärmefluß bei gleicher Enthalpie
- o 8 % - 10 % Erhöhung der zulässigen mittleren Stableistung ($F_{\Delta H}$)
- o Verminderter Korrosionsaufbau an BS
- o Erhöhung des Entladeabbrandes auf ≈ 50 Gwd/tU
- o 'Low-Radial-Leakage' Beladung durch hohes $F_{\Delta H}$ zur Verminderung der Brennstoffkreislaufkosten und der RDB-Belastung durch schnellen Neutronenfluß
- o Verminderung der Anreicherung um 0,01 % gegenüber bimetallischen AH und um 0,06 % gegenüber Inconel-AH.

Kontrahierte Lieferungen für Brennelemente der neuen Auslegung sind in Tabelle 4 aufgelistet. Die 4 Einführbrennelemente in einer Combustion Engineering Anlage dürften zur Zeit gegen 6 Gwd/tU erreicht haben, wohingegen die anderen Projekte vor ihrer

Auslieferung stehen bzw. in Vorbereitung sind. Die Lieferung einer ersten Nachladung ist für 1990 vorgesehen.

B. SWR-Brennelemente

Die erste ANF-Nachladung für einen Siedewasserreaktor bestand aus Brennelementen mit einer 7x7 Stabanordnung und wurde 1973 ausgeliefert. Zu dieser Zeit kam es in SWR häufig zu Brennstabversagen durch Wasserstoffaufnahme durch das Hüllrohr an seiner Innenfläche. Aufgrund dieser Erfahrung anderer Hersteller führte ANF von Anfang an einen niedrigen Grenzwert für die offene Porosität der Brennstofftabletten, Trocknung der Tabletten bei hohen Temperaturen und Beladen der Brennstäbe in Handschuhkästen bzw. in kontrollierter Atmosphäre ein, um den Wasserstoff aus dem Brennstabinneren weitgehend fernzuhalten. Durch diese Maßnahmen wurde bei keinem der von ANF bis heute gefertigten DWR- und SWR-Brennelemente ein Versagen durch Hydrierung beobachtet.

Bis heute lieferte ANF 70 Nachladungen für insgesamt 21 SWR (5 in Europa, 12 in den USA und 4 im Fernen Osten). Im Jahre 1975 wurde eine 8x8 Auslegung eingeführt, um eine größere Beständigkeit gegen PCI zu erreichen und 1981 wurden erstmals mit erhöhtem Brennstab-Vorinnendruck versehene 8x8 Nachladungen für einen mittleren Abbrand von 30.000 MWd/tU geliefert.

1985 führte ANF 9x9 Nachladungen, ebenfalls mit erhöhtem BS-Vorinnendruck, ein und der mittlere Abbrand wurde auf 36.000 MWd/tU gesteigert. 1988 folgte eine 9x9 Nachladung mit erhöhter innerer Moderation im Brennelement, wobei der mittlere Nachladungsabbrand auf 38.000 MWd/tU angehoben wurde. Während der Dauer des Bestehens der ANF erreichten SWR-Brennstäbe eine Schadensfreiheit von 99,991%, wobei die neueren Auslegungen bei einer Schadensfreiheit von 99,998% liegen. In Tabelle 5 sind die erzielten maximalen Abbrände im BE-Mittel und Werte für die BS-Schadensfreiheit angegeben.

Im folgenden werden einige der von ANF im Laufe der Jahre vorgenommenen Neuerungen in der Auslegung mehr oder weniger detailliert angesprochen. In Tabelle 6 sind die einzelnen Punkte zusammengefaßt dargestellt.

1. 9x9 Brennelemente für erhöhten Abbrand und ausgedehnten Lastwechselbetrieb

Das Ziel der Entwicklung der 9x9 Auslegung liegt in der Reduzierung der Brennstoffzykluskosten durch die Erhöhung des Abbrandes (Erhöhung der Anreicherung und verbesserte Brennstoffnutzung) und in der Erweiterung des Lastwechselbereiches.

Die 9x9 Auslegung weist im Innenbereich bis zu 5 Wasserstäbe auf, wovon einer als Abstandshalterfixierstab ausgebildet ist. Durch die Anhäufung von nicht siedendem Wasser im BE-Innern wird eine flache Leistungsverteilung und damit bessere Brennstoffnutzung erzielt. Im Vergleich zur 8x8 Auslegung ergibt sich bei gleicher BE-Leistung in der 9x9 Auslegung eine um ca. 20 % geringere Stableistung, wodurch die Leistung am Ende einer Rampe entsprechend erhöht werden kann. Es wird daher erwartet, daß für 8x8 Brennelemente bestehende Einschränkungen in den Rampengrenzen bei der 9x9 Auslegung entfallen können. Die verminderte Stableistung hat eine geringere Spaltgasfreisetzung und geringeres Brennstoffschwellen zur Folge und erlaubt somit höhere Abbrände.

ANF stellte bisher 1.792 Brennelemente der 9x9 Auslegung für 7 SWR, darunter 2 Anlagen in Europa, her und erreichte einen maximalen Brennelementabbrand von 33 GWd/tU, siehe Tabelle 7.

Einführelemente der 9x9 Auslegung aus 3 Reaktoranlagen wurden nach jeder Standzeit inspiziert und in gutem Zustand vorgefunden. Der Maximalabbrand der untersuchten BE lag bei 32 GWd/tU. Wegen der im Vergleich zur 8x8 Auslegung geringeren Stableistung wurden an der BS-Oberfläche um etwa den Faktor 2 geringere Oxiddicken gemessen, siehe Abbildung 11.

2. 9x9 Brennelemente mit Injektions-Wasserstab

Als weitere Entwicklung hat ANF eine 9x9 Auslegung vorgestellt, die nicht nur eine verbesserte Moderation sondern auch eine verbesserte Kühlung der Brennstäbe bewirkt.

Die verbesserte Moderation wird erzielt durch die Anordnung von 5 Wasserstäben in der Mitte des BE, Verwendung von BS mit kleinem Durchmesser im Inneren des BE und von BS mit großem Durchmesser an der Peripherie des BE. Die auf diese Weise geglättete Neutronenmoderation ermöglicht den gleichen durchschnittlichen Entladeabbrand bei um etwa 0,17 % reduzierter Anreicherung entsprechend 80 \$/kg U verglichen mit einer 9x9 Auslegung mit nur 1 Wasserstab und einem BS-Durchmesser.

Die verbesserte Kühlung der Brennstäbe wird bewirkt durch eine neue Wasserstabauslegung. Konventionelle Wasserstäbe weisen jeweils an ihrem unteren und oberen Ende Öffnungen auf, so daß das Wasser geradewegs durch sie hindurchfließt. Das Wasser wirkt dabei primär als Moderator, ist jedoch als Kühlmittel wenig effektiv. Eine solche Anordnung bewirkt, daß ein bedeutsamer Anteil des Kühlmittels als Bypass durch das Brennelement strömt und dadurch die Anzahl der Wasserstäbe in einer gegebenen Anordnung beschränkt ist. Die Auslegung des Injektions-Wasserstabes nutzt dagegen den gesamten durch ihn fließenden Wasserstrom nicht nur als Moderator sondern auch als Kühlmittel, siehe Abbildung 12. Das Wasser wird vollständig im oberen Bereich des Brennelementes injiziert, wo die limitierende Heizflächenbelastung der Brennstäbe vorliegt. Dies ist etwa zwischen 60 % und 80 % der aktiven Brennelementhöhe von unten gemessen der Fall.

Zur gewünschten Kühlmittelführung ist der Wasserstab ganz oben verschlossen. Er enthält ein gelochtes Innenrohr, welches fast bis ans obere Ende reicht, siehe Abbildung 13. Zwischen Innenrohr und Außenrohr, das zweckmäßigerweise einen größeren Durchmesser hat als die Brennstäbe, fließt das Kühlmittel in einen Ringraum

nach unten, um dort durch axial und umfangsmäßig optimal platzierte Löcher auszutreten und sich mit dem Kühlmittel um die Brennstäbe herum zu vermischen. Durch diese Nutzung des Wassers als Kühlmittel erhöht sich die Anzahl verwendbarer Wasserstäbe. Es wird sowohl optimale Moderation als auch optimale Kühlung des Brennelementes erreicht. Die Siedeübergangsleistung des Bündels wird größer, da die Injektion unterkühlten Wassers aus dem Wasserstab in den Bereich limitierender Heizflächenbelastung den Wärmeübergang verbessert. Versuche mit einer 9x9 Anordnung in voller BE-Länge und realistischer radialer Leistungsüberhöhung haben eine Erhöhung der Siedeübergangsleistung um 10 % ergeben verglichen mit einer modernen 8x8 Auslegung.

Eine Nachladung bestehend aus 88 BE der 9x9 Auslegung mit Injektions-Wasserstab und BS zweier Durchmesser ist seit September 1988 in einer europäischen Anlage in Betrieb.

TABELLE 1 BETRIEBSERFAHRUNGEN MIT DWR- BRENNELEMENTEN, OKTOBER 1988

Anzahl KKW	BE- Typ	Anzahl bestrahlter BE	Anzahl bestrahlter BS	Maximal erreichter BE-Abbrand, GWd/tU	Anzahl schadhafter BS*	Anteil fehlerfreier BS, %
<u>Europa (8)</u>						
	14x14 (FRAM)	120	21.480	38,7	0	100,000
	15x15 (FRAM)	447	91.188	49,9	0	100,000
	16x16 (KWU)	727	171.572	46,2	4	99,998
	17x17 (FRAM)	520	137.280	38,1	2	99,999
			421.520		6	99,999
<u>USA (14)</u>						
	14x14 (CE,W)	1.817	319.838	45,6	8	99,997
	15x15 (CE,W)	1.335	275.204	47,7	19	99,993
	16x16 (W)	228	52.554	33,7	3	99,994
	17x17 (W)	252	66.528	42,3	6	99,991
			714.124		36	99,995
Gesamt:		5.446	1.135.644		42	99,996

* BS-Schäden, die nicht auf äußere Einflüsse (z. B. anlagebezogene Ursachen wie 'baffle jetting', Reibkorrosion durch Fremdkörper) zurückzuführen sind

TABELLE 2 DWR-INNOVATIONEN

<u>Auslegungs-Merkmal</u>	<u>Einführungstermin</u>	<u>Vorteil für Betreiber</u>
Dickere Hüllrohrwand, korrosionsbeständiges Hüllrohrmaterial	1974 U.S.A. 1978 Europa	Erhöhte Abbrandmöglichkeit und Zuverlässigkeit aufgrund erhöhter mechanischer Auslegungssicherheit.
Zircaloy-Abstandshalter mit Inconel-Federn	1975 U.S.A. 1978 Europa	Erniedrigung der Anreicherung um 0,05 %, äquiv. 25 \$/kgU.
Zircaloy-Führungsrohre	1978 Europa	Erniedrigung der Anreicherung um 0,12 %, äquiv. 60 \$/kgU.
Abnehmbare Kopfstücke	1975 U.S.A. 1978 Europa	Erleichterung von Überprüfungen und Reparaturen.
Nachladungen für Abbrände bis 40 GWd/tU	1982 U.S.A.	Substantielle Senkung der Brennstoffkreislaufkosten: > 10 \$/kg U und pro 1000 MWd/tU
Abbrennbarer integrierter Absorber Gd ₂ O ₃ im Brennstoff	1978 U.S.A. 1982 Europa	Verringerte Leistungsüberhöhung - längere Zyklen (14-24 Monate).
Axiale Natururan-Blankets	1982 U.S.A.	Kostensenkung von 50 \$/kgU wegen niedrigerer Anreicherung.
Einführelemente mit Hohlpellets	1982 Europa 1985 U.S.A.	Höherer Abbrand, größere PCI-Beständigkeit und niedrigere Brennstoffkreislaufkosten.
Abnehmbare Klammern gegen Kühlmittel-Jets	1983 Europa 1987 U.S.A.	Vermeidung struktureller Schäden und Brennstabfehlern infolge von baffle-jetting
Fremdkörperabweisende Auslegung	1987 U.S.A.	Vermeidung von Brennstabfehlern durch Reibkorrosion.
Nachladungen für Abbrände von 45-48 GWd/tU	1988 U.S.A. 1989 Europa	Weitere substantielle Senkung der Brennstoffkreislaufkosten.
Hochleistungs-Abstandshalter und Mischgitter	1988 U.S.A. 1989 Europa	Verbesserter kritischer Wärmestrom, höheres F _{ΔH} .

TABELLE 3 BETRIEBSERFAHRUNGEN MIT Gd-HALTIGEN
DWR-BRENNELEMENTEN, OKTOBER 1988

Anzahl KKW	Gd ₂ O ₃ Konz., %	Anzahl bestrahlter BE	Anzahl bestrahlter BS	Maximal erreichter BE-Abbrand, GWd/tU	Anteil fehlerfreier Gd-BS, %
<u>Europa (4)</u>					
	4,0	111	840	39,4	100
	8,0	88	800	49,9	100
	10,0	4	32	32,7	100
<u>USA (5)</u>					
	1,0	108	432	42,3	100
	4,0	434	3.296	43,1	100
	6,0	92	1.040	27,0	100
	8,0	12	144		
	10,0	12	80	7,9	100
Gesamt:		861	6.664		100

TABELLE 4 DWR - BRENNELEMENTE MIT
HOCHLEISTUNGSABSTANDSHALTER

<u>STAAT</u>	<u>STABANORDNUNG</u>	<u>ANZAHL BE</u>	<u>REAKTOREINSATZ</u>
USA	14 X 14	2	II. 1988
USA	15 X 15	4	IV. 1988
FRG	16 X 16	4	II. 1989
USA	15 X 15	NL	IV. 1990

**TABELLE 5 BETRIEBSERFAHRUNGEN MIT SWR-
BRENNELEMENTEN, OKTOBER 1988**

BE- Typ	Anzahl bestrahlter BE	Anzahl bestrahlter BS	Maximal erreichter BE-Abbrand, Gwd/tU	Anzahl schadhafter BS ⁽¹⁾	Anteil fehlerfreier BS, %
Verschiedene ⁽²⁾	1.069	69.112	41,0 ⁽³⁾	32	99,954
8x8 ohne Vorinnendruck	1.276	78.210	36,4	11	99,986
8x8 mit Vorinnendruck	4.465	277.909	34,0	6	99,998
9x9 mit Vorinnendruck	1.792	142.564	33,0	2	99,999
Gesamt:	8.602	567.795		51	99,991

- (1) BS-Schäden, die nicht auf äußere Einflüsse (z. B. anlagebezogene Ursachen wie Reibkorrosion durch Fremdkörper) zurückzuführen sind
(2) 6x6, 7x7 und 11x11 Auslegungen
(3) Mittelwert der Demonstrationsstäbe für erhöhten Abbrand

TABELLE 6 SWR-INNOVATIONEN

<u>Auslegungs-Merkmal</u>	<u>Einführungstermin</u>	<u>Vorteil für Betreiber</u>
Dickere Hüllrohrwand	1973 U.S.A. 1972 Europa	Erhöhte Abbrandmöglichkeit und Zuverlässigkeit aufgrund erhöhter mechanischer Auslegungssicherheit.
Abnehmbare Kopfstücke	1975 U.S.A. 1972 Europa	Erleichterung von Überprüfungen und Reparaturen. Keine losen Teile und keine Schraubverbindungen.
Betriebsüberwachung durch Online-System POWERPLEX	1982 U.S.A.	Online-Messung und Vorhersage der Leistungsverteilung. Genaue Überwachung von Grenzwerten und Leistungsrampen.
Hochabbrand - 9x9 Elemente mit niedriger Stabileistung	1985 U.S.A. 1986 Europa	Erniedrigte Stabileistung erlaubt höheren Abbrand und höhere Grenzwerte für Leistungsrampen.
9x9 Brennelemente mit erhöhter innerer Moderation	1988 Europa	Verbesserte Brennstoff-Zykluskosten ohne Verminderung der Grenzen für Leistungsrampen.
Online-Überwachung der Stabilität	1988 U.S.A.	Online-Analyse des Rauschens der Spaltkammersignale (Autokorrelation), erlaubt präzise Ermittlung einsetzender Instabilität

TABELLE 7 BETRIEBSERFAHRUNGEN
MIT 9X9 BRENNELEMENTEN, OKTOBER 1988

Reaktor-Typ	Einsatzdatum	Anzahl be- strahlter BE	Maximal erreichter BE-Abbrand Gwd/tU
BWR-3	II. 1983	176	30
BWR-6 (BRD)	IV. 1984	376	33
BWR-3	III. 1986	344	14
BWR (Schweden)	III. 1986	92	18
BWR-4	IV. 1986	560	18
BWR-4	IV. 1987	240	9
BWR-4	I. 1988	4	5

Gesamt:		1.792	

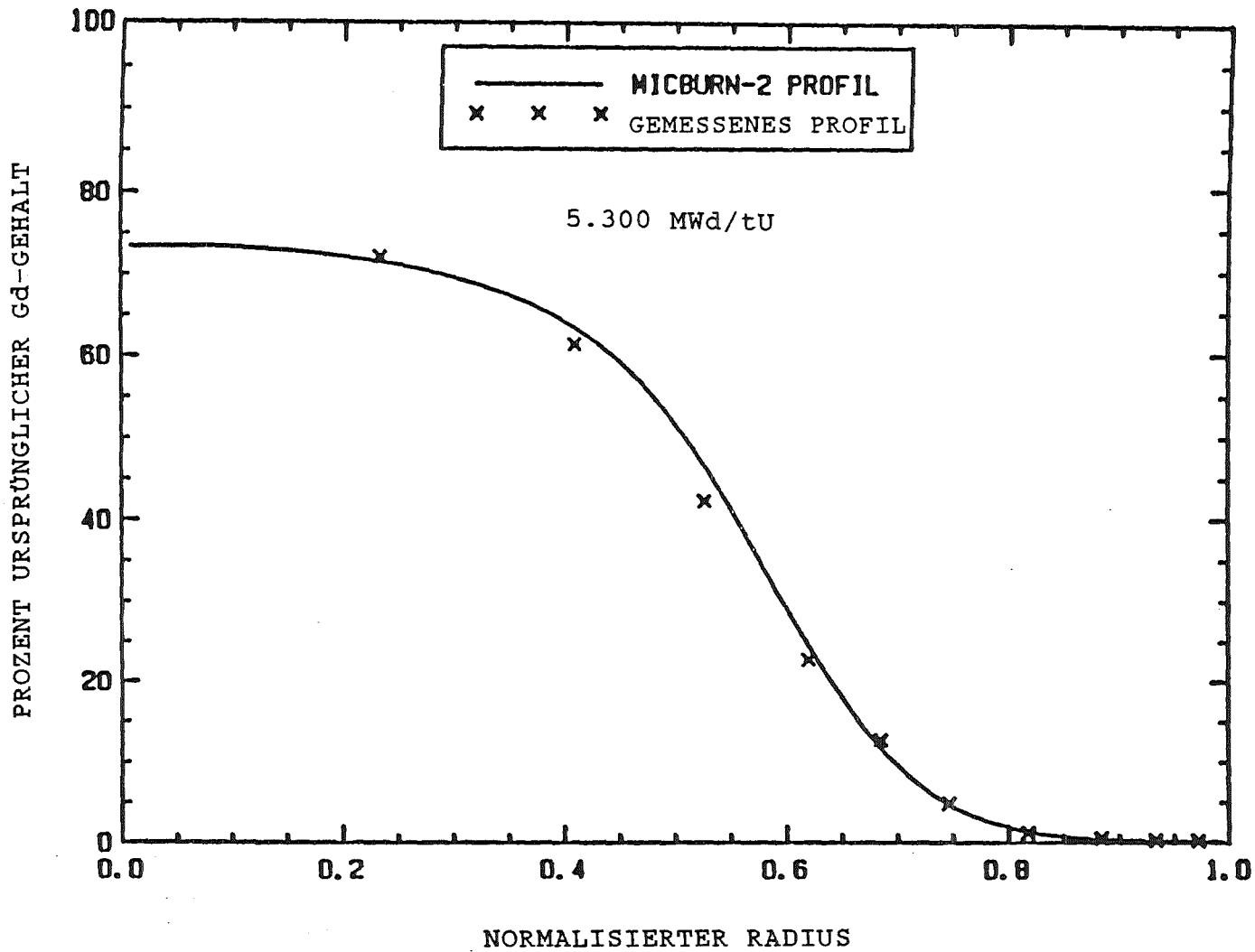


ABBILDUNG 1 Gd-155 KONZENTRATION
(GEMESSEN UND GERECHNET)
ÜBER DEM TABLETTRADIUS

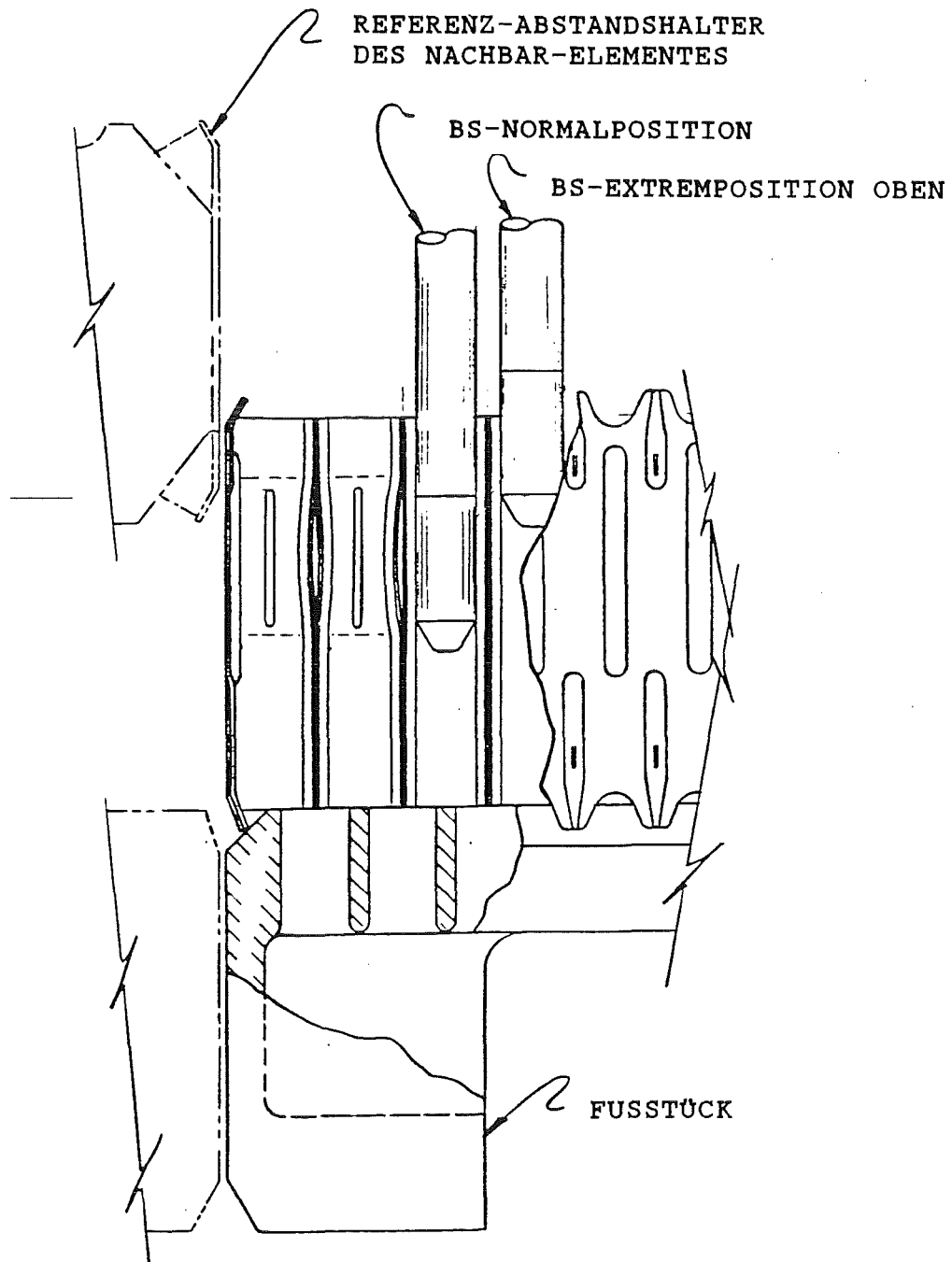


ABBILDUNG 2 FREMDKÖRPERABWEISENDE
AUSLEGUNG, AXIALPOSITION
VON ABSTANDSHALTER
UND BRENNSTAB

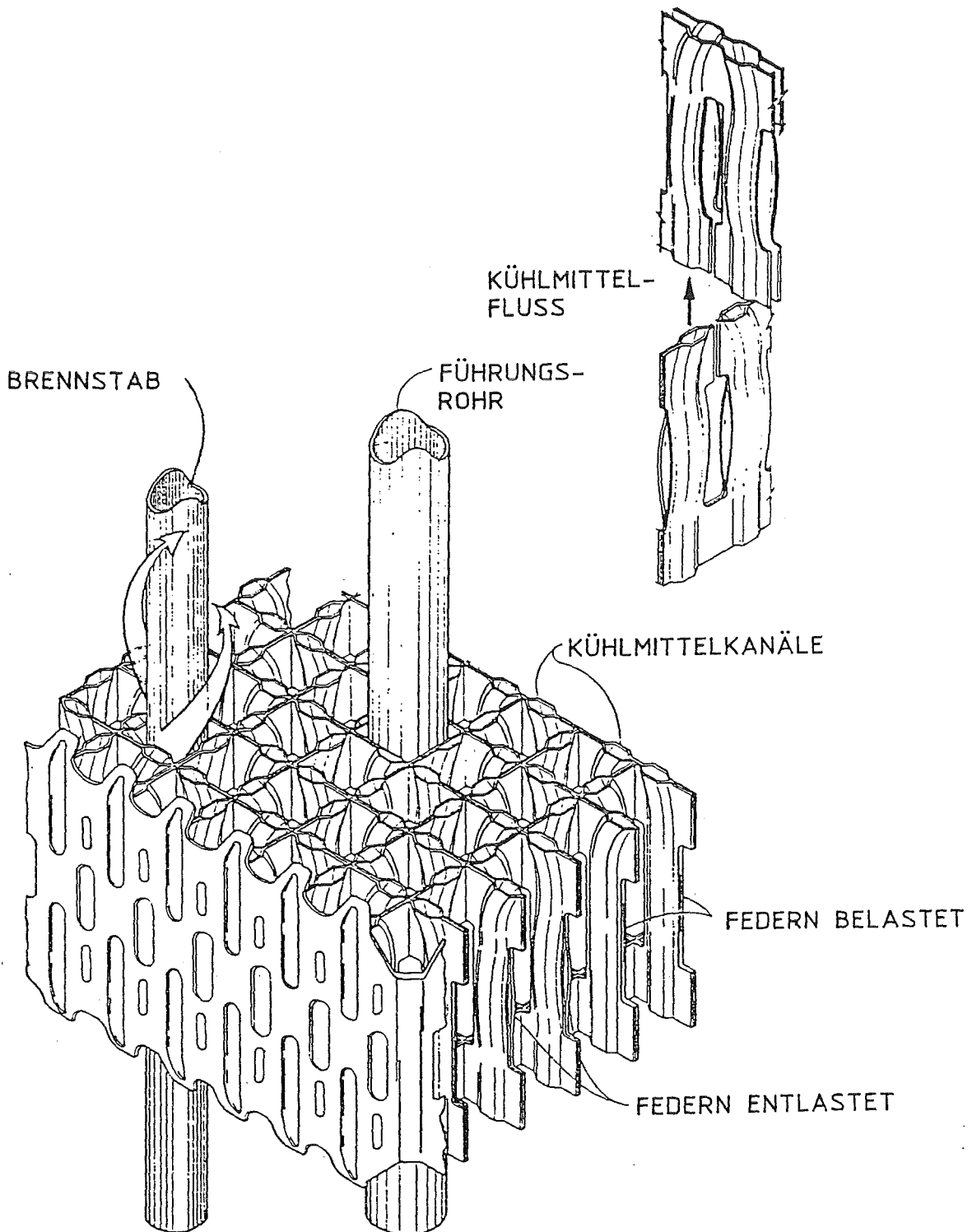


ABBILDUNG 3 HOCHLEISTUNG-
ABSTANDSHALTER

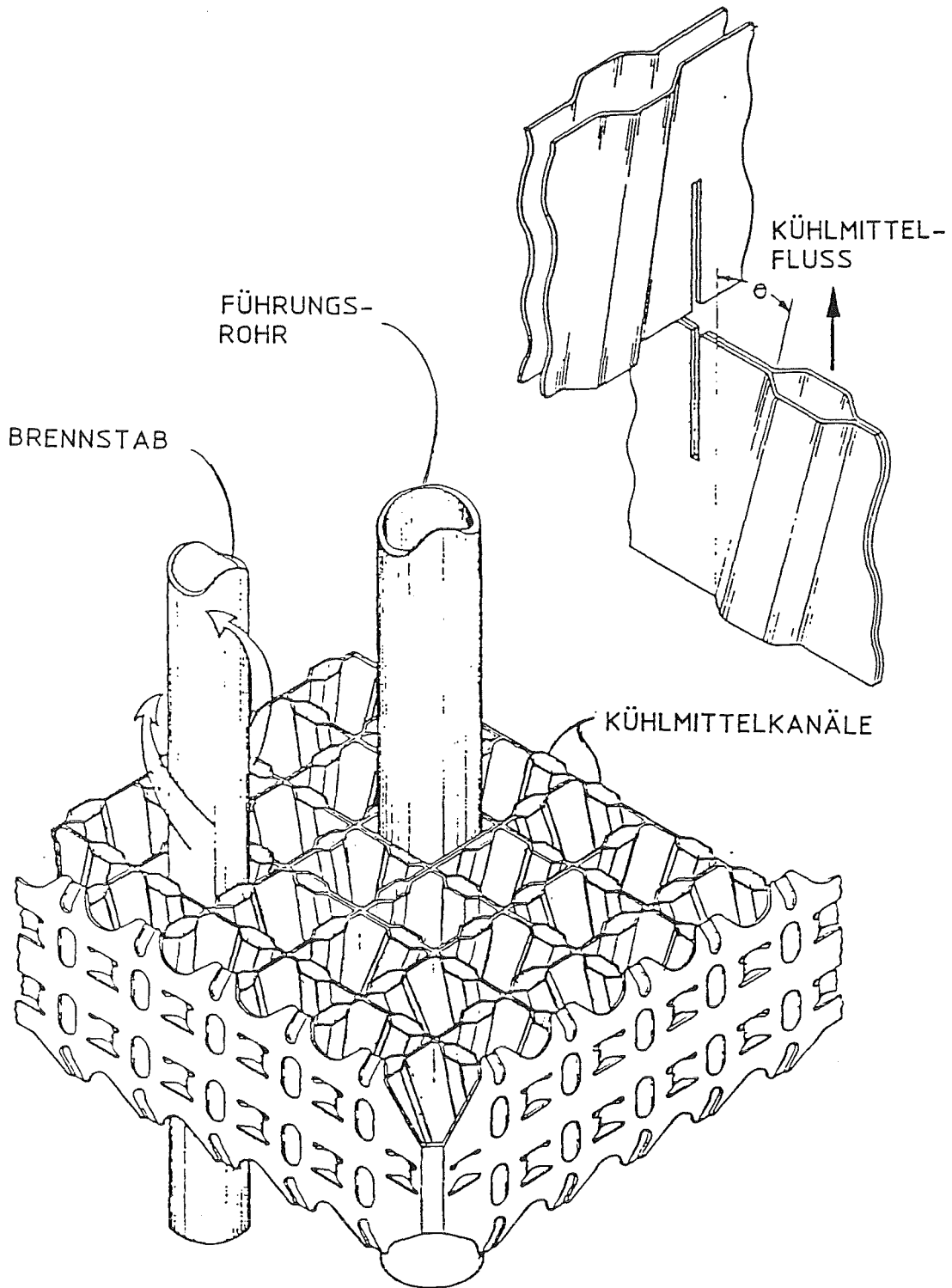


ABBILDUNG 4 MISCHGITTER

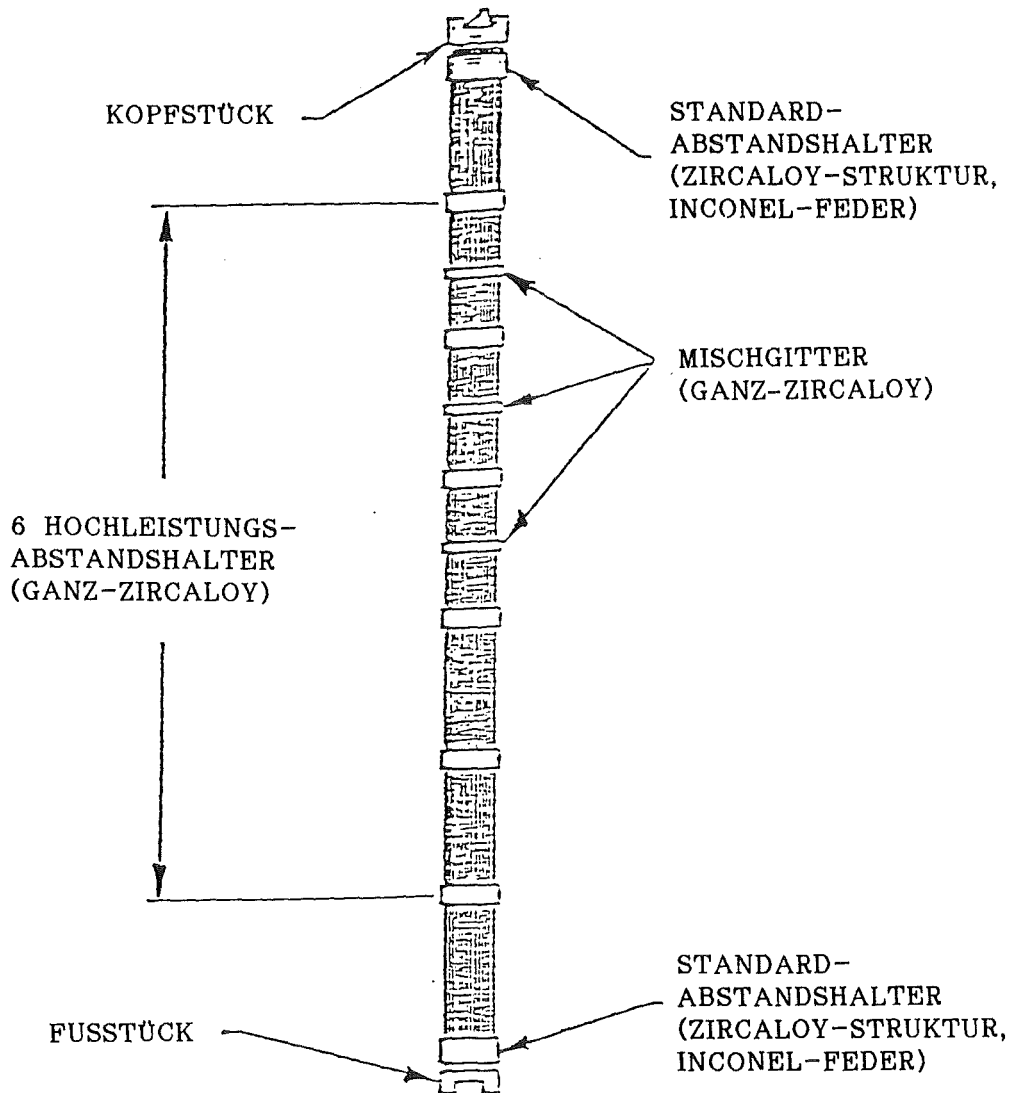
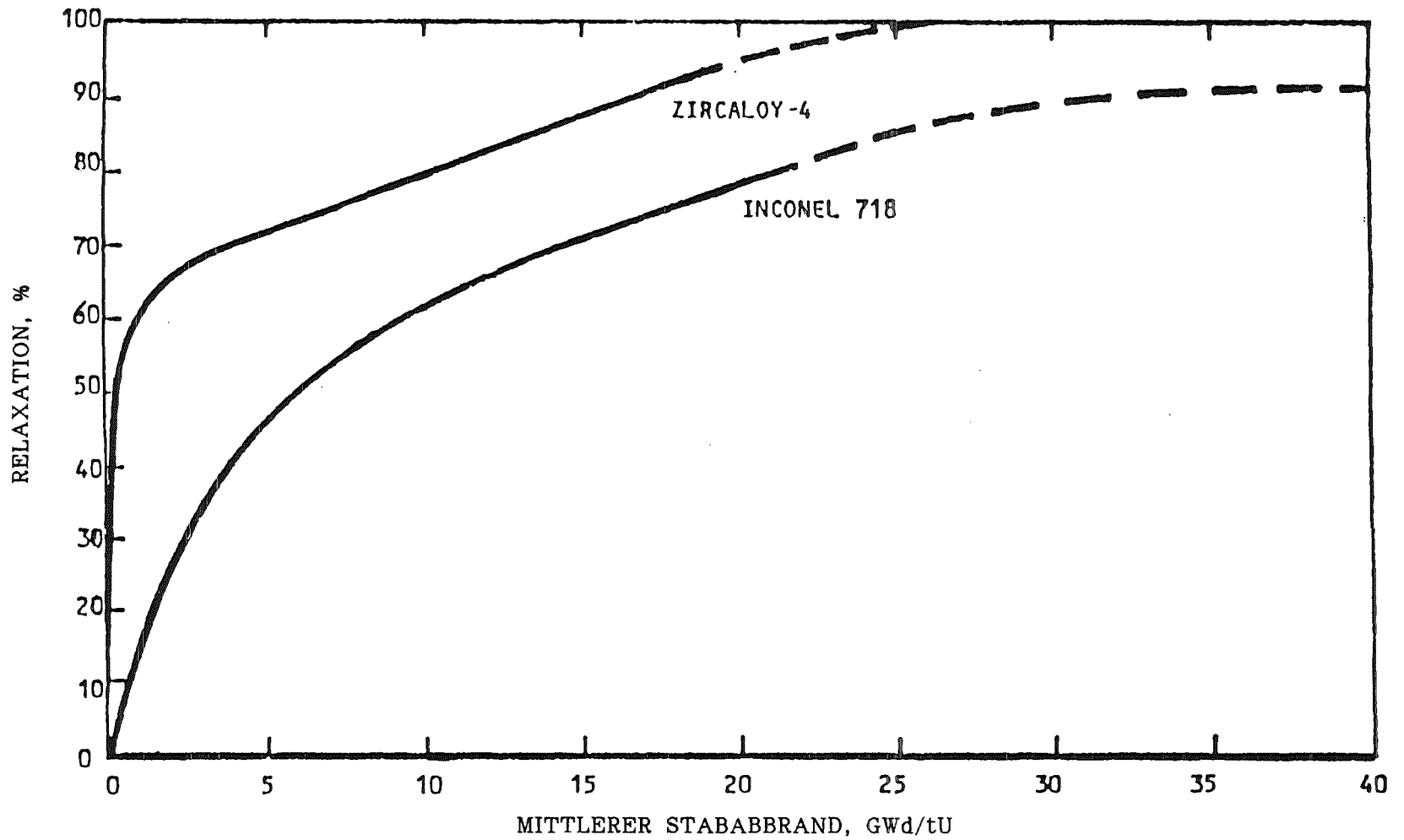


ABBILDUNG 5 BRENNELEMENT MIT
HL-ABSTANDSHALTER
UND MISCHGITTER



VIII-24

ABBIDLUNG 6 RELAXATION VON ZIRCALOY
UND INCONEL ÜBER DEM ABBRAND

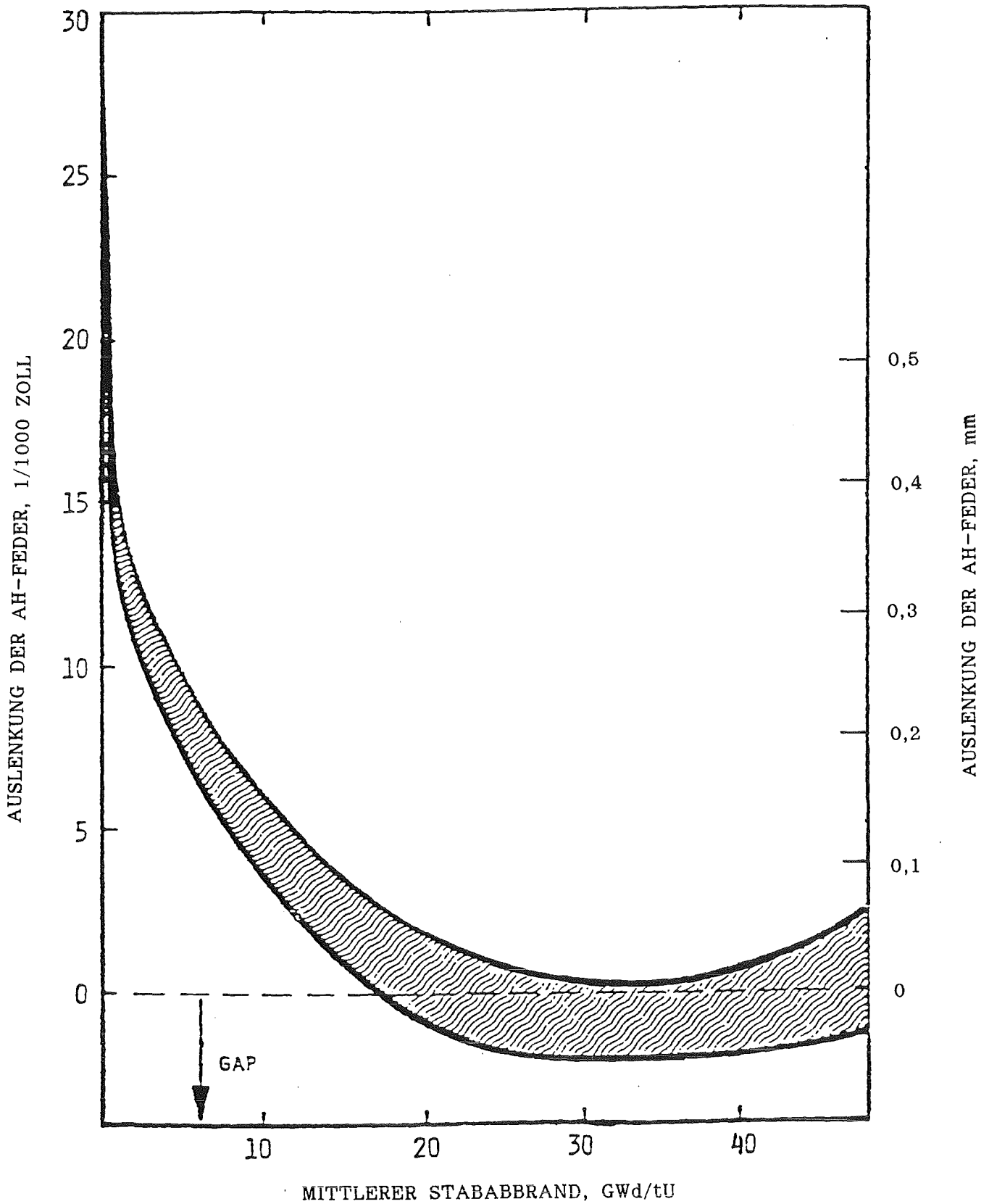


ABBILDUNG 7 BEREICH DER FEDER-
AUSLENKUNG ÜBER
DEM ABBRAND

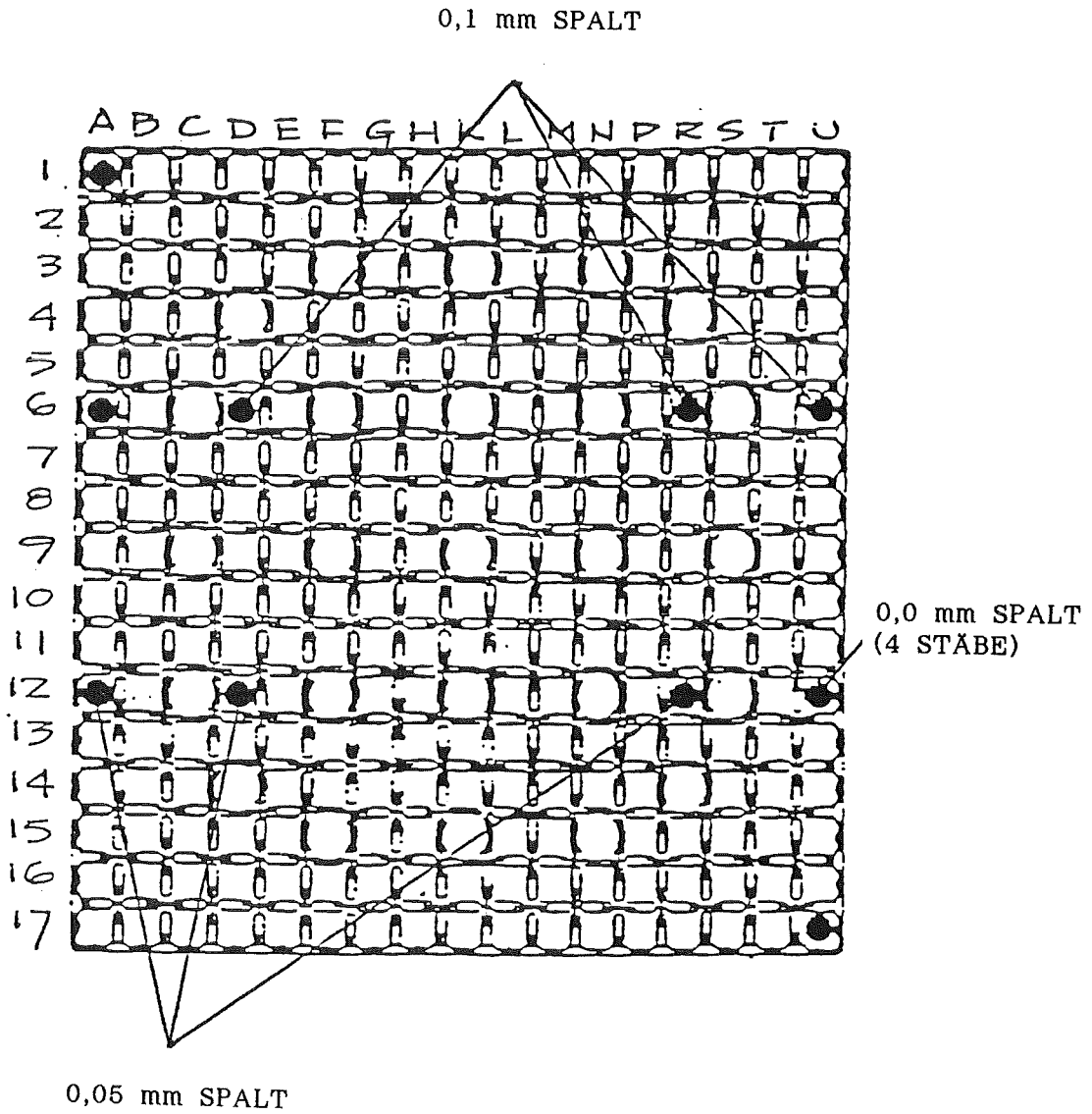


ABBILDUNG 8 VERSUCH ZUR
AH-REIBKORROSION

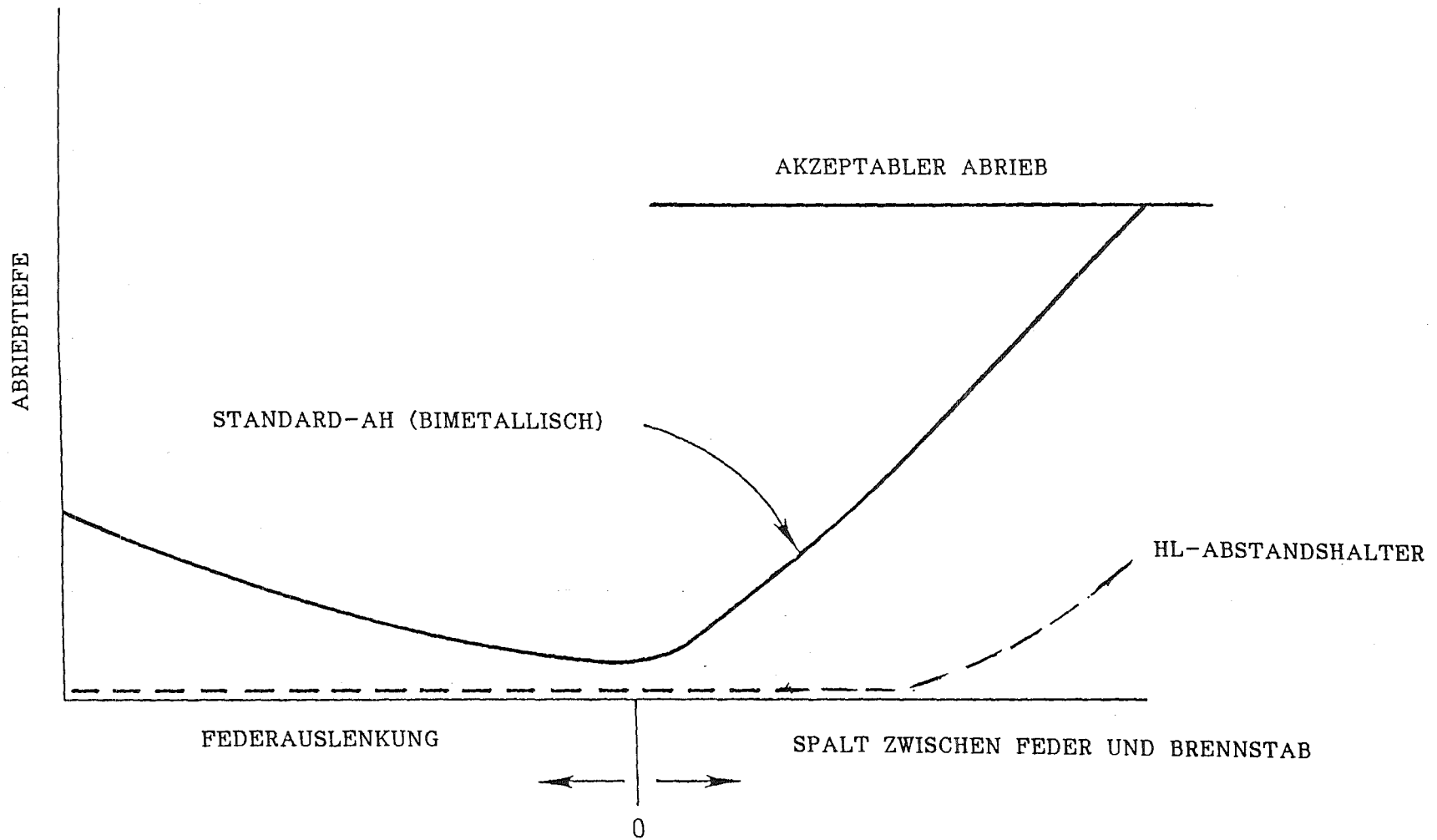
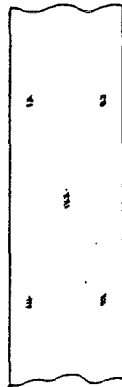


ABBILDUNG 9 BS-REIBKORROSION DURCH ABSTANDSHALTER (QUALITATIV)

STANDARD-ABSTANDSHALTER (BIMETALLISCH)

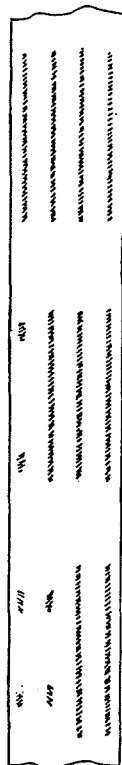


ALLE ZELLEN

PUNKTKONTAKT DURCH:

4 NOPPEN (ZIRCALOY) UND
1 FEDER (INCONEL)

HL-ABSTANDSHALTER (GANZ-ZIRCALOY)



INNENZELLE

LINIENKONTAKT DURCH:

4 FEDERN

RANDZELLE

KONTAKT DURCH:

3 FEDERN UND
2 NOPPEN

ECKZELLE

KONTAKT DURCH:

2 FEDERN UND
4 NOPPEN

ANMERKUNG: ES-OBERFLÄCHE ABGEWICKELT

ABBILDUNG 10 AUSDEHNUNG DER REIBKOR-
ROSION AM BRENNSTAB
DURCH ABSTANDSHALTER

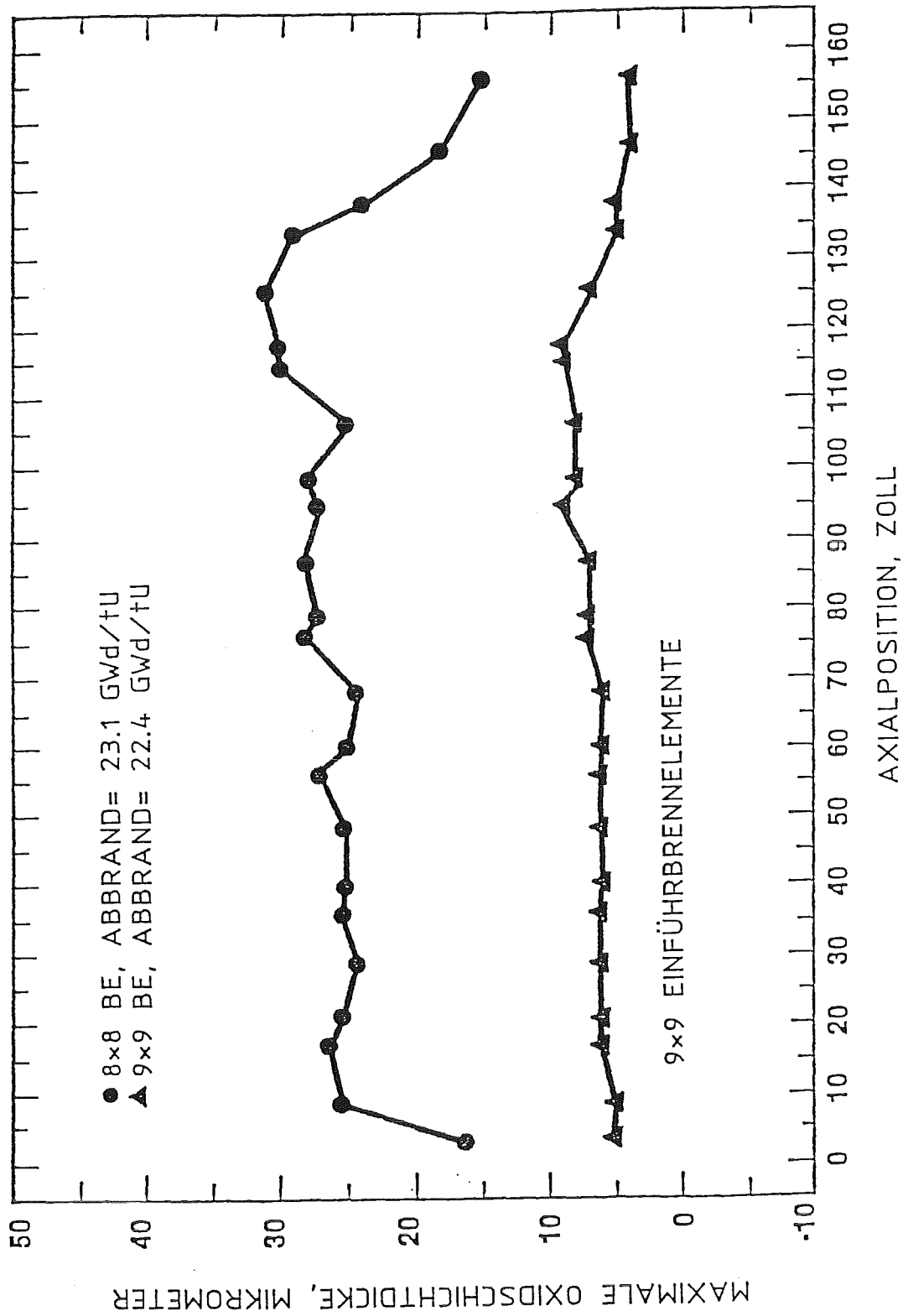


ABBILDUNG 11 BS-OXIDSCHICHTDICKE NACH
 ZWEI STANDZEITEN
 (identische Betriebs-
 bedingungen)

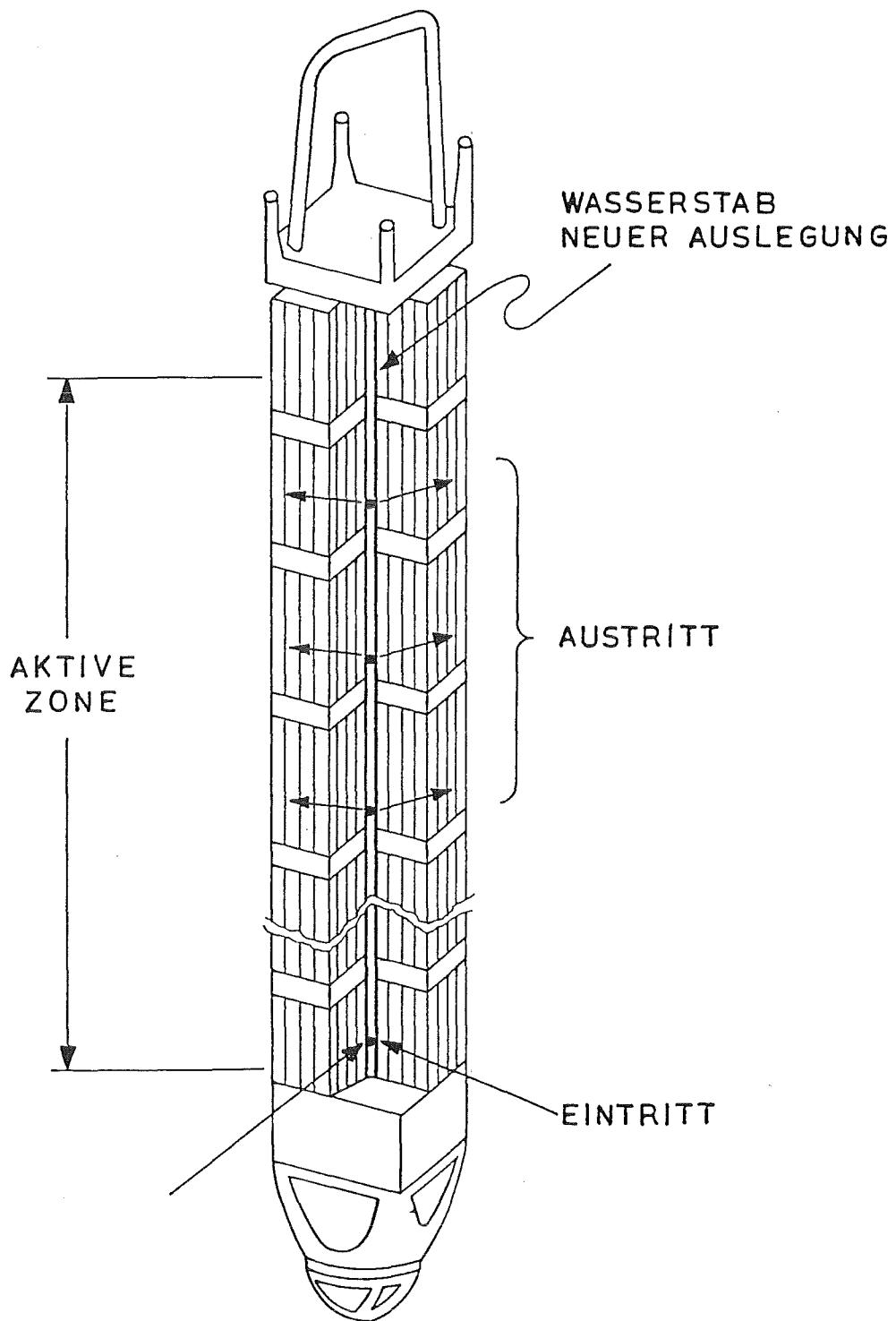


ABBILDUNG 12 KÜHLMITTEL-STROM
DURCH INJEKTIONS-
WASSERSTAB

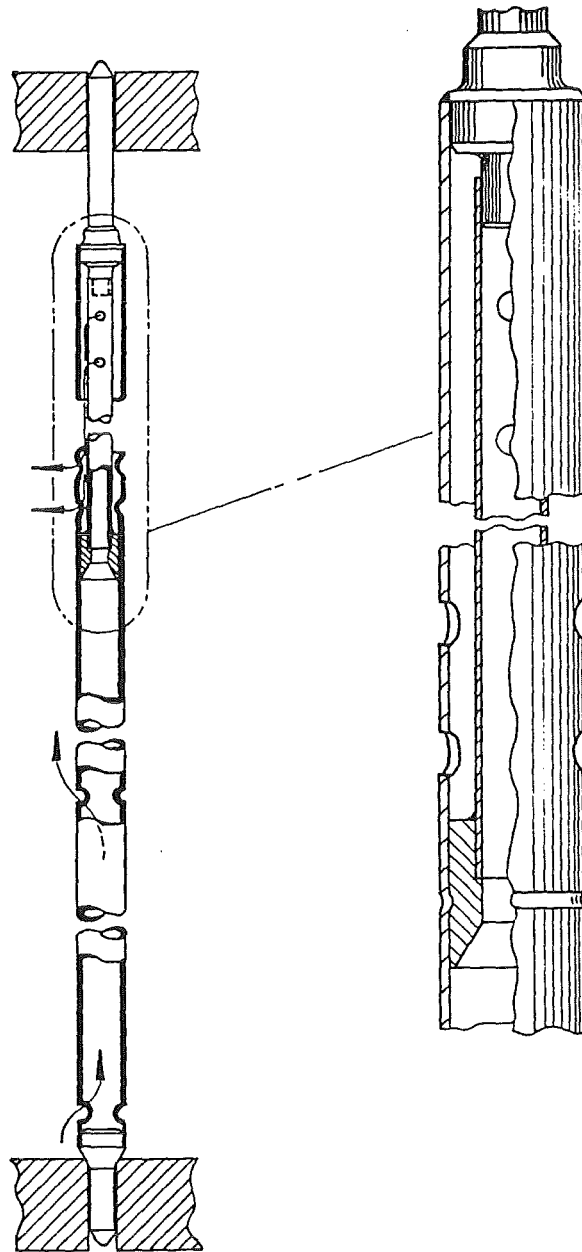


ABBILDUNG 13 FUNKTIONSSCHEMA
DES INJEKTIONS-
WASSERSTABES

Zustand von Spaltprodukten im Brennstoff und Verhalten
bei der Auflösung von Brennelementen einschließlich
MOX-Brennelementen höheren Abbrandes.

H.Kleykamp
R.Würtz

KfK
Siemens

Anmerkung:

Der hier abgedruckte Beitrag ist die Reproduktion eines Vortrages, gehalten anlässlich des 7. Statusberichtes des Projektes Wiederaufarbeitung und Abfallbehandlung am 16./17.März 1988, der inhaltlich weitgehend identisch mit o.g. Beitrag ist.

ZUSAMMENSETZUNG DER RÜCKSTÄNDE BEI DER AUFLÖSUNG BESTRAHLTER LWR-BRENNSTOFFE IN SALPETERSÄURE

H. Kleykamp

Kernforschungszentrum Karlsruhe
Institut für Material- und Festkörperforschung

Bei der Schließung des LWR-Brennstoffkreislaufs im großtechnischen Maßstab ist die Optimierung des Auflösungsschrittes der hoch abgebrannten Brennstoffe innerhalb des Wiederaufarbeitungsprozesses notwendig. Das Ziel sollte die Reduzierung der festen Phasen an Brennstoff, Spaltprodukten, Hüll- und Strukturmaterialien sowie Verunreinigungen in der salpetersauren Lösung zu niedrigeren Anteilen sein, das durch eine Modifizierung von Einzelmaßnahmen bei der Brennstoffherstellung, dem Brennstabschneiden und der Brennstoffauflösung verwirklicht werden kann. Diese Überlegungen erfordern jedoch eine detaillierte Analyse der Zusammensetzung, des chemischen Zustands und der Struktur des Rückstands aus der Auflösung von verschiedenen Brennstoff-Typen bei unterschiedlichen Bestrahlungsbedingungen, wie z.B. Abbrand und Stableistung.

Die bisherigen Untersuchungen an Rückständen aus der LWR- und SBR-Brennstoffauflösung haben gezeigt, daß zwei Gruppen von Phasen auftreten. Die erste Gruppe enthält Reste vom Schneidprozeß, wie Zircaloy, Stahl und oxidiertes Material der Hülle sowie Hartlot, Abstandshalter, Federn, Federteller und Ausgleichscheiben; ferner Brennstoffteilchen, metallische Spaltproduktausscheidungen und Brennstoffverunreinigungen; diese Phasen sind in der vorgegebenen Lösezeit nicht vollständig aufgelöst worden. Die zweite Gruppe besteht aus Spaltprodukten, die in der salpetersauren Lösung zwar aufgelöst wurden, aber während des Auflösungs- bzw. Filtrationsprozesses in einer anderen chemischen Form infolge radiolytischer Einwirkungen aus der Lösung wieder ausgeschieden wurden. Somit besteht die Gesamtheit des Rückstands aus der Summe des nicht oder unvollständig aufgelösten Materials und der Phasen, die wieder ausgeschieden wurden.

Bisher wurden Rückstände von drei UO_2 -Brennstoffen untersucht, die unter verschiedenen Bedingungen, wie Stableistung und Abbrand, bestrahlt worden waren. Die Auflösung wurde nach dem Standardlöseverfahren - also nach der sog. Brennstoffdosierung - in reiner, siedender 7n Salpetersäure mit drei bis fünf Litern Säure pro kg Brennstoff innerhalb fünf bis acht Stunden durchgeführt. Die Filtration erfolgte auf Sintermetallfiltern einen Tag nach Beendigung des Auflösungs Vorgangs. Der Anteil dieser Rückstände liegt zwischen 0,19 % und 0,64 % bezogen auf den zur Auflösung gelangten Brennstoff. Die Abhängigkeit vom Abbrand in

Abb. 1 läßt eine überproportionale Zunahme des Rückstands erkennen. Diese Abhängigkeit gilt auch für LWR-Mischoxid (MOX), das nach dem OCOM- oder AUPuC-Verfahren hergestellt und unter ähnlichen Bedingungen aufgelöst wurde, jedoch liegt der Rückstand um den Faktor zwei höher [1]. Es war in früheren Versuchen festgestellt worden, daß der Anteil des Rückstands niedriger ist, wenn ein höheres Salpetersäure-zu-Brennstoff-Verhältnis bei sonst gleichen Lösebedingungen, wie z.B. dieselbe Anfangsnormalität der Säure, gewählt wird [2].

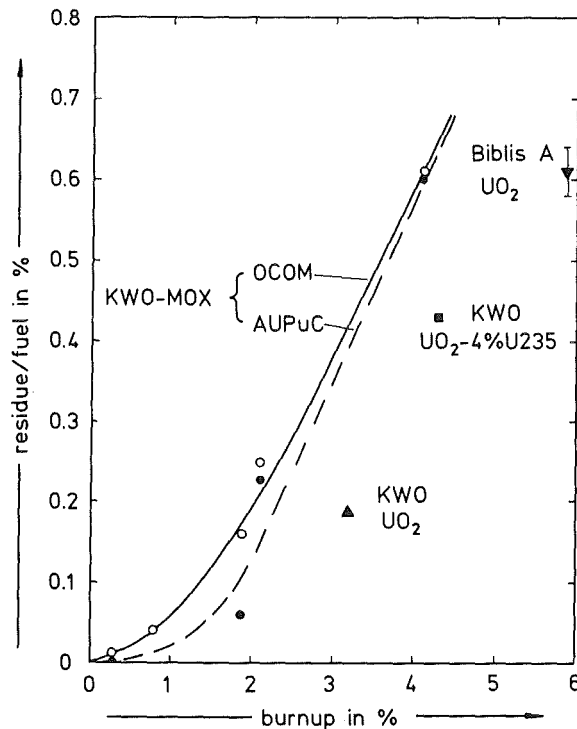


Abb. 1: Rückstand in % des Brennstoffs nach 7n Salpetersäure-Auflösung von OCOM- und AUPuC- $U_{0,95}Pu_{0,05}O_2$ (nach R. Würtz, atw, 1987) und von AUC- UO_2 (eigene Arbeiten) in Abhängigkeit vom Abbrand.

Der für Auflösungsversuche vorgesehene UO_2 -Brennstoff aus den Brennelementen 104 und 127 des Reaktors KWO und des Brennelements 191 des Reaktors Biblis A entstammt Normalleistungsbrennstäben mit einer zeitlich gemittelten linearen Stableistung von etwa 20 kW/m; ersterer wurde in halbtechnischem Maßstab im Milli-Experiment Nr. 7, letzterer im heißen Laborversuch aufgelöst. Daher enthielt der in der Milli-Anlage isolierte Rückstand höhere Anteile an Strukturmaterialien, wie Reste von Federn, Federtellern, Brennstabhülsen, Hüllrohrspänen, Abstandshaltern, Hartlot, Endscheiben (Al_2O_3) und oxidierten Hüllrohrschichten, die insgesamt 14 % des Rückstands* ausmachen [3,4]. Der überwiegende Anteil von 70 % des Rückstands besteht aus Spaltprodukten, die zunächst in die salpetersaure Lösung gegangen sind, aber durch hydrolytische und radiolytische Einflüsse

* Bei allen quantitativen Angaben ist der gebundene Sauerstoff nicht enthalten und wird in der Bilanz gesondert ausgewiesen [4].

als Oxidhydrate aus der Lösung wieder ausgefallen sind. Die REM-Aufnahme in 3000-facher Vergrößerung der Abb. 2 zeigt die nadelförmigen und ineinander verfilzten Niederschläge [3].

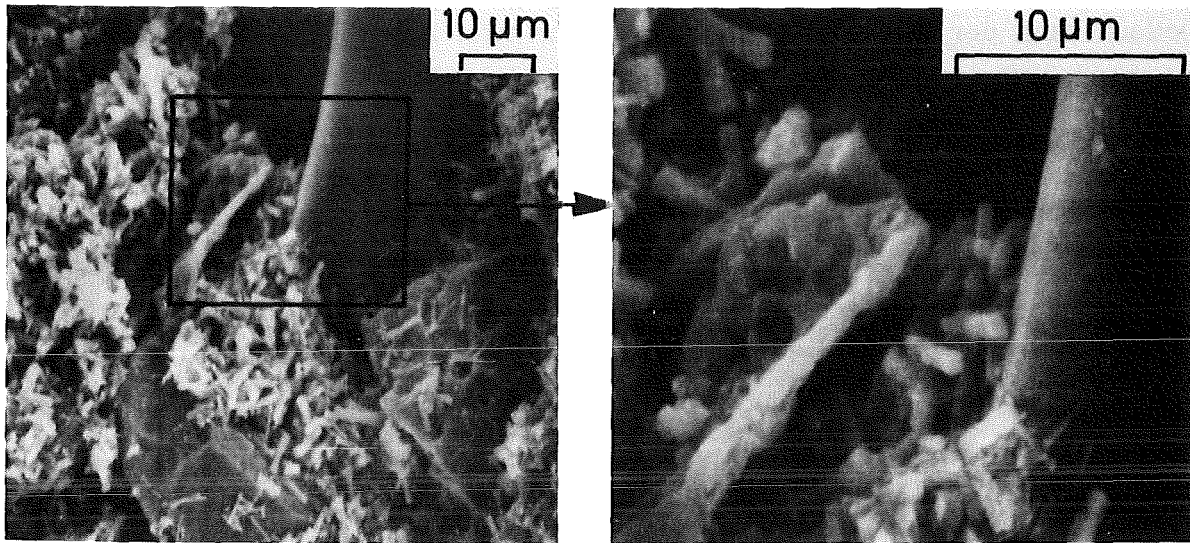


Abb. 2: Rasterelektronenmikroskopisches Bild der nach Auflösung des Brennstoffs aus der salpetersauren Lösung wieder ausgeschiedenen Spaltproduktoxidhydrate; rechts Zircaloy-Span (KWO, BE 104/127, 3,2 % Abbrand).

Die Situation ist verschieden bei Hochleistungsbrennstäben (HL) [2,4]. Der für die Auflösungsversuche vorgesehene UO_2 -Brennstoff mit 4 % U-235/U-ges. wurde im HL-Brennelement 247 des Reaktors KWO zwei Zyklen bei einer zeitlich gemittelten linearen Stableistung von 30 kW/m bestrahlt. Dadurch wuchs der Durchmesser der sich während der Bestrahlung bildenden, die Elemente Molybdän, Technetium, Ruthenium, Rhodium und Palladium enthaltenden Spaltproduktausscheidungen bis auf etwa 5 μm an. Das Gefüge aus zwei Brennstabquerschnitten mit 20 kW/m und 43 kW/m Stableistung in Abb. 3 läßt den Durchmesser der Ausscheidungen mit $\leq 1 \mu m$ und etwa 5 μm erkennen. Da die die Platinmetalle enthaltenden Ausscheidungen in Salpetersäure schwer löslich sind und der

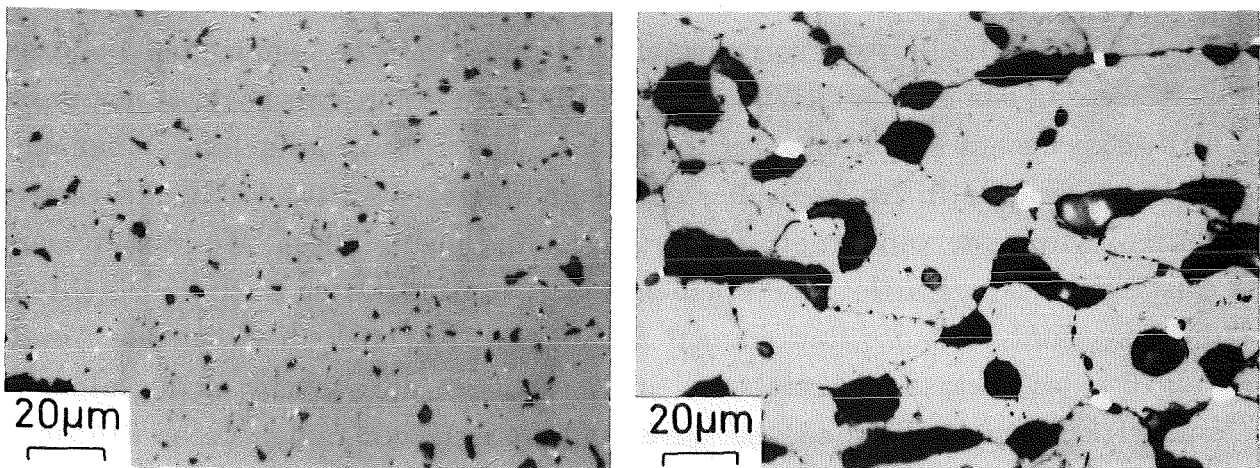


Abb. 3: Metallische Mo-Tc-Ru-Rh-Pd-Ausscheidungen im Brennstoffzentrum eines Normalleistungsbrennstabs ($\chi = 20 \text{ kW/m}$, links) und eines Hochleistungsbrennstabs ($\chi = 43 \text{ kW/m}$) nach etwa 4 % Abbrand.

Auflösungsprozeß den Gesetzen der heterogenen Kinetik unterworfen ist, kann man aus den in Laborversuchen ermittelten Auflösbarkeitskonstanten berechnen [5], daß die zur Verfügung stehende Zeit von fünf bis acht Stunden für eine vollständige Auflösung von 5 µm großen Ausscheidungen nicht ausreichend ist. Etwa 40 % dieser im HL-Brennstab gebildeten Phasen wurden nicht aufgelöst. Der metallische Charakter der Agglomerate ist jedoch im lichtoptischen und elektronenoptischen Gefügebild (Abb. 4, links oben) nicht erkennbar.

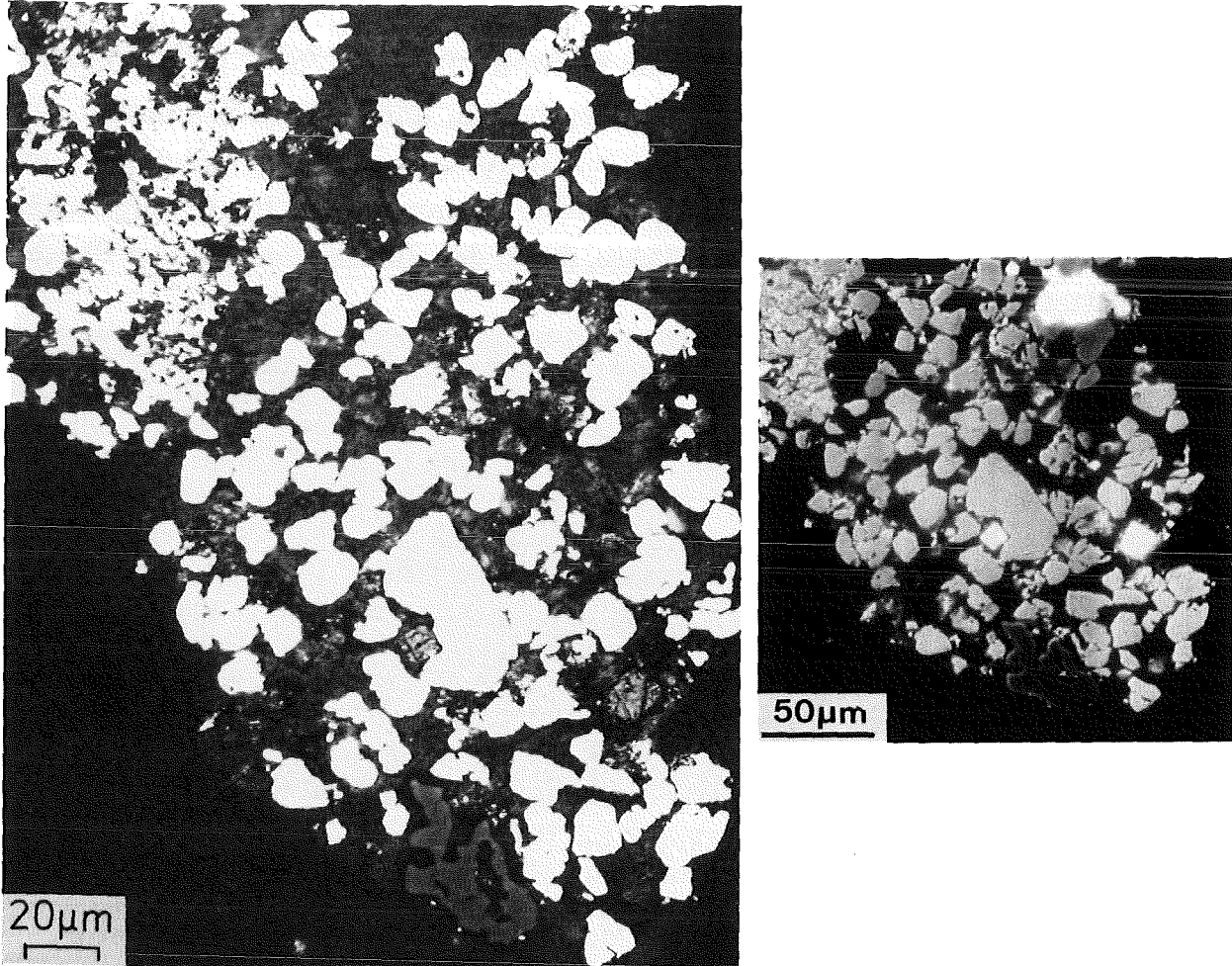


Abb. 4: Lichtoptisches und rasterelektronenmikroskopisches Bild der nach unvollständiger Auflösung des Brennstoffs verbliebenen metallischen Mo-Tc-Ru-Rh-Pd-Phasen (links oben), der quadratischen AgCl-Ausscheidungen und der Stahl- und Al₂O₃-Verunreinigungen (KWO, HLBE 247-BE 365, 4,3 % Abbrand).

Die erste umfassendere Element- und Strukturanalyse wurde durchgeführt am Rückstand aus einem UO₂-Hochabbrandbrennstab mit 3,2 % U-235-Anfangsanreicherung, der im Brennelement 191 des Reaktors Biblis A bei einer zeitlich gemittelten Stabileistung von 21 kW/m über fünf Zyklen bis zu einem Abbrand von 5,9 % (55900 MWd/t Schwermetall) bestrahlt worden war [4,6]. Als Mittelwert aus verschiedenen Auflösungsversuchen ergab sich als Verhältnis Rückstand/Brennstoff der Wert 0,61 % (s. Abb. 1). Die Fraktion der Sekundärpartikel über 3 µm lag bei 9 %, die zwischen 1 und 3 µm bei 91 %. Kleinere Teilchen befanden sich in der filtrierten Lösung.

Durch qualitative Röntgenmikroanalyse wurden folgende ungelöste Bestandteile und aus der Lösung wieder ausgeschiedene Sekundärpartikel beobachtet: Cr-Ni-Stahl, Fe-Ti-Legierung, Zircaloy, Fe-Cr-Oxid, Fe-Ti-Oxid, Zr-Sn-Oxid (oxidierte Hülle), Silicate und unvollständig aufgelöste, während der Bestrahlung gebildete Mo-Tc-Ru-Rh-Pd-Spaltproduktausscheidungen. Diese erreichen unter den genannten Bestrahlungsbedingungen einen Durchmesser von etwa 1 μm . Nur die größten Teilchen über 1 μm sollten sich in der Salpetersäure nicht vollständig aufgelöst haben. Der überwiegende Anteil des Rückstands besteht aus den aus der Lösung wieder ausgeschiedenen Phasen, den Mo-Tc-Ru-Rh-Pd-Te-Zr-Sn-U-Pu-Oxidhydraten, die auch die mitgefällten Actiniden enthalten, und dem Ba-Sr-Peroxid. Die Morphologie dieser Phasen nach der 3 μm -Filtration ist in Abb. 5 und 6 und nach der anschließenden 1 μm -Filtration in Abb. 7 dargestellt. Im lichtoptischen Detailbild ist die helle, metallische Phase, die in den dunklen, oxidischen Phasen eingebettet ist, deutlich erkennbar.

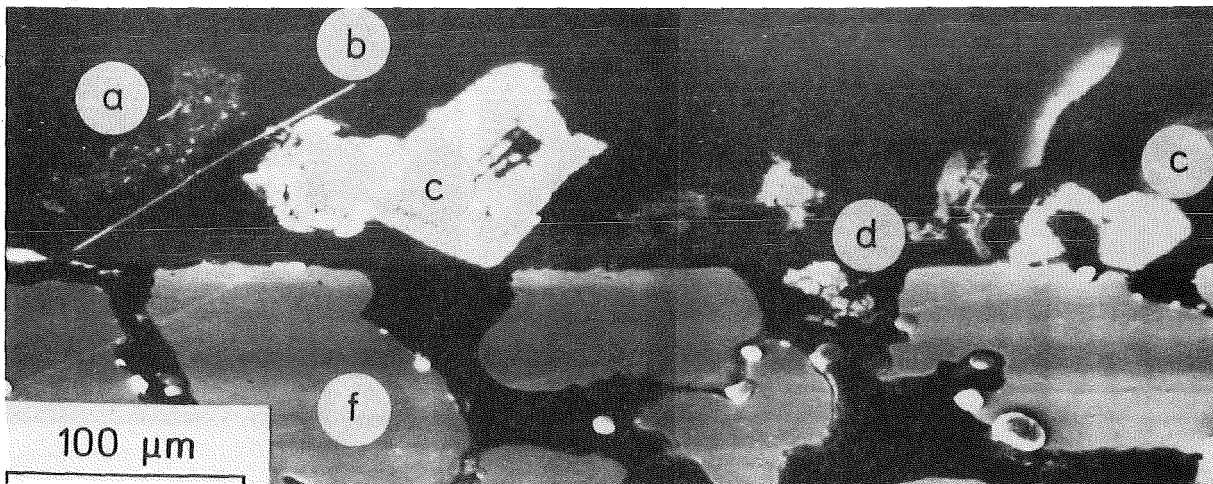


Abb. 5: Rasterelektronenmikroskopisches Bild ungelöster Partikel und wieder ausgeschiedener Phasen nach 7n Salpetersäure-Auflösung des Brennstoffs; a: Fe-Ti-Metall und -Oxid; b: Agglomerat der Mo-Tc-Ru-Rh-Pd-Legierung; c: $\text{Ba}_{0,9}\text{Sr}_{0,1}\text{O}_2$; d: Mo-Tc-Ru-Rh-Pd-Oxidhydrat; f: Sintermetallfilter (3 μm -Filtration, Biblis A, BE 191).

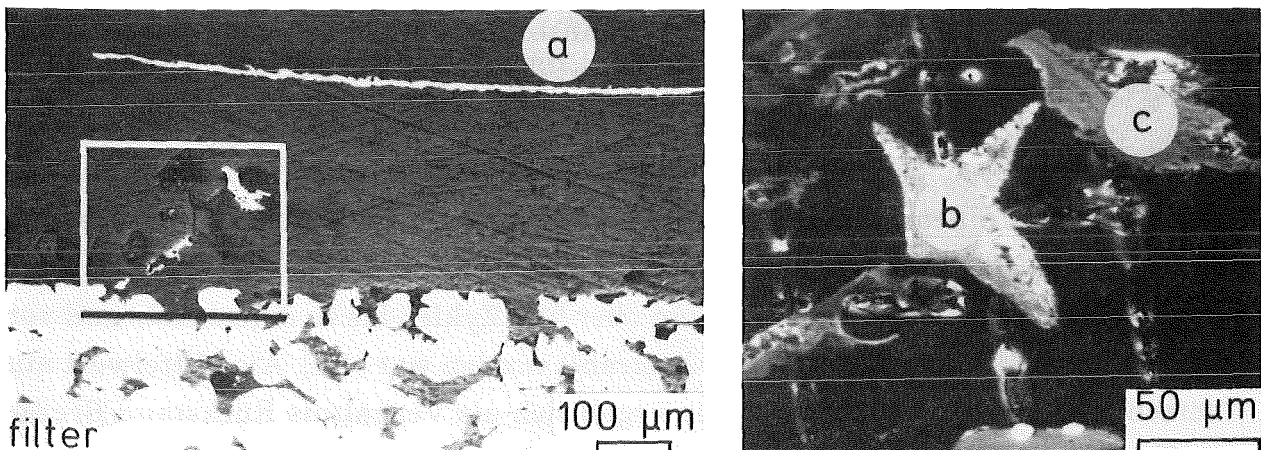
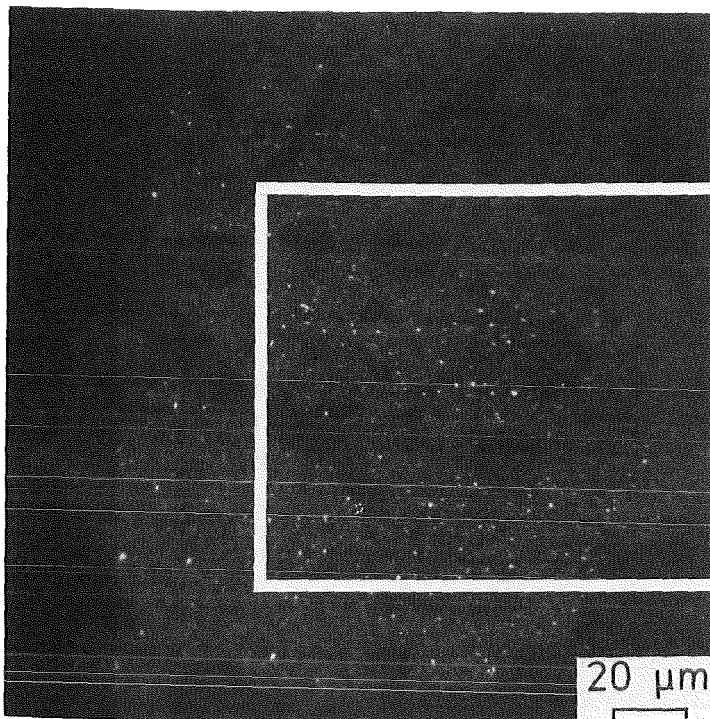
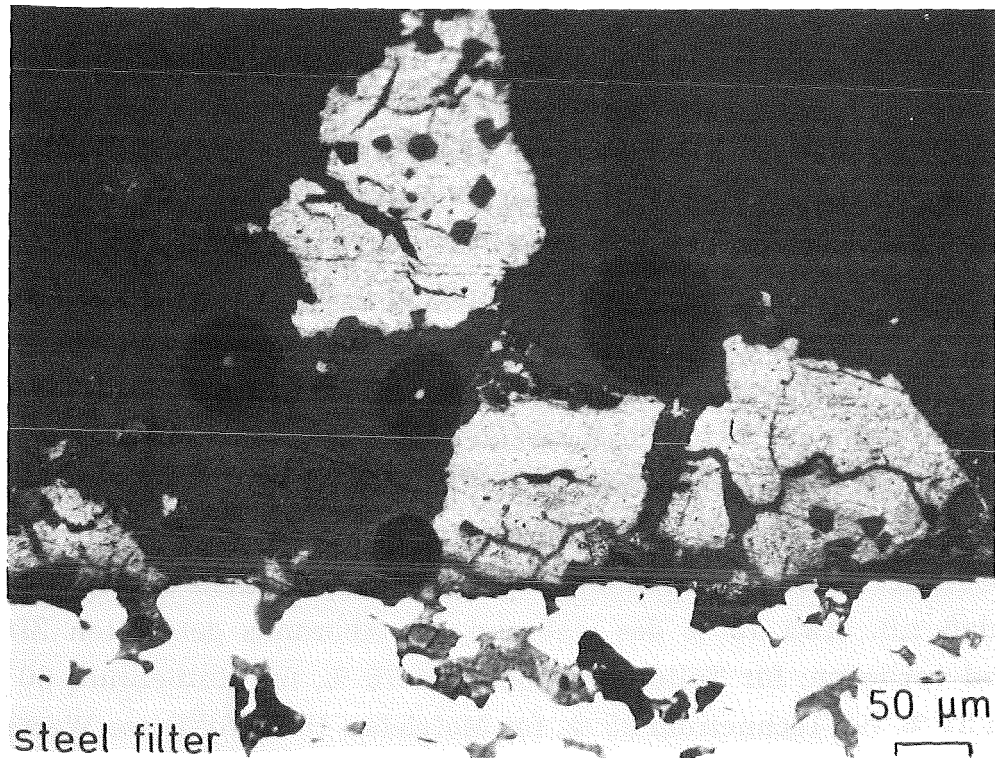
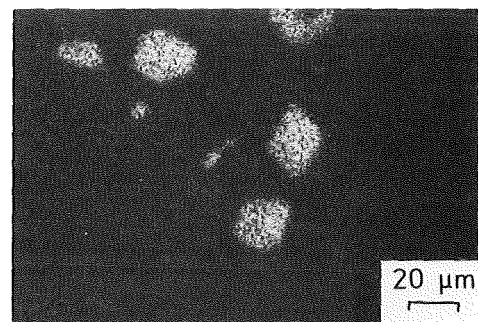


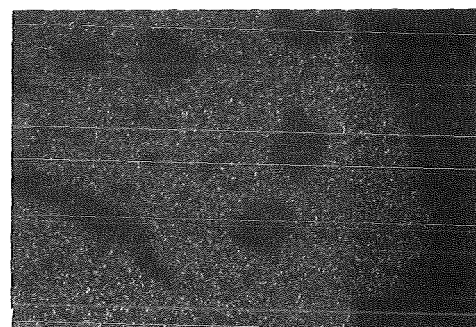
Abb. 6: Lichtoptisches und rasterelektronenmikroskopisches Bild ungelöster Partikel, a: $\text{Zr}_{0,99}\text{Sn}_{0,01}\text{O}_2$, c: Fe und Fe-Oxid, und wieder ausgeschiedener Phasen, b: $\text{Ba}_{1-x}\text{Sr}_x\text{O}_2$ (3 μm -Filtration, Biblis A, BE 191).



helle Ausscheidungen: Mo-Tc-Ru-Rh-Pd-Legierung



Ba(Sr)



Ru(Mo,Tc,Rh,Pd)

Abb. 7: Lichtoptische Gefügebilder sowie Ba- und Ru-Elementverteilungsbilder der unvollständig aufgelösten Mo-Tc-Ru-Rh-Pd-Legierung und der wieder ausgeschiedenen Mo-Tc-Ru-Rh-Pd-Oxidhydrat- und $Ba_{1-x}Sr_xO_2$ -Phasen (1 μm-Filtration, Biblis A, BE 191).

Die quantitative Elementanalyse in den verschiedenen Phasen wurde mit der Röntgenmikrosonde durch Punktanalysen und anschließende ZAF-Korrektur für diejenigen Komponenten durchgeführt, deren Konzentration in der betreffenden Phase i.a. etwa 0,5 % übersteigt. Die Gesamtkonzentration aller erfaßten Elemente in den beiden Filterkuchen der 3 µm- und 1 µm-Filtration ergibt sich durch eine Flächenintegration und geschätzte Werte für die Dichte der Phasen. Die Gesamtzusammensetzung des Rückstands teilt sich auf in 0,8 % Actiniden, 81,9 % Spaltprodukte, 4,9 % Strukturmaterial und Verunreinigungen, 12,4 % Sauerstoff. Hiervon macht Ruthenium mit 34,2 % des Rückstands den größten Anteil aus [4,6]. In Abb. 8 sind die Ausbeuten von 14 wichtigeren Spaltprodukten und ihr Anteil im Lösungsrückstand in kg Spaltprodukt pro t UO₂ für den Biblis A-UO₂-Brennstoff nach 5,9 % Abbrand und 4 Jahren Abkühlzeit nach den Ergebnissen der Röntgenmikroanalyse dargestellt. Aus dem Histogramm geht hervor, daß z.B. etwa 75 % des während des Abbrands gebildeten Zinns im Rückstand vorliegen; für Tellur gilt ebenfalls 75 %, für Ruthenium 60 %, für Rhodium 51 %, für Technetium 25 %, für Molybdän 19 % [6]. Diese Werte sagen

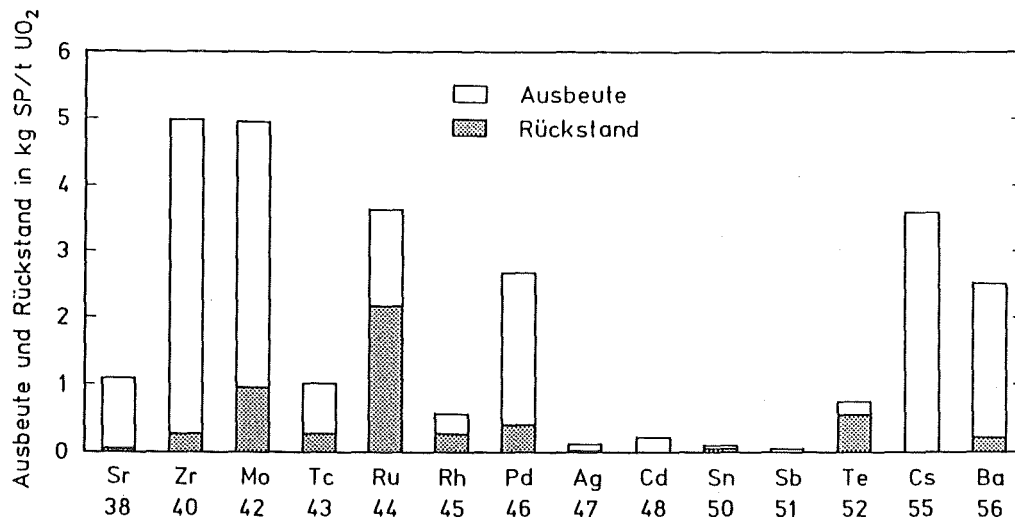


Abb. 8: Spaltproduktausbeute und Anteil im Lösungsrückstand in kg pro t UO₂; Biblis A-UO₂-Brennstoff mit $\bar{x} = 21$ kW/m nach 5,9 % Abbrand und 4 Jahren Kühlzeit.

jedoch noch nichts über den chemischen Zustand der Spaltprodukte aus. Aus den Röntgenbeugungsuntersuchungen der Filterkuchen konnte abgeschätzt werden, daß etwa 10 % des gesamten Rückstands aus der unvollständig aufgelösten metallischen, hexagonalen Mo-Tc-Ru-Rh-Pd-Phase mit den Gitterkonstanten $a = 275,0$ pm und $c = 441,5$ pm bestehen, deren mittlere Zusammensetzung nach den Ergebnissen der Röntgenmikroanalyse und Röntgenbeugung eines Nachbarquerschnitts desselben Brennstabs und nach den Phasenuntersuchungen im quaternären System Mo-Ru-Rh-Pd [7] bei etwa 35 At.% Mo, 40 At.% Tc + Ru und 25 At.% Rh und Pd bestehen (s. Abb. 9). Die anderen Spaltprodukte liegen ausschließlich im nachgefällten Zustand als Oxide oder Oxidhydrate vor. Bei Berücksichtigung

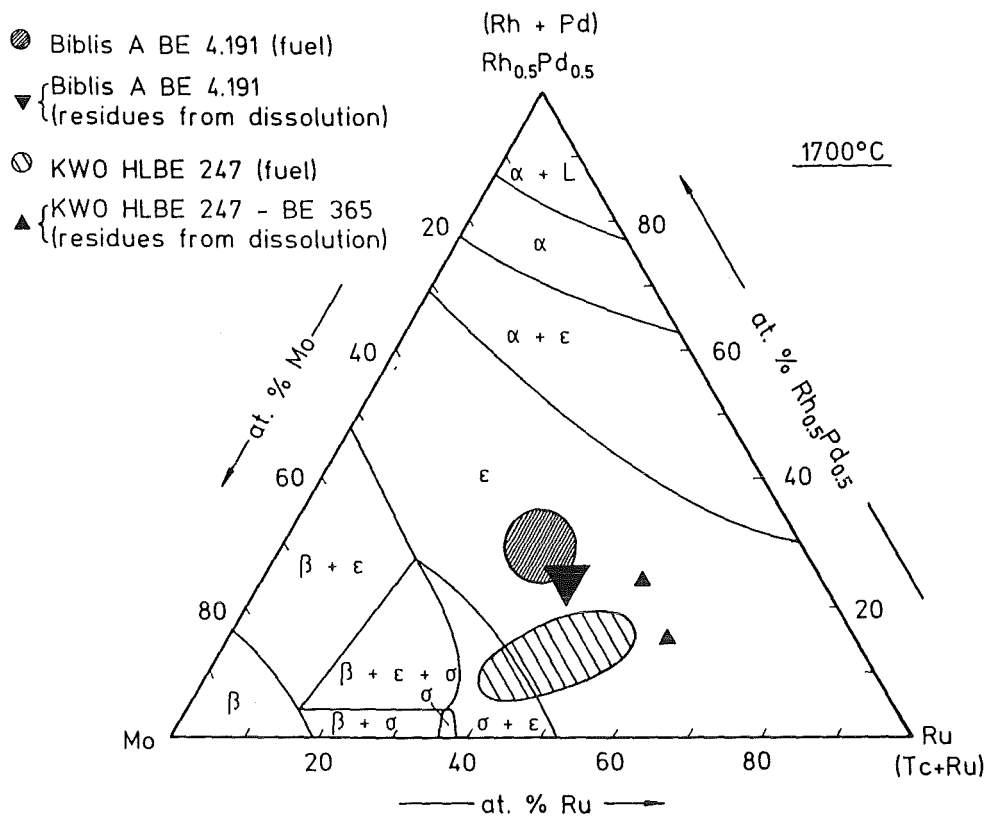


Abb. 9: Zusammensetzung der metallischen Mo-(Tc-Ru)-(Rh-Pd)-Spaltproduktphasen in bestrahltem LWR-Brennstoff und nach dessen Auflösung in Salpetersäure. Die Zusammensetzung ist projiziert auf den isothermen Schnitt des pseudoternären Systems Mo-Ru-Rh_{0,5}Pd_{0,5} bei 1700 °C.

dieser Werte läßt sich der chemische Zustand von zehn quantitativ bestimmten Spaltprodukten im Rückstand angeben; sie sind als ungelöste Legierung und als oxidischer Niederschlag in % der Ausbeute in Abb. 10 dargestellt. Die Actiniden werden in oxidischer Form, die Hülle, das Strukturmaterial und die Verunreinigungen in metallischer und oxidischer Form im Rückstand nachgewiesen.

Es wurde vermutet, daß die in oxidischer Form im Rückstand beobachteten Spaltprodukte in den überwiegenden Fällen als binäre Oxide vorliegen. Diese Annahme kann durch die Ergebnisse der Röntgenmikroanalyse und Röntgenbeugung nicht bestätigt werden. Das Muster der Beugungslinien, die nicht zur metallischen, hexagonalen ϵ -(Mo,Tc,Ru,Rh,Pd)-Phase gehören, kann nicht den binären Oxiden UO_2 , MoO_3 , RuO_2 , RhO_2 , TeO_2 , BaO zugeordnet werden. Vielmehr muß man annehmen, daß ein durch die Radiolyse des Wassers induzierter Prozeß zur Fällung eines oder weniger vielkomponentiger (U,Pu,Mo,Tc,Ru,Rh,Pd,Zr,Sn,Te)-Oxidhydrate geführt hat. Die Struktur hat ein kompliziertes, unbekanntes Linienmuster. Für die Mitfällung von Uran und Plutonium spricht deren Massenverhältnis 7:1. Sollten ungelöste Brennstoffpartikel im Rückstand vorliegen, wäre ein U/Pu-Verhältnis von etwa 70:1 zu erwarten [8]; diese können im Rückstand somit ausgeschlossen werden. Die Bildung des durch Röntgenmikroanalyse eindeutig

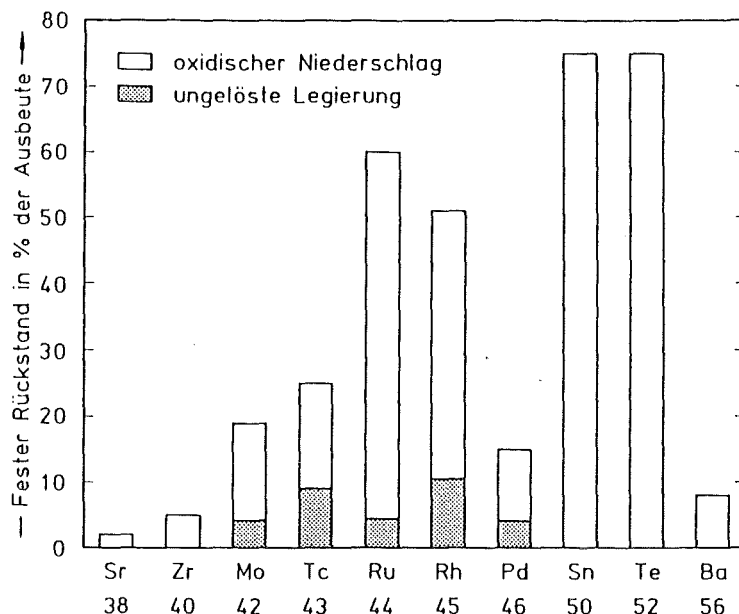
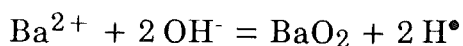
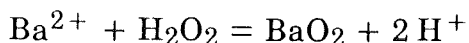
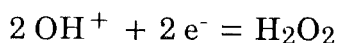


Abb. 10: Chemischer Zustand der Spaltprodukte im Lösungsrückstand in % ihrer Ausbeute; Biblis A-UO₂-Brennstoff mit $\chi = 21$ kW/m nach 5,9 % Abbrand und 4 Jahren Kühlzeit.

nachgewiesenen und durch Röntgenbeugung vermuteten Ba_{1-x}Sr_xO₂, $x \ll 1$, läßt sich durch eine radiolytisch induzierte Reaktion erklären. Dabei spielen die stark oxidierende Wirkung des OH-Radikals und die solvatisierten Elektronen eine entscheidende Rolle. Folgende Reaktionen sind denkbar:



oder



Die phänomenologische Beschreibung und die Charakterisierung der Nachfällungen sind noch unvollkommen; die bisher gemachten Vorschläge zum radiolytisch induzierten Nachfällungsmechanismus bedürfen einer Überprüfung und einer weiteren Klärung.

Zusammenfassung und Ausblick

Die bisherigen Auflösungsversuche an bestrahltem LWR-UO₂-Brennstoff haben gezeigt:

- die Masse des festen Rückstands bezogen auf den Brennstoff wächst überproportional mit dem Abbrand, der Plutoniumanteil liegt jedoch unter 0,2 % des Rückstands;
- die Zusammensetzung des Rückstands hängt von der Stabileistung des Brennstabs, also von der Brennstofftemperatur während der Bestrahlung ab;

- der überwiegende Anteil im Rückstand von Brennstäben normaler Stableistung sind Spaltprodukte, die nach der Salpetersäure-Auflösung als Oxidhydrate wieder ausgefallen sind; der geringere Teil verbleibt ungelöst im Rückstand;
- die Nachfällungen können durch radiolytische Einflüsse erklärt werden;
- die relative Konzentration der Komponenten in den Nachfällungen entspricht nicht der Spaltproduktausbeute, d.h. die Nachfällungen sind elementspezifisch; Ruthenium macht den größten Anteil im Rückstand aus und befindet sich dort zu etwa 60 % bezogen auf die Ausbeute.

Die Beantwortung einer Reihe offener Fragen wird den Schwerpunkt der künftigen Untersuchungen an festen Rückständen nach der Auflösung bestrahlter LWR-Brennstoffe bilden:

- Prüfung der Anwesenheit und des chemischen Zustands des Jods;
- Untersuchung der Zusammensetzung der Rückstände bei Auflösungsversuchen mit Säuredosierung;
- Zusammensetzung und chemischer Zustand der Rückstände aufgelöster LWR-MOX-Brennstoffe;
- Klärung des Mechanismus der Nachfällungen.

Literatur

- [1] R. Würtz, Atomwirtschaft 32 (1987) 190
- [2] H. Kleykamp, H.D. Gottschalg, R. Pejsa, H. Wertenbach, unveröffentlichter Bericht (1982)
- [3] H. Kleykamp, KfK-2665 (1978); report Dounreay-trans 823 (1979); Trans. ANS 31 (1979) 508
- [4] H. Kleykamp, RECOD 87, Paris 1987, Tagungsber. Bd. 2, S. 583
- [5] H. Kleykamp, Jahrestagung Kerntechnik, München 1985, Tagungsber. S. 329
- [6] H. Kleykamp, H.D. Gottschalg, R. Pejsa, W. Kohnert, unveröffentlichter Bericht (1987)
- [7] J.O.A. Paschoal, H. Kleykamp, F. Thümmel, Z. Metallk. 74 (1983) 652
- [8] H. Kleykamp, H.D. Gottschalg, R. Fritzen, unveröffentlichter Bericht (1988)

Auswirkungen des höheren Abbrandes von Brennelementen auf das
chemische Fließbild des PUREX-Prozeß

L. Finsterwalder, A.H. Stollenwerk
Wiederaufarbeitungsanlage Karlsruhe
November 1988

1. Einleitung

Mein Beitrag beschäftigt sich mit den Auswirkungen höheren Abbrandes von Leistungsreaktorbrennelementen auf das Fließschema des Wiederaufarbeitungsprozesses.

Ich möchte den Vortrag gliedern in

- Welche Merkmale kennzeichnen Brennelemente, die für höheren Abbrand ausgelegt sind?
- Wie sieht das Nuklidinventar abhängig vom Abbrand im Reaktor aus und welche physikalischen Größen haben sich beim abgebrannten Brennelement geändert?
- Welche Auswirkungen sind bei der Brennelementhantierung, dem mechanischen und chemischen Aufschluß zu erwarten?
- Welche abbrandabhängigen Größen beeinflussen den chemischen Trennprozeß und welche Auswirkungen sind auf die Art, Menge und Behandlung radioaktiver Abfälle abzusehen?

Zum Schluß wird auf die Frage eingegangen, inwieweit verfahrenstechnische Einrichtungen des Wiederaufarbeitungsprozesses auf einen steigenden Abbrand optimiert werden können.

2. Auslegung von Brennelementen für hohen Abbrand

Hauptmerkmal von Brennelementen, die für einen höheren Abbrand ausgelegt sind, ist eine Erhöhung des U-235 Isotopenanreicherung. Dies berührt die Auslegung der WAW gegenüber der Kritikalität. Mit der U-235 Anreicherung ist auch eine U-234 Anreicherung verbunden, die wegen der größeren Massendifferenz zu U-238 um den Faktor 1,33 stärker gegenüber dem U-235 ausfällt. U-234, ein Tochternuklid von U-238, beeinflusst die spezifische α -Aktivität des Ausgangsmaterials.

Eine weitere Maßnahme zur Erhöhung des Abbrandes in Verbindung mit einer höheren Anreicherung ist der gezielte Zusatz von Neutronengiften, der die Reaktivität des Brennelementes über die Einsatzzeit im Reaktor konstant halten soll. Wenn auch das zugesetzte Gadolinium im Reaktor durch Neutroneneinfang umgewandelt wird, erhöht sich doch die Menge an Gadolinium, das bei der Wiederaufarbeitung wie ein Spaltprodukt abgetrennt werden muß.

Weitere Maßnahmen zur Erhöhung des Abbrandes von Brennelementen sind die Erhöhung der Stäbezahl, um die spezifische thermische Belastung der Hüllrohre zu senken.

3. Merkmale von hoch abgebrannten Brennelementen

Nach dem Einsatz im Reaktor hat sich im Brennelement eine abbrandproportionale Konzentration an Spaltprodukten gebildet. Das zugesetzte Neutronengift hat sich in Nuklide mit geringeren Einfangquerschnitten umgewandelt, die Menge ist aber gleichgeblieben, sodaß zwischen 4-8% mehr Spaltprodukte im ersten Zyklus abgetrennt werden müssen. Das U-235 ist zum großen Teil gespalten worden, es haben sich jedoch durch Neutronenreaktionen auch unerwünschte Uranisotope wie

das U-236 und das U-232 gebildet, die den Wert des wiedergewonnenen Uranproduktes beeinträchtigen. Ein kleiner Teil des U-238 ist durch Neutroneneinfang umgewandelt worden. Das daraus gebildete Plutonium ist zum Teil gespalten, z.T. in nicht spaltbare höhere Plutoniumisotope aufgebaut worden. Die Menge des Plutoniums steigt daher mit dem Abbrand nur langsam an, der Anteil der nicht spaltbaren Pu-Isotope dagegen relativ schnell.

Von den im Reaktor durch Neutroneneinfang und nachfolgenden β -Zerfall gebildeten Transuranelementen ist Np-237 wichtig, da es sich relativ schwer beim Wiederaufarbeitungsprozeß abtrennen läßt. Es bildet sich überproportional mit der ca. 1,5 Potenz des Abbrandes. Aus dem Np-237 bildet sich durch Neutroneneinfang und β -Zerfall das mit ca. 80 Jahren Halbwertszeit relativ kurzlebige Pu-238, welches die Weiterverarbeitung und Handhabung des LWR-Plutoniums erschwert.

Außer den Kernreaktionen im Spaltstoff müssen noch die Aktivierungsreaktionen des Hüll- und Strukturmaterials betrachtet werden. Grundsätzlich muß bei höherem Abbrand mit höheren spezifischen Aktivitäten gerechnet werden.

Die mechanischen Eigenschaften der Hüllrohre werden sich abbrandproportional durch das Neutronenbombardement ändern, was sich in einem Dickenwachstum der schützenden Oxidschutzschicht, einem Schwellen und einer gewissen Versprödung des Werkstoffes äußert.

Aufgabe der Wiederaufarbeitung ist eine Abtrennung von Uran und Plutonium nach einem mechanischen und chemischen Aufschluß der Brennelemente.

4. Auswirkung des Abbrandes auf den Headendprozeß

Beim mechanischen Aufschluß der Brennelemente spielt der höhere Abbrand insgesamt keine merkliche Rolle.

Die geringfügig veränderten mechanischen Eigenschaften spielen beim Abtrennen der Kopf- und Fußstücke und beim Ziehen der Stäbe keine Rolle.

Beim Schneiden der Stäbe erfolgt eine höhere Freisetzung von gasförmigen Nukliden, hauptsächlich Kr-85.

Der Lösevorgang mit halbkonzentrierter Salpetersäure wird durch den Abbrand beschleunigt, es werden wegen des größeren Inventars mehr gasförmige und flüchtige Nuklide in das Auflöserabgassystem freigesetzt.

Nach dem Lösevorgang bleiben unlösliche Rückstände zurück, deren Menge primär vom Abbrand abhängt. Die Korngrößenverteilung eines Teils der Rückstände hängt von der Bestrahlungsgeschichte im Reaktor ab, wobei die Bestrahlungszeit, der Abbrand und die Brennstofftemperatur im Reaktor die Segregation im Brennstoff beeinflussen. Ein anderer Teil der Löserückstände besteht aus Zircalloyspänen und Hüllrohrabrieb (hauptsächlich ZrO_2), Brennstoffresten und Nachfällungen.

Die Zusammensetzung des sog. Feedklärschlammes ändert sich mit steigendem Abbrand, wobei hauptsächlich mehr Spaltproduktedelmetalle und ZrO_2 Abrieb von den stärker oxidierten Hüllrohren gefunden werden.

Vor der extraktiven Abtrennung muß die Brennstofflösung geklärt werden. Je besser dieser Verfahrensschritt durchgeführt wird, desto weniger Prozeßstörungen treten in der nachgeschalteten Extraktion auf. Einerseits erleichtert ein

höherer Abbrand und das damit verbundene gröbere Kornspektrum das Abtrennen des Feedklärschlammes, andererseits muß bei höheren Abbränden eher mit Nachfällungen aus den geklärten Speiselösungen gerechnet werden.

5. Auswirkungen des Abbrandes auf den chemischen Trennprozeß

Die Anforderungen zur Abtrennung radioaktiver Spaltprodukte und Actiniden hängt hauptsächlich von ihrer Konzentration im aufzuarbeitenden Brennstoff ab. Bei kurzlebigen Nukliden bildet sich im Reaktor ein Gleichgewicht zwischen Erzeugung und Zerfall. Der erforderliche Mindestabtrennfaktor hängt damit nicht mehr von dem Abbrand sondern nur von der spezifischen Leistung und der Kühlzeit ab. Bei langlebigen Nukliden baut sich das Inventar fast linear auf, so daß der Mindesttrennfaktor hauptsächlich vom Abbrand und weniger von der Kühlzeit abhängt. Bei langlebigen Nukliden, die durch mehrfachen Neutroneneinfang entstehen, steigt die Konzentration im Brennstoff überproportional dem Abbrand an. Wichtigster Vertreter dieser Gruppe ist das Neptunium 237, dessen erforderlicher Mindestabtrennfaktor wegen der langen Halbwertszeit praktisch unabhängig von der Kühlzeit etwa mit der 1,5 Potenz des Abbrandes ansteigt.

Bevor ich auf die Einflüsse des Abbrandes auf das Fließschema eingehe, möchte ich kurz den chemischen Trennprozeß beschreiben, wie er in der industriellen Anlage in Wackersdorf verwirklicht werden soll (Abb.1).

Die geklärte Speiselösung mit dem Uran, den Actiniden und den Spaltprodukten wird auf Extraktionsbedingungen eingestellt in den HA-Extraktor eingespeist. Dort wird Uran und Plutonium im Gegenstrom mit TBP-30 extrahiert und in den nachfolgenden Waschextraktoren von mitextrahierten und mitgerissenen Spaltprodukten und Tritium befreit. Im 1B-Teil

wird Plutonium durch hydrazinstabilisiertes Uran(IV) zum nicht extrahierbaren Pu(III) reduziert und mit der wäßrigen Phase abgetrennt. Das Uran wird mit schwach angesäuertem Wasser im 1C-Extraktor rückextrahiert und in einem Zwischenzyklusverdampfer aufkonzentriert. Das entladene Lösungsmittel wird alkalisch mit Natriumkarbonatlösung gewaschen, um saure Zersetzungsprodukte abzutrennen bevor es erneut in den HA-Extraktor eingespeist wird.

Da eine einzyklische Reinigung nicht ausreicht, wird das Uran und Plutonium in einem 2. und 3. Zyklus nachgereinigt. Für die Uranlinie sind hierfür getrennte Lösungsmittelkreisläufe vorgesehen. Die Pu-Zyklen werden aus dem Lösungsmittelkreislauf des 1. Zyklus gespeist.

Das reduzierte Plutonium muß, bevor es erneut extrahiert werden kann, aufoxidiert werden.

Die Blitze auf dem Schema deuten hier elektrochemische Prozeßapparate an: ROXI für Oxidation von Pu(III) und Hydrazin, 2B und 3B-ELKE für elektrochemische Reduktion des Pu(IV) in Pulskolonnen.

Die Hauptmenge der Spaltprodukte werden mit dem wäßrigen Raffinat des 1. Zyklus, dem hochaktiven Abfall (HAW) abgetrennt. Die wäßrigen Raffinate aus den nachgeschalteten Extraktionszyklen werden nach Konzentrierung teils direkt teils nach Extraktion in der 4R-Kolonne in den HAW geführt.

Wie schon bereits oben erwähnt, wird das Verhalten des Extraktionsprozesses durch feinverteilte Feststoffe in der Feedlösung negativ beeinflußt. Zwar wird der größte Teil der eingeschleppten Feststoffe mit dem wäßrigen Raffinat in den hochaktiven Abfall geleitet. Ein kleiner Anteil wird jedoch vom Lösungsmittel TBP-30% flotiert. Dabei reichert sich der Feststoff im Kreislauf an, da er durch die alkali-

sche Lösungsmittelwäsche schlecht abgetrennt wird. Ein weiterer Teil sammelt sich in den Trennschichten der Extraktoren an und kann dort die Phasentrennung zwischen dem Lösungsmittel und den wäßrigen Raffinaten beeinträchtigen. Beide Mechanismen führen zu einer Verminderung der Reinigungsfaktoren und einer zusätzlichen Degradation des Lösungsmittels.

Mit steigendem Abbrand erhöht sich die Salzmenge im hochaktiven Abfall durch den höheren Spaltprodukt- und Aktinidgehalt sowie zusätzlich durch die abgebrannten Neutronengifte. Dadurch vermindert sich der Konzentrierungsfaktor im 1W-Verdampfer und das spezifische Konzentratvolumen (HAWC) steigt an. Bei der Verglasung der Abfälle muß ebenfalls mit einem entsprechenden Anstieg des Glasvolumens gerechnet werden.

Die mit dem höheren Abbrand verbundenen größeren Plutoniummengen mit einem höheren Pu-238 Anteil belasten verstärkt das Lösungsmittel durch die verstärkte α -Radiolyse. Die unmittelbaren Auswirkungen auf die Lösungsmittelwaschabfälle wegen des erhöhten DBP-Gehaltes sind gering, es muß jedoch mit einer geringeren Standzeit des Lösungsmittels und einer Erhöhung der organischen Lösungsmittelabfälle gerechnet werden.

Die größeren Zr-Mengen bewirken eine stärkere Crudbildung durch Hydrolyse des Zirkoniumnitrates in den Bereichen der Extraktion mit niedriger Säurekonzentration: betroffen sind davon die Rückextraktion des Urans in der C-Batterie und die alkalische Lösungsmittelwäsche. Die Folge sind Behinderung der Phasentrennung, die zu Verlusten des Lösungsmittels und verstärktem Phosphateintrag in die Verdampfer führen. Das radioaktive kurzlebige Zr-95 spielt dabei keine Rolle, da es nach der 7-jährigen Kühlzeit fast vollständig zerfallen ist.

Technetium wird zusammen mit Zirkonium extrahiert und gelangt so z.T. in den Bereich der U/Pu-Trennung. Dort verursacht Tc eine katalytische Spaltung des Hydrazins, wobei neben Spuren von Ammonium auch Stickstoffwasserstoffsäure entsteht. Die Tc-katalysierte Hydrazinzerstörung ist in etwa der Tc-Konzentration und der Aufenthaltszeit proportional. Die gebildete Stickstoffwasserstoffsäure verteilt sich im wesentlichen auf 2 Ströme. Der Anteil im Pu-Produkt wird bei der Reoxidation des Pu-III zu Pu-IV zerstört. Der Anteil der Stickstoffwasserstoffsäure im Lösungsmittel wird in der alkalischen Lösungsmittelwäsche als Natriumazid abgetrennt. Der Karbonatverbrauch in der Lösungsmittelwäsche zum Herauswaschen von Lösungsmitteldegradationsprodukten, von Uranspuren und von Stickstoffwasserstoffsäure wird hauptsächlich von der Stickstoffwasserstoffsäure bestimmt. Daher hat die bei steigendem Abbrand zu erwartende stärkere Bildung von Stickstoffwasserstoffsäure einen höheren Waschmittelverbrauch und damit größeren MAW-Anfall zur Folge.

Die verstärkte Bildung von Ammonium hat dagegen keine Auswirkung auf die Abfallmenge, da es durch die Behandlung mit Stickoxiden oder durch Radiolyse zu inerten gasförmigen Produkten abgebaut wird.

Der mit dem höheren Abbrand verbundene überproportional ansteigende Neptuniumgehalt stellt höhere Anforderungen an die Np-Abtrennung im Uranendprodukt. Neptunium ist insofern ein Problemnuklid bei der Wiederaufarbeitung, da die verschiedenen Oxidationsstufen des Neptuniums unter den Bedingungen des PUREX-Prozesses nicht stabil gehalten werden können und sich während der verschiedenen Prozeßschritte ineinander umwandeln (Abb.2).

Bei der Auflösung des Brennstoffs liegt Np 5-wertig vor, solange genügend Stickoxide vorhanden sind. Beim Kochen der Brennstofflösung ohne Stickoxid wird Np in einigen Stunden in die 6-wertige Oxidationsstufe überführt.

Np(VI) wird unter den Bedingungen des ersten Extraktionszyklus in der HA-Batterie vollständig extrahiert. Nur das verbliebene Np(V) gelangt in den hochaktiven Abfallstrom (HAW). Während der Extraktion findet eine Disproportionierung des Np(V) zu Np(IV) und Np(VI) statt, die dadurch unterstützt wird, daß Np(VI) ganz und Np(IV) teilweise in die organische Phase extrahiert werden.

Das Verhalten des Neptuniums bei der U/Pu-Trennung wird von der Kinetik der Redox-Reaktionen mit U(IV) bzw. Pu(III) beeinflusst. Die Reduktion des gut extrahierbaren Np(VI) zum schlecht extrahierbaren Np(V) mit U(IV) erfolgt schnell, während die weitere Reduktion des Np(V) zum besser extrahierbaren Np(IV) langsam erfolgt. Dies bedeutet, daß die Verteilung des Neptuniums auf den Uran- und Plutoniumstrom außer von den Aufenthaltszeiten in den Extraktoren auch noch von den Flußverhältnissen, den Säurekonzentrationen und den Uranbeladungen abhängt. Je nach den Randbedingungen ist eine Verteilung zwischen dem Uran- und Plutoniumstrom zwischen 50:50 bei reiner MOX-Aufarbeitung und 95:5 bei der WAK möglich.

Im Zwischenzyklusverdampfer wird das 4-wertige Np im Uranzwischenprodukt zum 6-wertigen Np oxidiert. Im 2. Uranzyklus wird durch die Einspeisung von U(IV) zur Abtrennung des Pu's Neptunium zum 5- und weiter langsam zum 4-wertigen Zustand reduziert. Je nach Uranbeladung des Lösungsmittels und der Wertigkeitsverteilung werden wunschgemäß nur kleine Dekofaktoren im Bereich von 1-3 erzielt, obwohl Werte größer als 200 möglich wären. Im 3. Uranzyklus, der verdünnt

betrieben wird, kann das bis zu dieser Stelle gelangte 4wertige Neptunium über das Flußverhältnis mit einem Trennfaktor von größer 200 abgetrennt werden, so daß im Uranendprodukt etwa 0,3% verbleiben. Im Plutoniumteil ist aufgrund der niedrigeren Sättigung des Lösungsmittels die Np-Abtrennung schlechter, so daß 1-2% des Neptuniums im Pu-Endprodukt landen, was von den Spezifikationen erlaubt ist.

Entscheidend für den Aufbau des Neptuniums im Trennprozeß ist die Rückführung der konzentrierten wäßrigen Raffinate in den ersten Zyklus, mit dem ein Teil des Neptuniums wieder erneut extrahiert wird. Der Neptuniumpegel im Prozeß wird sich daher so weit erhöhen, bis die Np-Abfuhr über den HAW und dem Raffinat des 3. Uranzyklus (der bei der WAW nicht zurückgeführt wird) der Zufuhr über die Speiselösung entspricht. Mit steigendem Abbrand sind daher schneller ansteigende Abtrennfaktoren für Np im Uranprodukt notwendig, um die Endproduktspezifikationen sicher einhalten zu können.

Auf die Abtrennung der Spaltprodukte aus den Endprodukten möchte ich hier nicht näher eingehen, da der für die WAW vorgesehene 3-zyklische Trennprozeß genügend Reserven bietet, um die Endproduktspezifikationen zu erreichen.

Lassen Sie mich zusammenfassen:

Die Auswirkungen des erhöhten Abbrandes auf die Wiederaufarbeitung können zum einen dem erhöhten Radionuklidinventar, zum andern einer veränderten Prozeßchemie zugeschrieben werden.

Bei der Aufarbeitung von höher abgebrannten Brennelementen muß mit mehr und teilweise aktiverem Abfall gerechnet werden.

Im einzelnen sind dies

- Aktiveres Brennelementstrukturmaterial
- Stärker kontaminierte Hülsenabfälle
- Mehr Feedklärschlamm
- Mehr abgetrenntes Iod und Kr-85 aus dem Auflöserabgas
- Mehr Hochaktivabfallkonzentrate und verglaste HAW-Abfälle.

Einer bei höheren Abbränden veränderten Prozeßchemie können folgende Abfälle zugeordnet werden:

- Mehr Lösungsmittelwaschabfälle (MAW) als Folge der Tc-katalysierten Hydrazinzerstörung und Azidbildung.
- Mehr Lösungsmittelabfälle als Folge der verstärkten Lösungsmittelbelastung und Zr-bedingten Crudbildung.

Zum Schluß möchte ich die Maßnahmen zur Verbesserung des Trennprozesses ansprechen:

- Eine der wichtigsten ist eine verbesserte Feedklärung, um die Crud-Bildung im Prozeß zu vermindern. Dies ist ein wesentlicher Schlüssel zur Vermeidung von Verstopfungen im Extraktionsprozeß und den nachgeschalteten Einheiten.
- Durch sorgfältig kontrollierte Flußverhältnisse bei der Extraktion kann die Sättigung des Lösungsmittels so weit erhöht werden, daß bei akzeptablen Produktverlusten der Dekofaktor optimiert wird.
- Eine verbesserte TBP-Abtrennung aus den wäßrigen Raffinaten, insbesondere aus Pu-Produktlösungen, hilft die TBP-Degradationsprodukte und damit die im Zusammenhang stehenden Pu-Verluste vermindern.

- Durch eine 2-geteilte 1BX-Kolonnen kann der U/Pu-Trennfaktor soweit gesteigert werden, daß nur noch geringfügige Pu-Mengen in die Uranlinie gelangen. Angesichts des erhöhten Pu-Durchsatzes bei der Aufarbeitung von MOX-Elementen sollte man dabei an elektrolytische Kolonnen denken, die bei geringerer Azidbildung eine Uranrückführung vermeiden. Eine MOX-Rückführung in die Wiederaufarbeitung im Umfang der Eigenerzeugung der Reaktoren läßt den Pu-Durchsatz der Anlage etwa um das 3-fache ansteigen gegenüber der Aufarbeitung von Brennstoff mit einem Abbrand von 40 Gwd/t und einem MOX-Anteil von 10% des Gesamtdurchsatzes.

- Als letztes möchte ich die Vakuumfraktionierung eines Teilstroms des Lösungsmittels aus dem 1. Zyklus vorschlagen. Damit könnten nicht nur oberflächenaktive und stark komplexierende Radiolyseprodukte des Lösungsmittels, sondern auch die feinverteilten flotierten Feststoffe gezielt mit dem Sumpfprodukt abgetrennt werden. Schwerflüchtige iodierte Verbindungen im Lösungsmittel würden weitgehend im Abfallkonzentrat verbleiben, leichtflüchtige Iodverbindungen gezielt aus dem kleinen Abgasvolumen der Vakuumeinheit abgetrennt werden können. Aus dem gereinigten TBP und Dodekan könnte das Lösungsmittel für den 3. Pu-Zyklus angesetzt und dieser Zyklus mit sauberem Lösungsmittel betrieben werden. Dies würde die Abtrennung der Spaltprodukte deutlich verbessern.

Weiterverwendung der bei der Wiederaufarbeitung zurückgewonnenen Spaltstoffe. Erfahrungen und abzusehende Probleme bei der Plutoniumverarbeitung.

J. Krellmann, Siemens, vormals ALKEM

Anmerkung:

Herr Krellmann bat darum, nur seine Folien in den Sammelband aufzunehmen. Diesem Wunsch kam die Redaktion nach.

Thermische Reaktoren

Reaktor	Zahl der Brennstäbe	Menge kg		Lieferjahre
		U + Pu	Pu _{fiss}	
Bundesdeutsche Reaktoren – SWR (VAK, KRB, KWL Experimente)	4.193	11.487	225	1968 - 1980
– DWR (KWO, GKN, MZFR, KKG, KKU, KBR, KWG)	32.396	63.390	1.809	1972 - 1987
Ausländische Reaktoren (Dresden, Beznau, EIR, SENA, Garigliano, Experimente)	7.938	7.888	257	1969 - 1987
Gesamt	44.527	82.765	2.291	

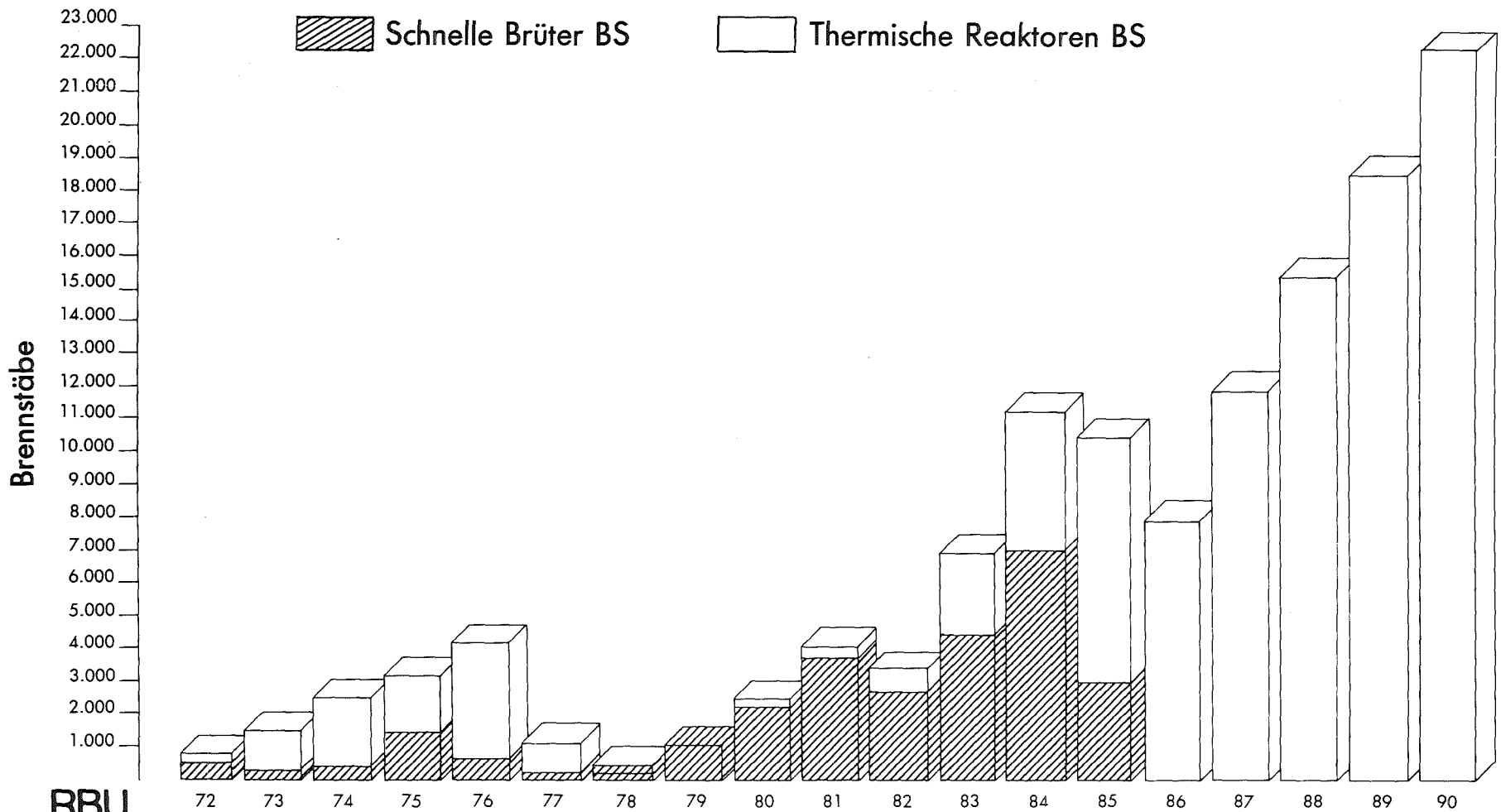
Schnelle Brüter

SNR 300	20.418	3.270	789	1980 - 1984
KNK II	4.459	613	129	1977 - 1985
SNEAK	Platten	1.350	300	1967 - 1968
Rapsodie, PHENIX DFR, BR-2, Experimente	1.056	649	137	1969 - 1987
Gesamt	25.933	5.822	1.355	



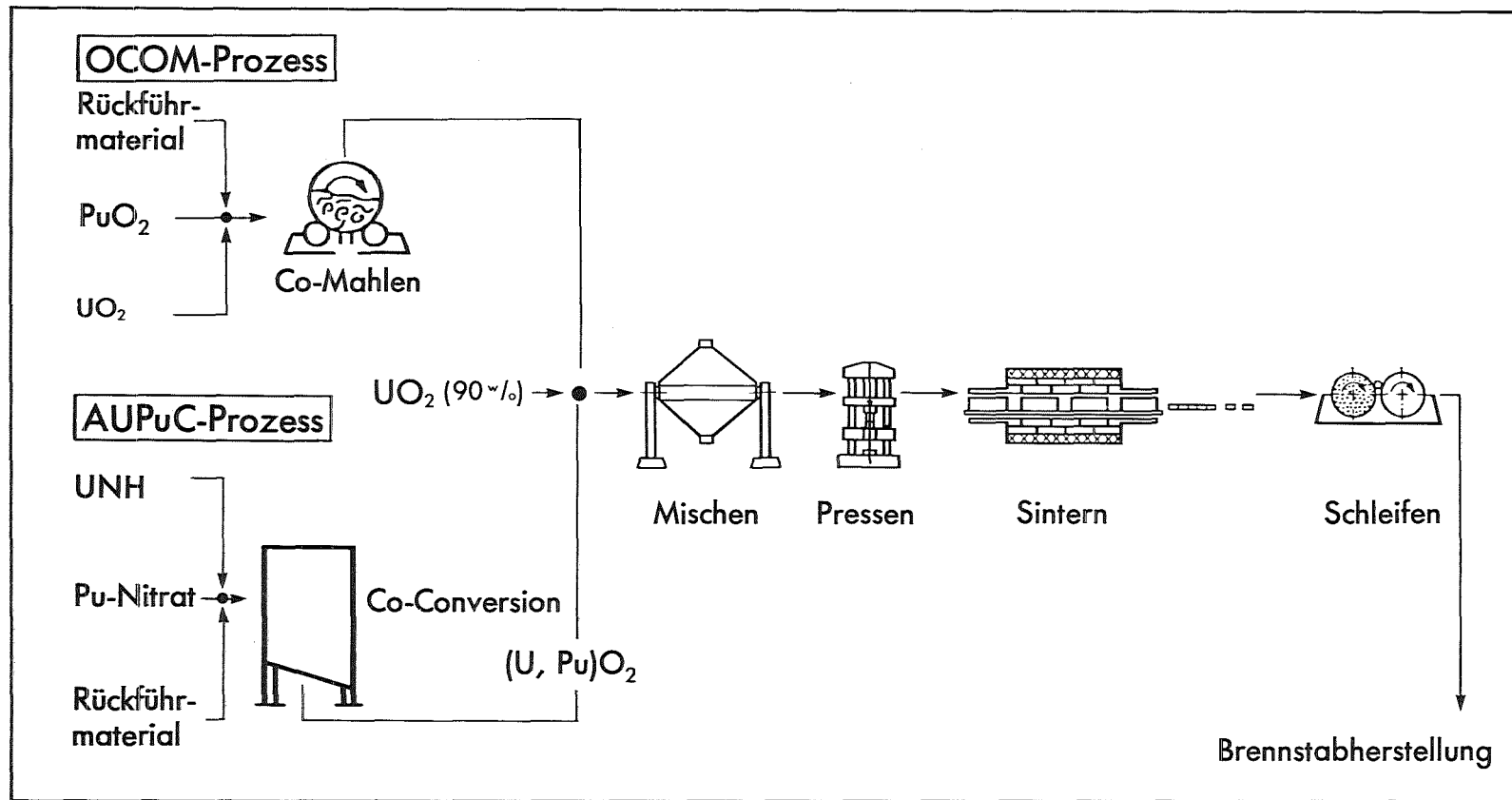
Herstellung von MOX-Brennstäben

(Dez. 1987)



Fertigung von MOX-Brennstäben

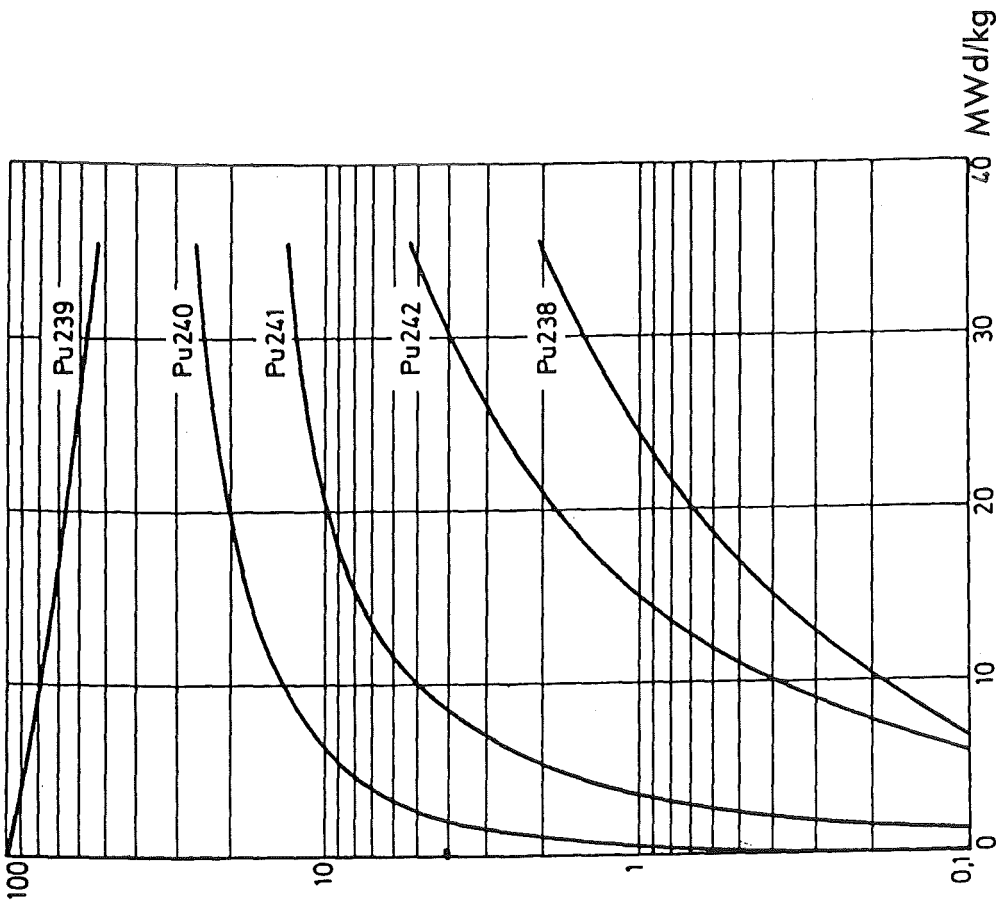
XI-3



XI-4



Herstellung von MOX-Pellets für Leichtwasserreaktoren



Abbrandabhängige Änderung der Pu-Zusammensetzung im Uran-Brennstoff

t Pu_{fiss}

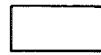
5

4

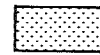
3

2

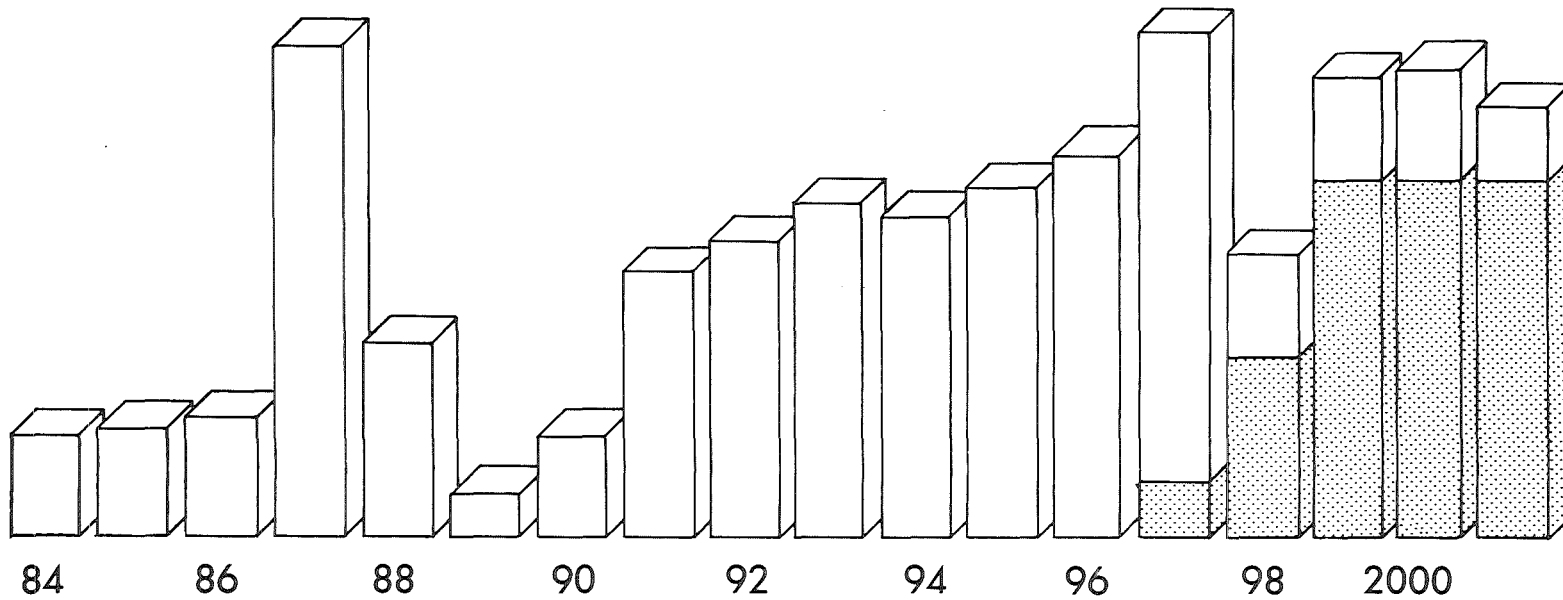
1



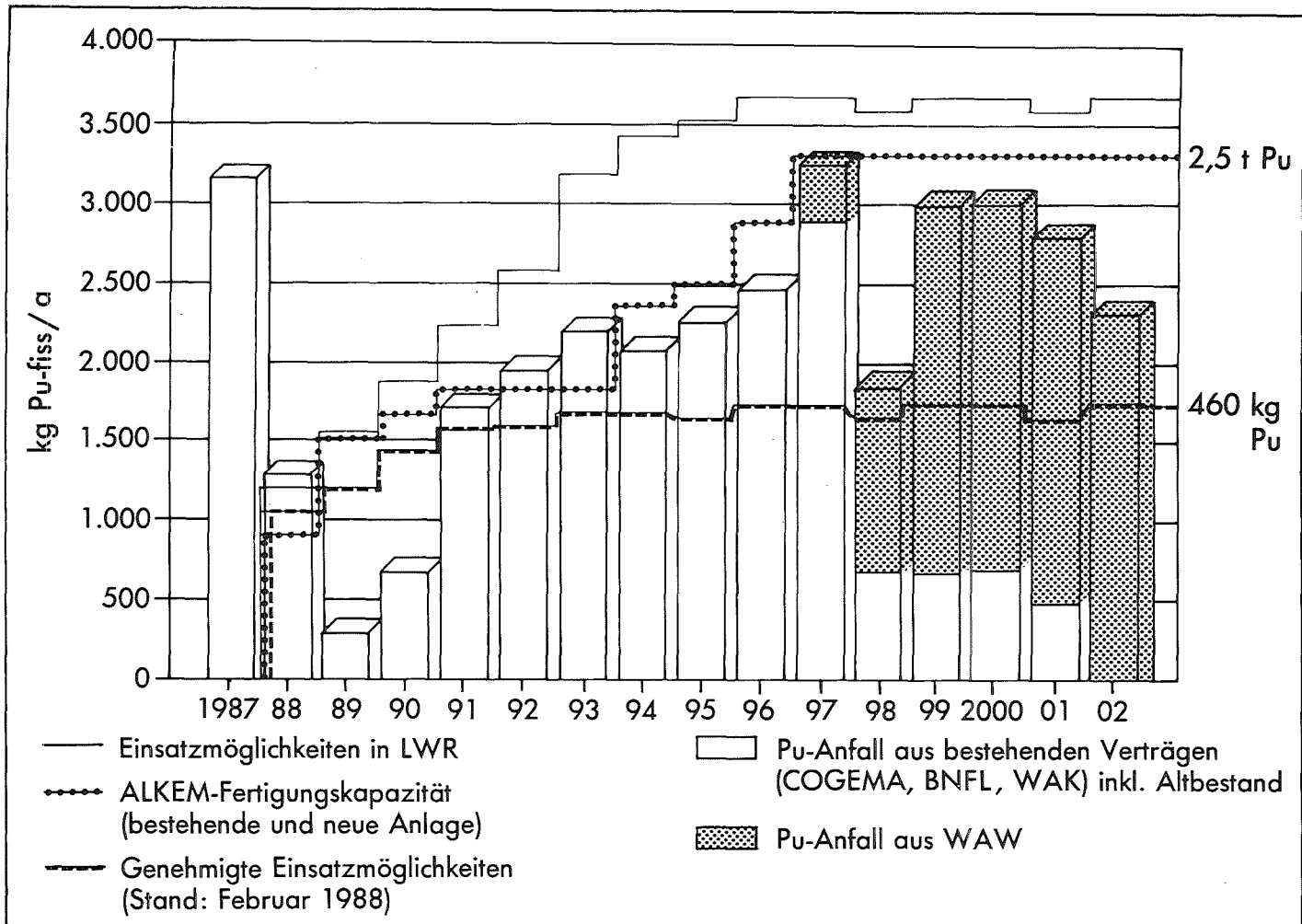
WAK, Cogema, BNFL



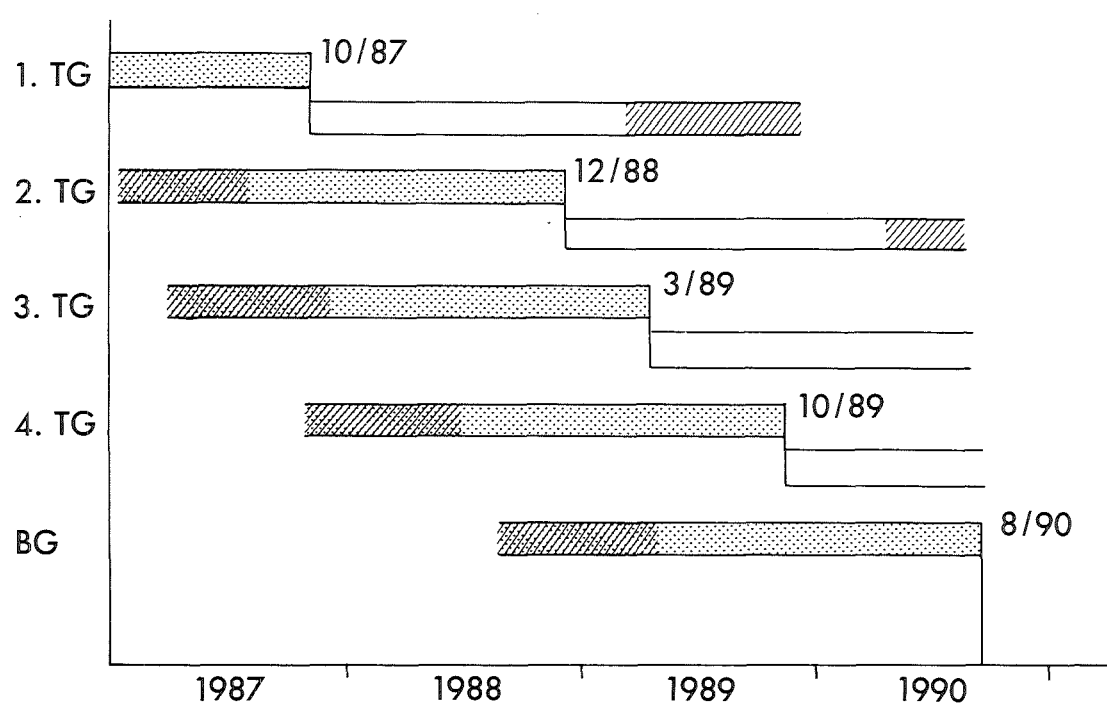
Wackersdorf



**Jährlicher Plutoniumanfall aus der Wiederaufarbeitung
von abgebrannten deutschen Brennelementen**



Pu-Anfall, LWR-MOX-Einsatzmöglichkeiten und ALKEM-Fertigungskapazitäten, Planungsstand 31.12.87



Genehmigungsumfang:

Vorl. pos. Gesamturteil
Rohbauten

Infrastruktur (1. Teil)
Sicherungsanlagen
Prozeßanlagen (1. Teil)

Infrastruktur (2. Teil)

Prozeßanlagen (2. Teil)

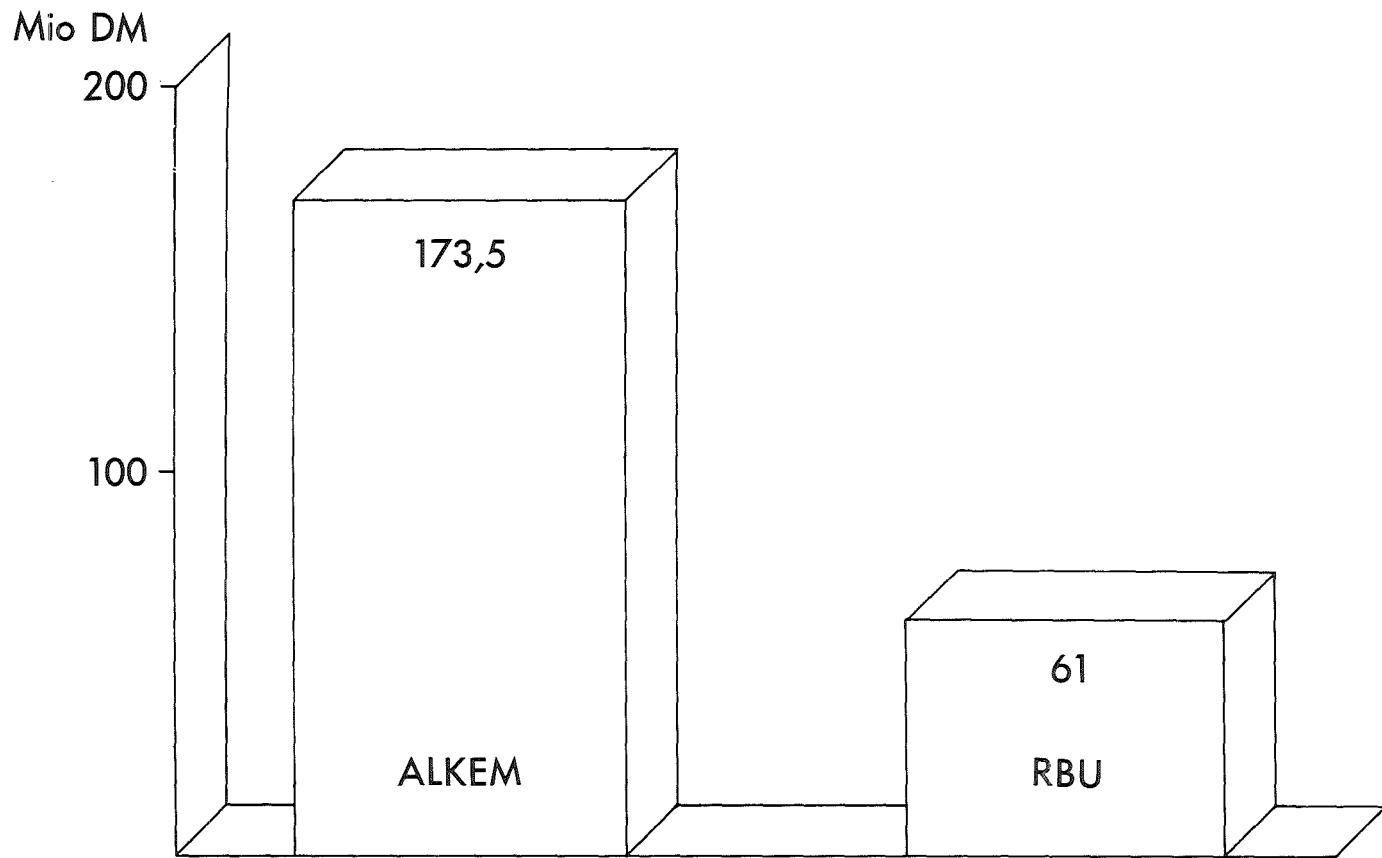
Betrieb der Anlage

Unterlagenerstellung,
Begutachtung,
Erstellung der Genehmigung →

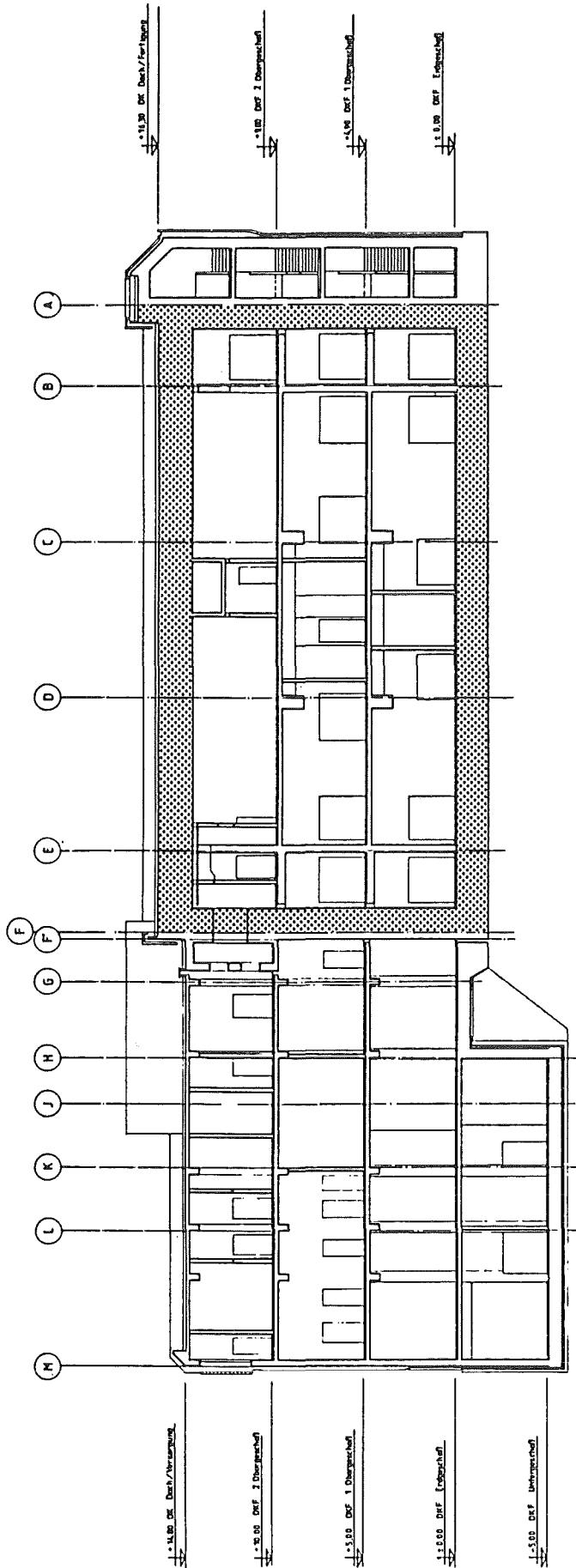
← Errichtung und IBS



Terminplan
§7 -AtG - Genehmigungsverfahren ALKEM

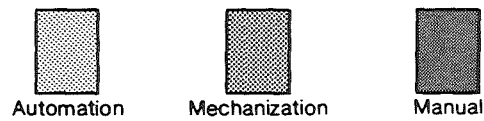
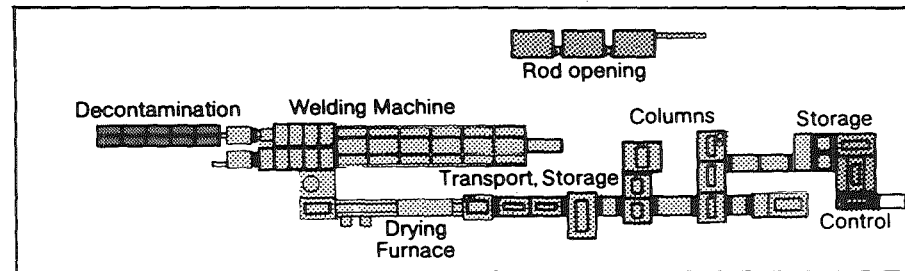
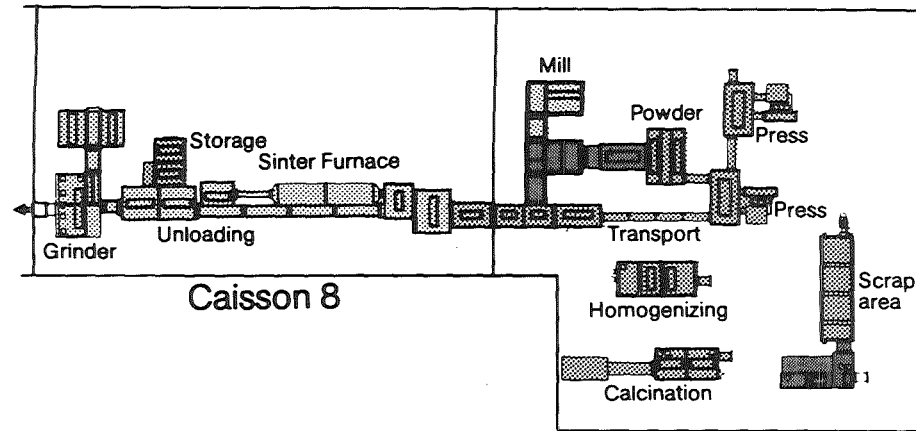


Investitionsvolumen §7 - AtG - Genehmigungsverfahren

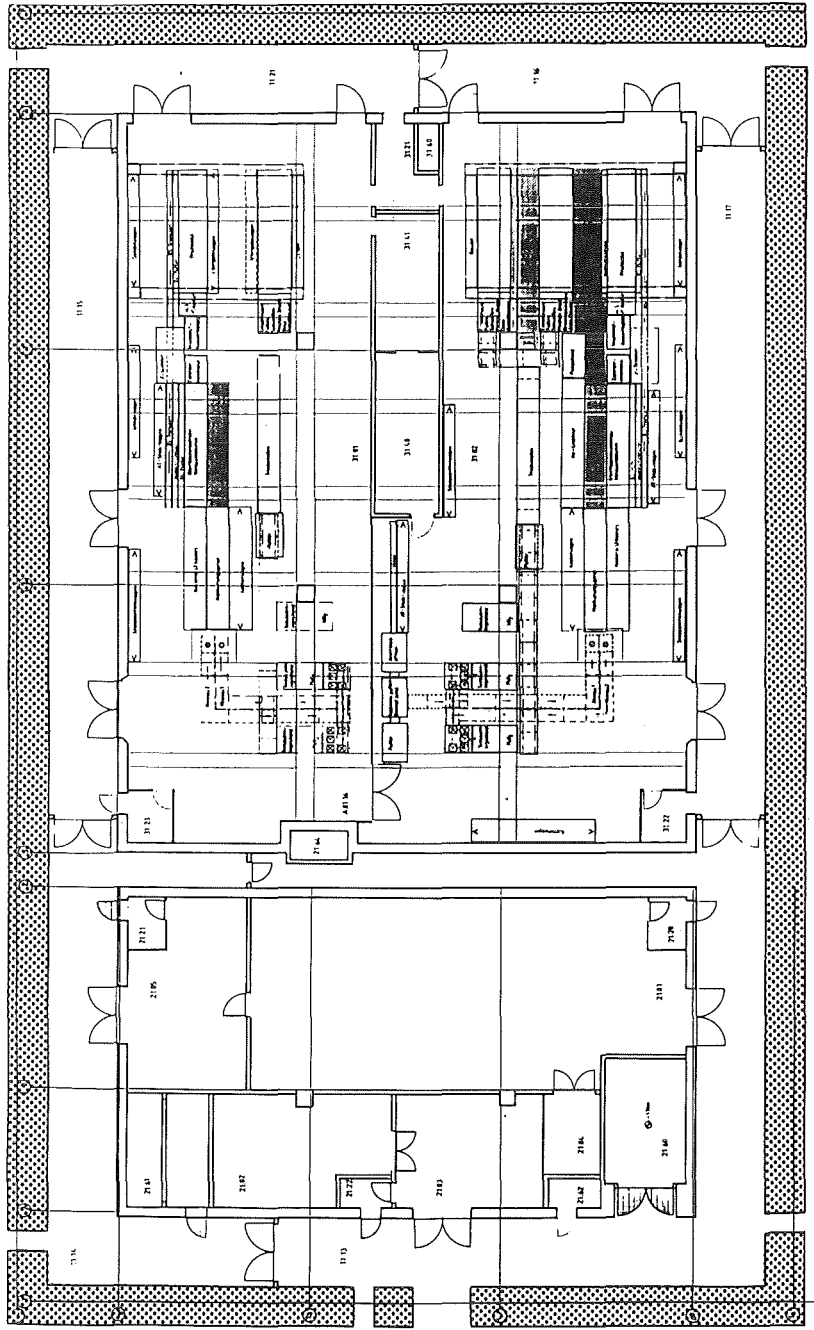


Sicherungsbau Alkem





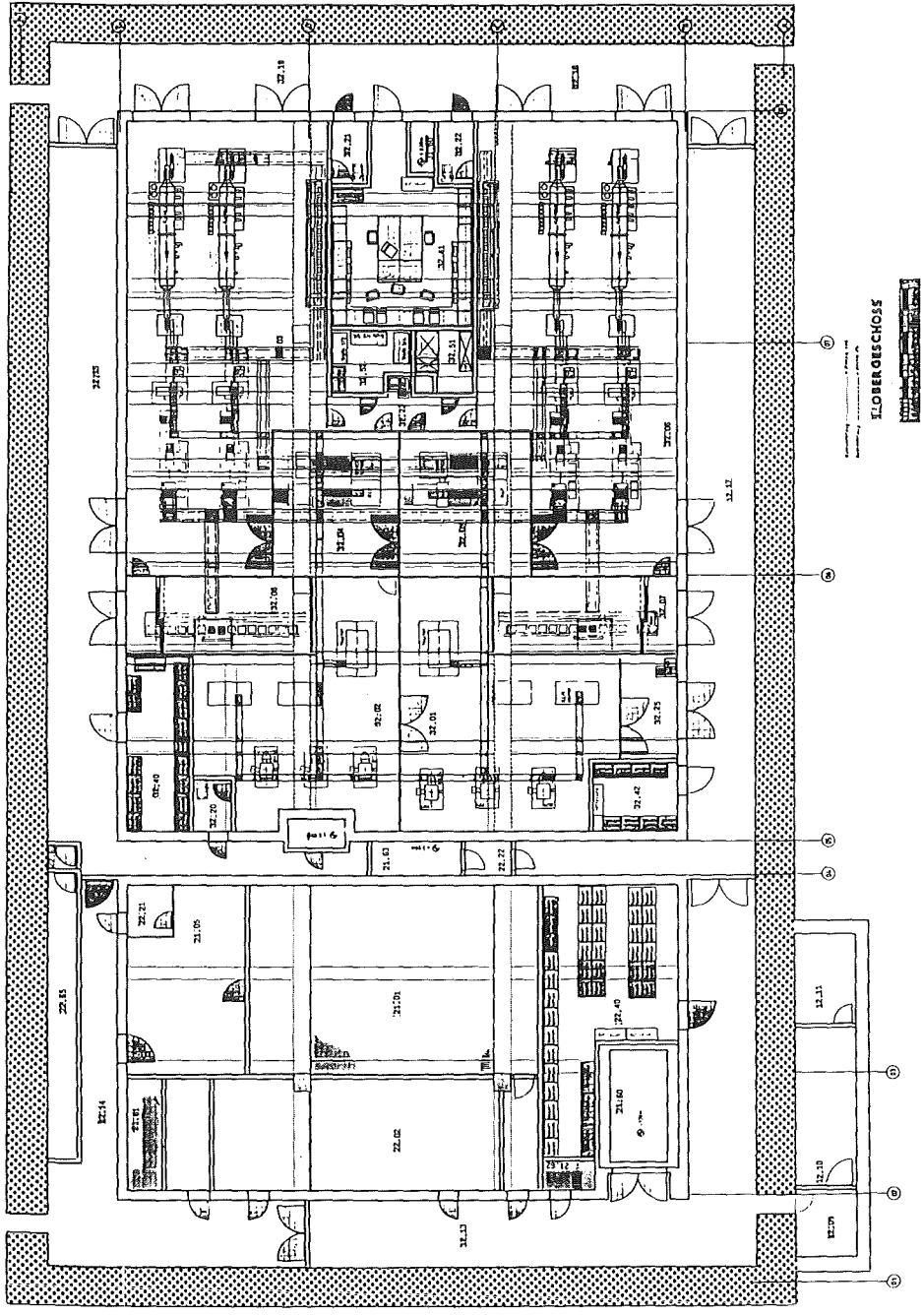
Production Line II



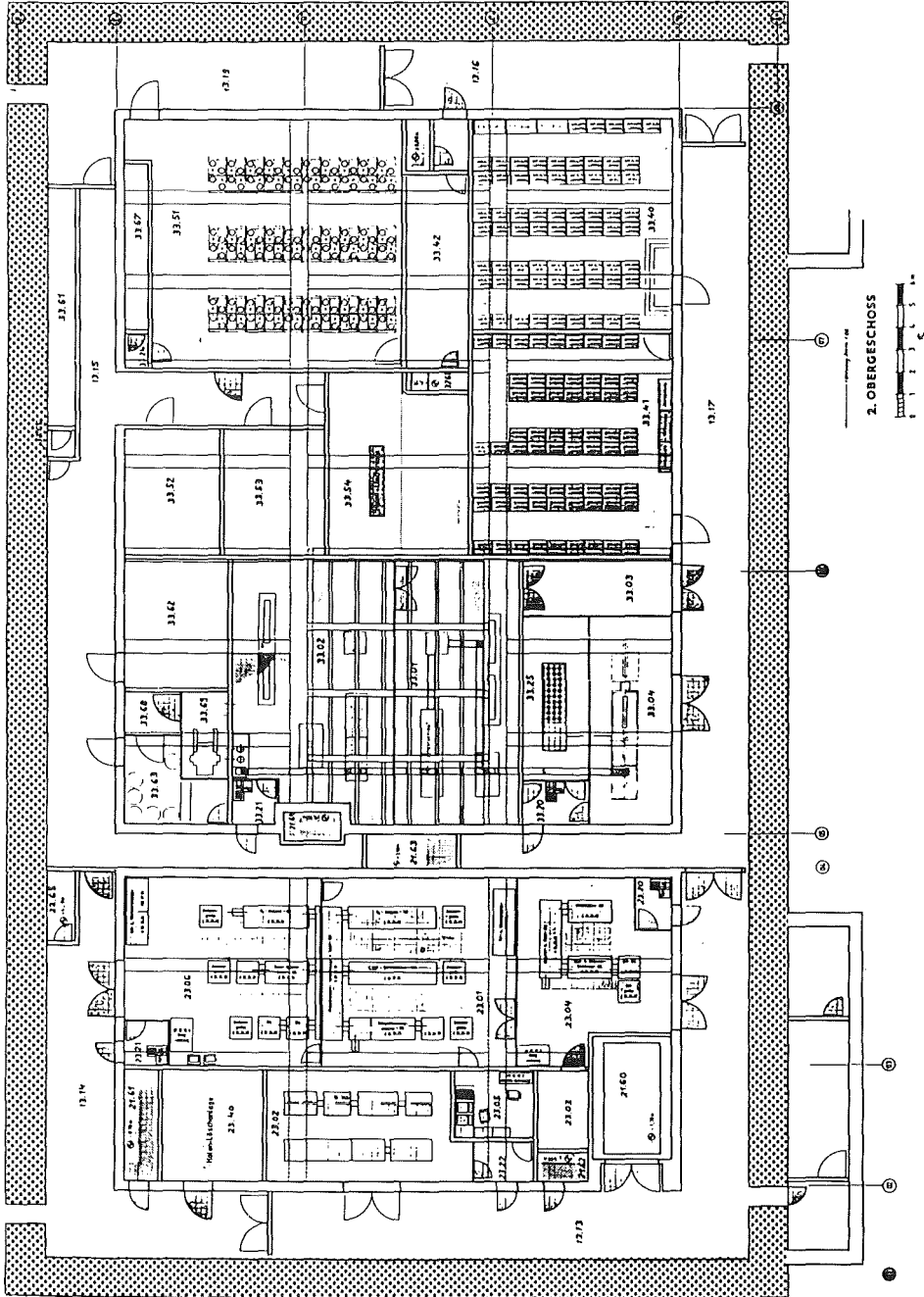
ERDGESCHOSS



Sicherungsbau Erdgeschoss



Sicherungsbau 1. Obergeschoss



Sicherungsbau 2. Obergeschoss

