



KERNFORSCHUNGSANLAGE JÜLICH GmbH

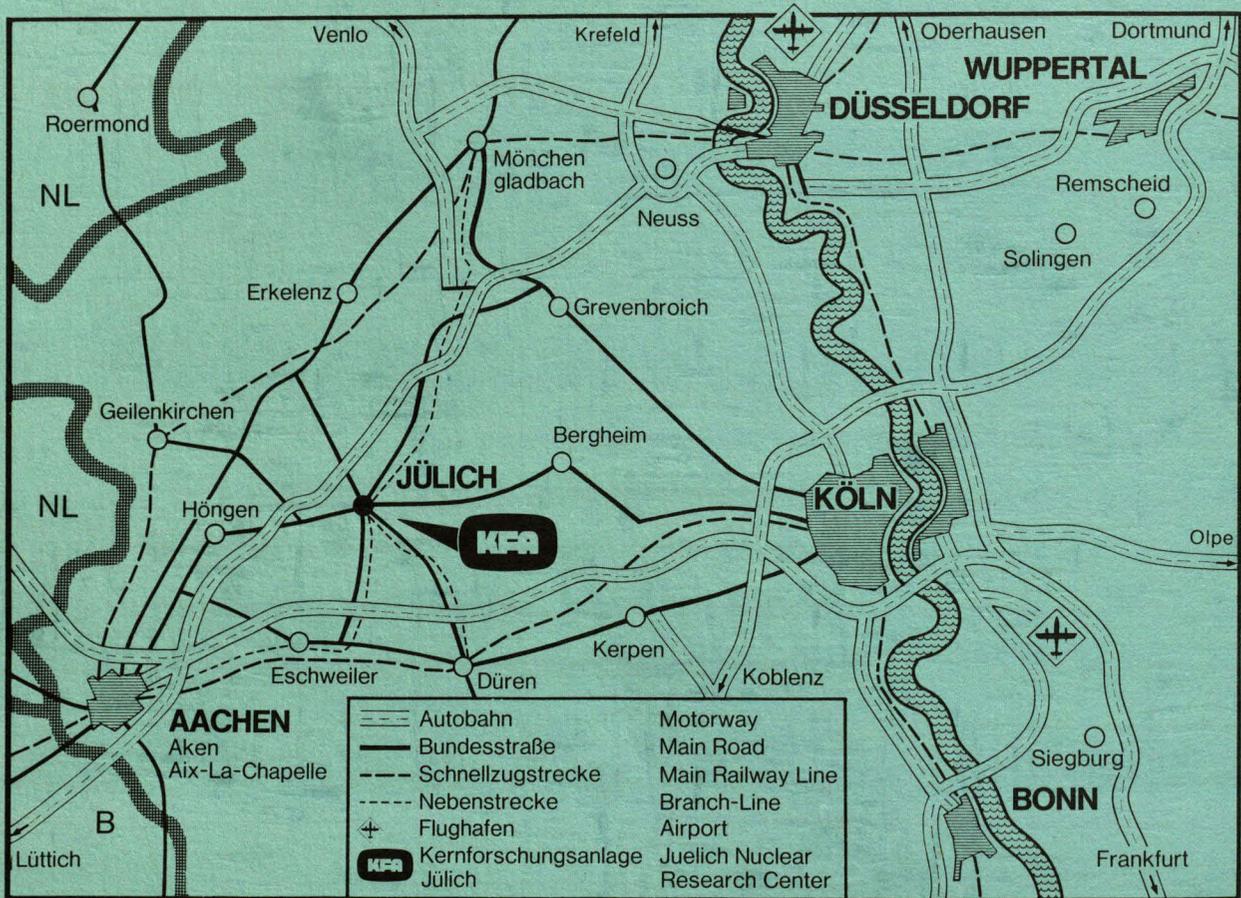
Institut für Chemische Technologie

**Zusammensetzung rezyklierter
(Th,U) O₂-Brennelemente mit mittlerem
U-Anreicherungsgrad und ihre Auswirkung
auf den Kernbrennstoffkreislauf**

von

C. L. Da Silveira Branquinho, U. Wenzel

Jül - 1536
September 1978
ISSN 0366-0885



Als Manuskript gedruckt

Berichte der Kernforschungsanlage Jülich – Nr. 1536

Institut für Chemische Technologie Jül – 1536

Zu beziehen durch: ZENTRALBIBLIOTHEK der Kernforschungsanlage Jülich GmbH,
Jülich, Bundesrepublik Deutschland

**Zusammensetzung rezyklierter
(Th, U) O₂-Brennelemente mit mittlerem
U-Anreicherungsgrad und ihre Auswirkung
auf den Kernbrennstoffkreislauf**

von

C. L. Da Silveira Branquinho, U. Wenzel

SUMMARY

The MEU-HTR fuel element is proposed in order to use lower enriched U and to preserve the potential of the HTR as converter and as process heat source. If the final storage of nuclear fuel is not licensed in the Federal Republic of Germany, a complete fuel cycle must be available for the spent nuclear fuel management of this type of fuel.

Therefore, the composition of spent mixed oxide MEU-HTR fuel was calculated in this study, considering various recycling strategies. The following conclusions may be drawn from the resulting data.

- Pu should be included into the recycling with respect to its great breeding rate.
- The fresh fuel supply will increase the ^{238}U content of the recycled fuel by decreasing simultaneously the fissile material portion; thus the MEU-fuel will be changed into a LEU-fuel, not well appropriated for HTR's, if the remaining fissile material is not enriched intermediately.
- The ^{232}U -production is diminished by recycling Th and decreasing the ^{230}Th -concentration in natural Th. Thus, the technical implementation of the processes of the fuel cycle closure can be facilitated.
- New processes have to be developed for reprocessing and refabrication of the MEU fuel. The joint recycling of Th and Pu is proposed.
- No state-of-art technology is present for the enrichment of the remaining fissile material.

A considerable research and development work has to be done to close the MEU-HTR fuel cycle.

RESUMÉ

L'élément du combustible UEM-RHT est proposé pour utiliser de l'U d'un enrichissement plus bas et maintenir le potentiel du RHT comme converseur et source de chaleur industriel. Vu que le stockage définitif n'est pas homologué dans la République Fédérale de l'Allemagne, il faut mettre à la disposition un cycle complet pour l'évacuation des combustibles épuisés.

C'est pourquoi la composition des combustibles UEM-RHT du type $(\text{ThU})\text{O}_2$ était calculée dans cette étude en considérant les stratégies différentes du recyclage. Les conclusions suivantes peuvent être tirées des résultats:

- Pu devrait être inclus dans le recyclage en raison de son taux générateur élevé.
- L'approvisionnement du combustible frais accroîtra la teneur de ^{238}U du combustible recyclé en diminuant simultanément la portion de la matière fissile et le combustible UEM sera transformé en combustible UEB, ne pas approprié bien pour le RHT, si la matière fissile restante ne sera pas enrichie intermédiairement.
- La génération de ^{232}U est réduite en recyclant le Th en diminuant la concentration de ^{230}Th dans le Th frais. En ce cas, l'exécution technique des processus du completage du cycle des combustibles peut être facilitée.
- Il faut développer des processus nouveaux pour le retraitement et la refabrication du combustible UEM. Le recyclage commun de Th et Pu est recommandé.
- Une technologie disponible pour l'enrichissement de la matière fissile restante n'existe pas actuellement.

Un travail de recherche et développement considérable devra être fait pour compléter le cycle des combustibles UEM-RHT.

RESUMO

O elemento combustível MEU-HTR (Middle Enriched Uranium - High Temperature Reactor) é sugerido a fim de aproveitar urânio de um enriquecimento menor e também para preservar a capacidade do HTR como conversor e como fonte industrial de calor. Uma vez que o depósito final do combustível nuclear não é autorizado na República Federativa da Alemanha, torna-se necessária a existência de um ciclo combustível completo para a manipulação deste tipo de combustível nuclear consumido. Por este motivo, a composição do combustível MEU-HTR do tipo óxido misto consumido foi calculada neste trabalho, considerando-se diferentes estratégias para a reciclagem.

Dos dados resultantes, pode-se tirar as seguintes conclusões:

- Pu deveria ser incluído na reciclagem por causa da sua grande taxa de geração.
- O suprimento do combustível fresco causa um aumento no conteúdo de ^{238}U do combustível reciclado, decrescendo simultaneamente a quantidade de material físsil; deste modo, o combustível MEU é convertido em combustível LEU (Low Enriched Uranium) que não pode ser usado para os Reatores de Alta Temperatura se o material físsil restante não for intermediariamente enriquecido.
- A produção de ^{232}U é reduzida com a reciclagem de Th e com a diminuição da concentração de ^{230}Th no Th natural. Desta maneira, a implementação técnica de processos necessários ao fechamento do ciclo combustível pode ser facilitada.
- Novos métodos para o reprocessamento e a refabricação do combustível MEU devem ser desenvolvidos. Propõe-se uma reciclagem conjunta de Th e Pu.
- Não existe até presente momento uma tecnologia adequada para o enriquecimento do material físsil restante.

Trabalhos de pesquisa criteriosos e detalhados devem ser empreendidos para completar o ciclo combustível MEU-HTR.

INHALTSVERZEICHNIS

	<u>SEITE</u>
1. EINLEITUNG	1
2. REZYKLIERUNG DES KERNBRENNSTOFFS	3
2.1 Berechnungsgrundlagen	3
2.2 Rezyklierung von Uran	6
2.3 Rezyklierung von Uran und Plutonium	9
2.4 Anreicherung des Restspaltstoffs	12
2.4.1 Rezyklierung von Uran mit Restspaltstoffanreicherung	15
2.4.2 Rezyklierung von Uran und Plutonium mit Restspaltstoffanreicherung	17
2.5 Rezyklierung von Thorium	20
3. VERFAHREN ZUR BRENNSTOFFKREISLAUFSCHLIESSUNG	25
3.1 Wiederaufarbeitung	25
3.2 Abfallbehandlung	27
3.3 Refabrikation	29
3.4 Rekonversion und Anreicherung des Restspaltstoffs	30
4. ZUSAMMENFASSUNG	31
5. LITERATURVERZEICHNIS	32

1. EINLEITUNG

Die Hochtemperaturreaktoren der Bundesrepublik Deutschland (AVR Jülich, 15 MW_e, in Betrieb; THTR-300 Schmehausen, 300 MW_e, im Bau) verwenden hochangereichertes (93 %) ²³⁵U als Kernbrennstoff und ²³²Th als Brutmaterial. Der entsprechende Th-U Brennstoffkreislauf ist vollständig konzipiert, Versuchsanlagen zur Brennstoffkreislaufschließung werden von den USA und der Bundesrepublik zur Zeit errichtet.

Im Hinblick auf die Diskussion zur Nichtweiterverbreitung von hochangereichertem Uran sind deshalb Überlegungen angestellt worden, für den Betrieb eines HTR niedriger angereicherten Spaltstoff zu verwenden. Dabei kann, einer Berechnung der Varianten des internen Brennstoffkreislaufs nach, bei einem Anreicherungsgrad von 20 % ²³⁵U - der sog. MEU-Zyklus (medium enriched uranium) - das Potential des HTR als Konverter, Stromerzeuger und Lieferant von Prozeßwärme noch erhalten werden [1].

Die Entsorgung eines HTR, der nach diesem Konzept betrieben wird, ist in der genannten Studie nur angedeutet worden. Nach einmaligem Durchlaufen der Brennelemente durch den Reaktor sollen sie entweder zwischengelagert und später aufgearbeitet oder direkt einem Endlager zugeführt werden.

Das Gesetz über die friedliche Verwendung der Kernenergie und den Schutz gegen ihre Gefahren fordert die Festlegung eines Entsorgungskonzepts vor Beginn des Reaktorbetriebs (§ 7, Abs. 2, nach Beschluß des OVG Lüneburg) und die Minimierung jeglichen radioaktiven Abfalls (§ 9a, Abs. 1). Daraus läßt sich, wenn auch nicht zwingend, das Gebot ableiten, nicht verbrauchten Kernbrennstoff aus Reaktoren zu rezyklieren. Weiterhin wird durch die Entwicklung und Spezialisierung der verschiedenen Kernbrennstoffkreisläufe die Rezyklierung von Restspaltstoff aus einem Reaktor der einen durch einen Reaktor einer anderen Reaktorlinie immer unwahrscheinlicher. Es ist

vielmehr anzunehmen, daß im Vordergrund einer Entsorgungsstrategie für Restspaltstoff ein geschlossener Brennstoffkreislauf einschließlich einer Rezyklierung durch denselben Reaktortyp stehen wird.

In der vorliegenden Studie wird die Auswirkung durch die Verwendung des neuen MEU-Brennelements auf den Th-U Brennstoffkreislauf untersucht. Es wird dabei nur der Grenzfall betrachtet, daß Uran sowohl bei Brennelementfabrikation als auch für die Frischzufuhr an Kernbrennstoff bei der Rezyklierung ausschließlich mit einem Anreicherungsgrad von 20 % U-235 zur Verfügung steht. Die Studie konzentriert sich auf die Schwermetallnuklide in rezyklierten frischen und verbrauchten Brennelementen. Bei vorgegebenem Abbrand und konstanter Verweilzeit im Reaktor erfährt die Spaltproduktzusammensetzung keine für die Brennstoffkreislaufschließung signifikante Veränderung. Die Ausgangsdaten stammen einerseits aus der bereits zitierten Studie über die "once through"-Zyklen im Kugelhaufenreaktor [1], andererseits von den Ergebnissen einer Untersuchung der Zusammensetzung verbrauchter AVR-Brennelemente [2].

2. REZYKLIERUNG DES KERNBRENNSTOFFS

Die Zusammensetzung des Gesamtschwermetalls eines frischen MEU-Brennelements wurde, soweit die Daten verfügbar waren, aus [1] entnommen. Der ^{230}Th -Gehalt konnte aus einer internen Spezifikation der Brennelementherstellerfirma über das eingesetzte $\text{Th}(\text{NO}_3)_4$ ermittelt werden. Danach darf die ^{230}Th -Konzentration maximal 10 ppm der Gesamt-Th-Konzentration betragen. ^{234}U wurde aus dem Verhältnis $^{234}\text{U}/^{235}\text{U}$ in U_{nat} berechnet, denn dieses Verhältnis wird durch die Anreicherung von ^{235}U nicht merklich beeinflusst. Tabelle 1 zeigt die Nuklidzusammensetzung des frischen Brennstoffs.

Nuklid	^{230}Th	^{232}Th	^{234}U	^{235}U	^{238}U
Gehalt [g]	0,00005	4,8946	0,0049	0,6287	2,5467

TAB. 1: NUKLIDZUSAMMENSETZUNG EINES FRISCHEN MEU-BRENN-ELEMENTS FÜR DEN 1. REAKTORZYKLUS

Der Gesamtschwermetallgehalt eines Brennelements beträgt 8,0749 g, der ^{235}U Anreicherungsgrad 19,8 %.

2.1 Berechnungsgrundlagen

Der Kugelhaufenhochtemperaturreaktor ist ein Konverter, die verbrauchten Brennelemente enthalten deshalb weniger spaltbares Material als die frischen. Auch das Brutmaterial wird zu einem gewissen Teil verbraucht. Bei einer vollständigen Schließung des Kernbrennstoffkreislaufs müssen auch noch Verluste an Schwermetall während der chemischen Prozesse (Wiederaufarbeitung, Refabrikation) berücksichtigt werden. Verbrauch bzw. Verlust an Brenn- und Brutstoff werden nach jedem

Reaktorzyklus durch Zufuhr von frischem Material ausgeglichen.

Die Berechnungen der Zufuhr an frischem Material basieren auf folgenden Annahmen:

- Die Verluste an Schwermetall bei der Rezyklierung betragen 1 %.
- Der Absolutwert an Spaltstoff in einem rezyklierten Brennelement (Σ ^{233}U + ^{235}U bzw. Σ ^{233}U + ^{235}U + ^{239}Pu + ^{241}Pu) ist konstant. (0,6287 g/Brennelement).
- Der Absolutwert an ^{232}Th ist ebenfalls konstant (4,895 g/Brennelement).
- Frisch zugeführtes, spaltbares Material hat grundsätzlich einen Anreicherungsgrad von 19,8 % ^{235}U und damit immer die gleiche relative Isotopenzusammensetzung.

Die reaktorphysikalischen Kenndaten sind in Tabelle 2 enthalten. Sie beruhen auf den in [1] für den MO 20 Zyklus (Mischoxid mit 20 %iger Anreicherung) aufgelisteten Werten. Die thermische Neutronendosis wurde aus dem Th-Verbrauch in den Brennelementen berechnet.

Th-Gehalt	
frisches BE [g]	4,895
verbrauchtes BE [g]	4,569
Neutronendosis [cm^{-2}]	$1,53 \cdot 10^{22}$
Standzeit [d]	872
Abbrand [% fifa]	85

TAB. 2: REAKTORPHYSIKALISCHE KENNDATEN DES MEU-BRENNELEMENTS

Spaltung und Umwandlung der Schwermetallnuklide im Reaktor sind vom Neutronenspektrum abhängig. Die Resultate einer

Untersuchung der Aktinidenzusammensetzung von HTR-Brennelementen, die im AVR-Jülich bestrahlt wurden, führten zu reaktorspezifischen Eingruppenwirkungsquerschnitten [2]. Diese Querschnitte sind über das gesamte Neutronenspektrum des AVR gemittelt. Tabelle 3 vergleicht die tabellierten (1. Spalte) Einfangsquerschnitte für thermische Neutronen ($T = 293^{\circ}\text{K}$) mit den Eingruppenquerschnitten (2. Spalte) für das AVR-Neutronenspektrum ($T = 1200^{\circ}\text{K}$).

Nuklid	$\sigma_{a\text{Tab}}$	$\sigma_{f\text{Tab}}$	$\sigma_{a\text{gem}}$	$\sigma_{f\text{gem}}$	$\sigma_{a\text{gem}}/\sigma_{a\text{Tab}}$	$\sigma_{f\text{gem}}/\sigma_{f\text{Tab}}$
Th-230	23	-	97	-	4,21	-
Th-232	7,4	-	4,5	-	0,61	-
Pa-231	210	-	166	-	0,79	-
U -232	148		31			0,21
U -233	48	531	12,5	121	0,26	0,23
U -234	100	-	21	-	0,21	-
U -235	99	582	23	122	0,23	0,21
U -236	5,2	-	8,6	-	1,65	-
U -238	2,7	-	18	-	6,67	-
Np-237	169	-	76	-	0,45	-
Pu-238	547	-	210	-	0,38	-
Pu-239	269	743	143	1817	0,53	2,45
Pu-240	289	-	145	-	0,5	-
Pu-241	368	1009	137	354	0,37	0,35
Pu-242	19	-	12	-	0,63	-
Am-241	784	-	322	-	0,41	-
Am-243	79	-	37	-	0,47	-
Cm-242	20	-	8,4	-	0,42	-
Cm-244	13,9	-	6	-	0,43	-

TAB. 3: EINGRUPPENWIRKUNGSQUERSCHNITTE DER AKTINIDNUKLIDE IN AVR-BRENNELEMENTEN

Die Verwendung dieser Wirkungsquerschnitte für die Berechnung der Nuklidzusammensetzung von Brennelementen aus einem Leistungsreaktor des HTR-Typus ist natürlich mit einem Risiko behaftet. Die so erhaltenen Werte können keinen absoluten Anspruch auf Zuverlässigkeit erheben, sie zeigen nur eine Tendenz auf, die sich allerdings bei der Entwicklung eines Konzepts für die Schließung des Kreislaufs von MEU-Brennelementen als hilfreich erweisen wird.

2.2 Rezyklierung von Uran

Das ursprüngliche Th-U-Brennstoffkreislaufkonzept sah nur die Rezyklierung des Restspaltstoffs der Brennelemente (nicht verbrauchtes ^{235}U und erbrütetes ^{233}U) vor, Th sollte als schwachradioaktiver Abfall der Endlagerung zugeführt werden. Von dieser Strategie ist man seit langem abgekommen, denn Th muß heutzutage als radiumhaltiger Abfall behandelt werden, mithin verteuert sich eine Th-Endlagerung erheblich. Außerdem widerspricht die direkte Th-Endlagerung der gesetzlichen Forderung, den Anfall von radioaktiven Abfällen zu minimieren. In diesem und in den nachfolgenden Kapiteln (Kap. 2.3 und 2.4) wird die Rezyklierung von Th dennoch außer acht gelassen, sie beeinflusst - ein konstanter Th-Gehalt in den frischen rezyklierten Brennelementen vorausgesetzt - ausschließlich die Konzentration der Nuklide ^{230}Th , ^{231}Pa und ^{232}U . (In Kap. 2.5 werden die Konsequenzen einer Th-Rezyklierung gesondert behandelt).

Bei dem in diesem Kapitel betrachteten Modell wird ausschließlich U rezykliert. Die anderen Aktinidenelemente (Pa, Np, Pu, Am und Cm) sind mit den Spaltprodukten vereinigt. Der Nuklidgehalt in den verbrauchten Brennelementen wird durch lineare Differentialgleichungen der Form:

$$\frac{dN_1}{dt} = -\sigma_1 \phi N_1 + \sigma_a 2 \phi N_2 \quad (1)$$

ausgedrückt.

Die rezyklierten, frischen Brennelemente des Zyklus n enthalten ausschließlich frisch zugeführtes Th, 99 % des Resturans der verbrauchten Brennelemente des vorangegangenen Zyklus ($[U]_{S(n-1)}$) und frisch zugeführtes, zu 19,8 % angereichertes Uran ($[U]_F$) mit den Isotopen ^{234}U , ^{235}U und ^{238}U , um den fehlenden Spaltstoff zu ergänzen. Damit ergeben sich folgende Nuklidkonzentrationen in den frischen Brennelementen:

- Spaltstoff (FM = fissionable material)

$$[FM]_{nF} = \text{const} = 0,99 [^fU]_{(n-1)S} + [^{235}\text{U}]_{nA} \quad (2)$$

Die Gesamtsplattstoffkonzentration in den rezyklierten Brennelementen ist gemäß den in Kap. 2.1 gemachten Voraussetzungen konstant.

- U-232

$$[^{232}\text{U}]_{nF} = 0,99 [^{232}\text{U}]_{(n-1)S} \quad (3)$$

- U-233

$$[^{233}\text{U}]_{nF} = 0,99 [^{233}\text{U}]_{(n-1)S} \quad (4)$$

- U-234

$$[^{234}\text{U}]_{nF} = 0,99 [^{234}\text{U}]_{(n-1)S} + \frac{0,154}{19,8} [^{235}\text{U}]_{nA} \quad (5)$$

- U-235

$$[^{235}\text{U}]_{nF} = 0,99 [^{235}\text{U}]_{(n-1)S} + [^{235}\text{U}]_{nA} \quad (6)$$

- U-236

$$[^{236}\text{U}]_{nF} = 0,99 [^{236}\text{U}]_{(n-1)S} \quad (7)$$

- U-238

$$[^{238}\text{U}]_{nF} = 0,99 [^{238}\text{U}]_{(n-1)S} + \frac{80}{19,8} [^{235}\text{U}]_{nA} \quad (8)$$

Die Symbole bedeuten:

- F \equiv Material in den frischen, rezyklierten Brennelementen (fresh)
- S \equiv Material in den verbrauchten Brennelementen (spent)
- A \equiv neu zugeführtes Material (added)

Mit Hilfe dieser Gleichungen (1 - 8) konnten die Nuklidgehalte in den verbrauchten Brennelementen bestimmt werden. Tabelle 4 enthält die numerischen Werte der Nuklidkonzentrationen.

Auffällig ist die Akkumulierung von ^{238}U , das wegen seines kleinen Absorptionsquerschnittes nur geringfügig umgewandelt wird und außerdem Bestandteil des neu zugeführten, spaltbaren Materials ist.

Durch die hohe ^{238}U -Konzentration in den Brennelementen ist nicht mehr wie bei dem HEU-Konzept (high enriched uranium) ^{238}Pu der Hauptbestandteil des Gesamtplutoniums [2], sondern die aus ^{238}U gebildeten Isotope ^{239}Pu und ^{240}Pu .

Die Transplutoniumelementkonzentrationen haben im MEU-Brennelement etwa den zehnfachen Wert gegenüber dem HEU-Element.

2.3 Rezyklierung von Uran und Plutonium

Der Th-U-Brennstoffkreislauf mit dem HEU-Brennelementkonzept gilt zu Recht als Pu-arm. Der Pu-Anteil in den verbrauchten HEU-Brennelementpartikeln beträgt 0,15 %, 85 % entstehen aus ^{235}U , 70 % vom Gesamtplutonium sind das nicht spaltbare Isotop ^{238}Pu . Eine Pu-Weiterverwertung innerhalb des Brennstoffkreislaufs war deshalb ursprünglich auch nicht in die Rezyklierungsstrategie verbrauchter HEU-Brennelemente mit eingeschlossen.

Zyklus Nuklid	1	5	10	15	20	25
^{232}Th [g]	4,6	4,6	4,6	4,6	4,6	4,6
^{231}Pa [μg]	10	10	10	10	10	10
^{232}U [μg]	23	55	59	60	60	60
^{233}U [mg]	137	157	157	157	157	157
^{234}U [mg]	19	76	93	96	96	96
^{235}U [mg]	70	61	64	64	64	64
^{236}U [mg]	81	249	358	412	438	450
^{238}U [g]	1,9	4,1	4,9	5,0	5,1	5,1
^{237}Np [mg]	4,9	19	28	33	35	36
^{238}Pu [mg]	1,2	5,3	8	9	10	10
^{239}Pu [mg]	18	39	46	48	48	48
^{240}Pu [mg]	17	37	43	45	45	45
^{241}Pu [mg]	5	11	12	13	13	13
^{242}Pu [mg]	6	12	14	15	15	15
^{241}Am [mg]	0,1	0,2	0,25	0,26	0,26	0,26
^{243}Am [mg]	0,3	0,7	0,8	0,8	0,8	0,8
^{242}Cm [mg]	0,1	0,2	0,24	0,25	0,25	0,25
^{244}Cm [mg]	0,1	0,15	0,17	0,17	0,17	0,17

TAB. 4: AKTINIDNUKLIDGEHALTE IN EINEM VERBRAUCHTEN HTR-MEU-BRENNELEMENT BEI REZYKLIERUNG VON U

Da Pu, speziell das Isotop ^{238}Pu , eine hohe Alphaaktivität aufweist und hauptverantwortlich für das langfristige Radio-toxizitätspotential vom HTR-Abfall ist, wurde vorgeschlagen, dieses Element bei der Wiederaufarbeitung von HTR-Brennelementen abzutrennen und nicht zusammen mit dem hochradioaktiven Abfall einem Endlager zuzuführen [3]. Verfahren, die sich in die bestehenden Wiederaufarbeitungsprozesse voll integrieren lassen, wurden hierzu entwickelt und stehen kurz vor der Heißerprobung [4,5]. Die endgültige Beseitigung von Pu aus dem HEU-Brennelement ist noch nicht festgeschrieben, eine Rezyklisierung durch den HTR ist möglich und erscheint sinnvoll [2].

Im MEU-Brennelement entsteht durch den hohen ^{238}U -Gehalt sehr viel mehr spaltbares Pu. Wird Pu zusammen mit den Spaltprodukten verglast und dann endgelagert, steigt die Konzentration an Spaltstoff im Glasblock auf mehr als das Zehnfache, verglichen mit dem HEU-Brennelement. In Abb. 1 ist die prozentuale Spaltstoffkonzentration im Glasprodukt in Abhängigkeit von der Zyklenzahl dargestellt. Nach ca. 14 Zyklen ist eine Endkonzentration von 1,6 % Spaltstoffoxiden erreicht, sie bestehen zu 96 % aus spaltbarem PuO_2 . Der Spaltstoffgehalt des verglasten HEU-Abfalls übersteigt 0,1 % nicht. Der Zeichnung wurde das gültige Verglasungskonzept mit 20 % Metalloxiden in der Glasmatrix (Schwermetall, Spaltprodukte, Korrosionsprodukte) zugrunde gelegt [6].

Die Spaltstoffkonzentration im MEU-Abfall kann durch eine Rezyklisierung von Pu durch den HTR erheblich gesenkt werden. Der Schwermetallnuklidgehalt läßt sich analog Kap. 2.2 berechnen, nur Gleichung 2 muß umgeformt werden:

$$[\text{FM}]_{\text{nF}} = \text{const} = 0,99 [^{\text{f}}\text{U}]_{(\text{n}-1)\text{S}} + 0,99 [^{\text{f}}\text{Pu}]_{(\text{n}-1)\text{S}} + [^{235}\text{U}]_{\text{nA}} \quad (9)$$

Der Spaltstoff setzt sich jetzt aus den Nukliden ^{233}U , ^{235}U , ^{239}Pu und ^{241}Pu zusammen. Es wird eine Pu-Rückgewinnung von 99 % bei der Wiederaufarbeitung vorausgesetzt; diese Ausbeute kann möglicherweise nicht erzielt werden. Die Konzentrationen

Spaltstoffanteil des hochradioaktiven Abfalls
aus MEU - Brennelementen bei U-Rezyklierung

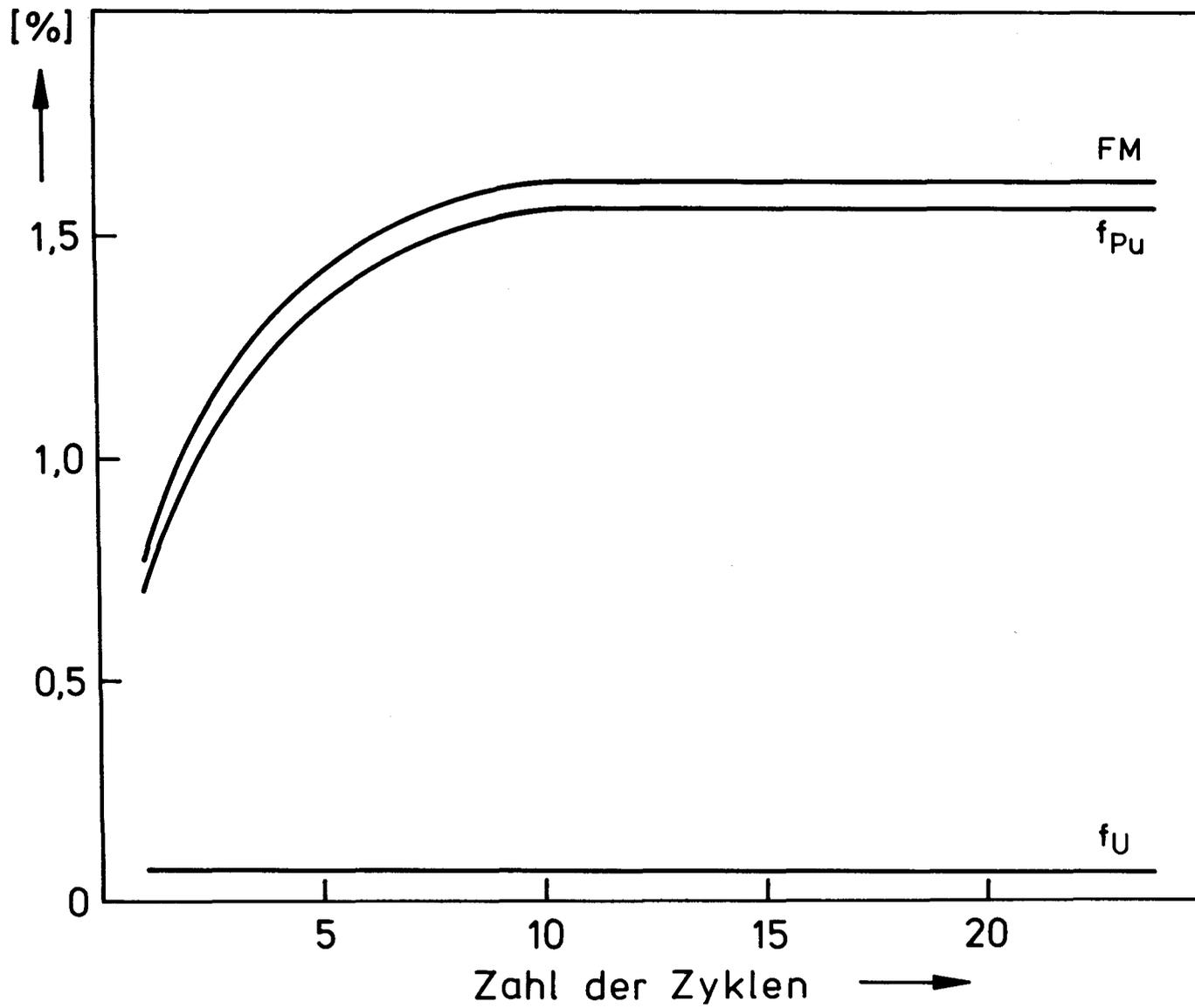


ABB. 1: SPALTSTOFFANTEIL DES VERGLASTEN, HOCHRADIOAKTIVEN ABFALLS VON MEU-HTR-BRENNELEMENTEN BEI REZYKLIERUNG VON U

der Pu-Isotope können durch die Gleichung

$$[{}^X\text{Pu}]_{nF} = 0,99 [{}^X\text{Pu}]_{(n-1)S} \quad (10)$$

beschrieben werden.

Tabelle 5 zeigt die Aktinidnuklidgehalte. Signifikante Unterschiede weisen die Konzentrationen der höheren U-Isotope ${}^{236}\text{U}$ und ${}^{238}\text{U}$ auf, ihre Verminderung wird durch die geringere Zufuhr an frisch angereichertem Spalturan hervorgerufen. Demgegenüber wird ${}^{242}\text{Pu}$ durch die Pu-Rezyklierung in den Brennelementen akkumuliert, die Konzentration der Folgeprodukte ${}^{243}\text{Am}$ und ${}^{244}\text{Cm}$ erreicht in den verbrauchten Brennelementen den 25fachen bzw. 35fachen Wert, verglichen mit den Brennelementen ohne Pu-Rezyklierung (Tab. 4).

2.4 Anreicherung des Restspaltstoffs

Durch die Rezyklierung des Gesamturans werden die höheren U-Isotope ${}^{236}\text{U}$ und vor allem ${}^{238}\text{U}$ im Brennelement angereichert. Gleichzeitig verringert sich der prozentuale Spaltstoffanteil, weil der Anreicherungsgrad von ${}^{235}\text{U}$ im frisch zugeführten Brennstoff 20 % nicht übersteigt, wie es das Konzept dieser Studie vorsieht.

Aus Abb. 2 ist ersichtlich, daß der Spaltstoffanteil von 7,8 % des Brennelements des 1. Zyklus auf ca. 5 % (bei Rückführung von U) bzw. 5,2 % (bei Rückführung von Pu) in den rezyklierten Brennelementen sinkt. Damit nähert sich das MEU-Konzept dem LEU-Konzept (low enriched uranium), das für den HTR nicht empfohlen wird [1]. Um das Potential des HTR als stromerzeugender Konverter zu erhalten, wird in dieser Studie die Anreicherung des Restspalturans der verbrauchten Brennelemente auf ihre Auswirkung auf die Brennelementzusammensetzung untersucht. Wirtschaftliche Aspekte und technologische Durchführ-

Zyklus Nuklid	1	5	10	15	20	25
^{232}Th [g]	4,6	4,6	4,6	4,6	4,6	4,6
^{231}Pa [μg]	10	10	10	10	10	10
^{232}U [μg]	23	55	59	60	60	60
^{233}U [mg]	137	157	157	157	157	157
^{234}U [mg]	19	75	92	95	95	96
^{235}U [mg]	70	57	58	58	58	58
^{236}U [mg]	81	235	327	370	390	400
^{238}U [g]	1,9	3,9	4,4	4,4	4,5	4,5
^{237}Np [mg]	4,9	18	26	29	31	32
^{238}Pu [mg]	1,2	5	8	9	9	9
^{239}Pu [mg]	18	36	41	42	42	42
^{240}Pu [mg]	17	39	44	45	45	45
^{241}Pu [mg]	4,9	12	13	14	14	14
^{242}Pu [mg]	6	61	112	136	146	150
^{241}Am [mg]	0,1	0,26	0,31	0,31	0,31	0,31
^{243}Am [mg]	0,34	7,6	15	19	20	21
^{242}Cm [mg]	0,1	0,3	0,36	0,37	0,37	0,37
^{244}Cm [mg]	0,1	2,1	4	5,5	5,9	6,1

TAB. 5: AKTINIDNUKLIDGEHALTE IN EINEM VERBRAUCHTEN HTR-MEU-BRENNELEMENT BEI REZYKLIERUNG VON U UND Pu

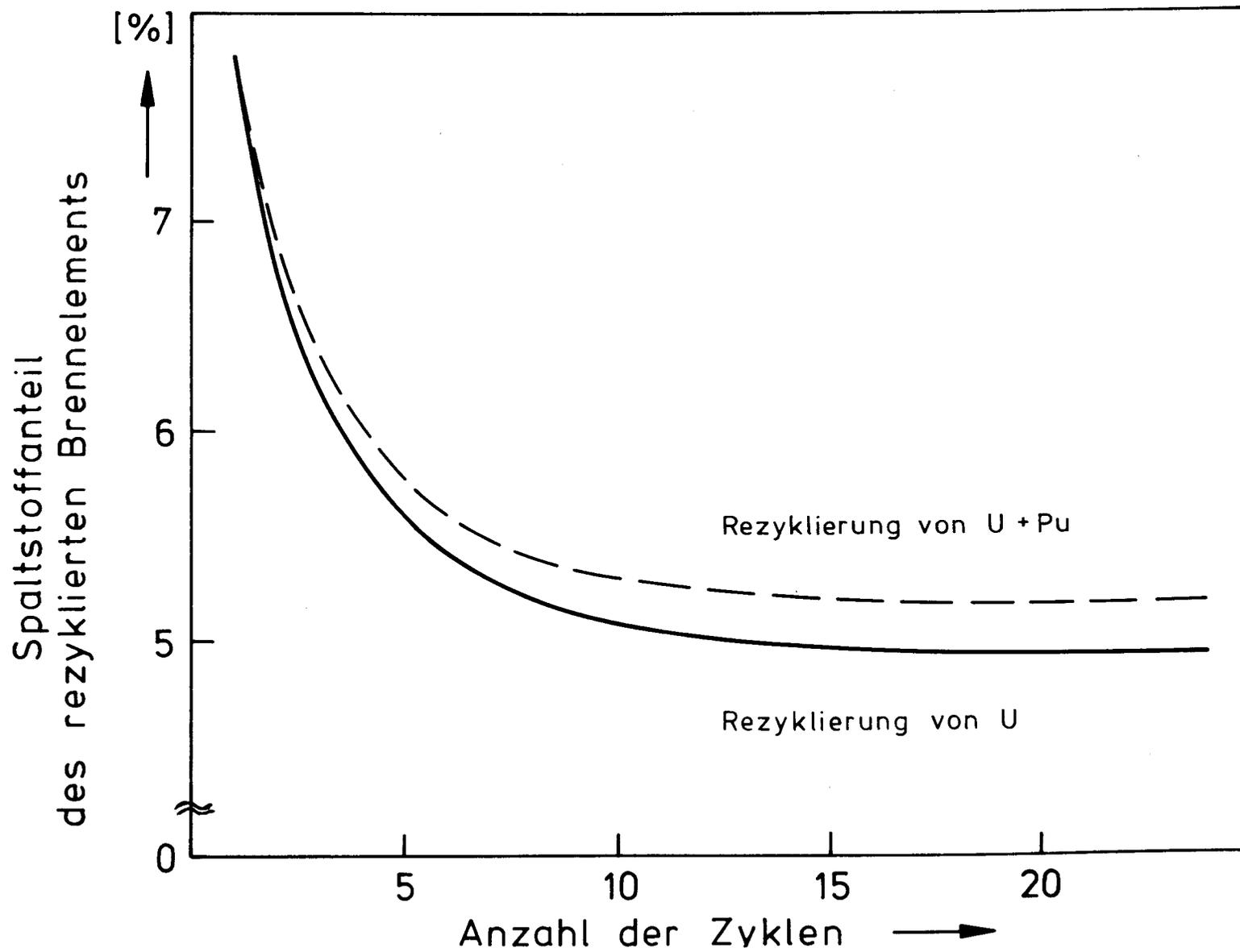


ABB. 2: SPALTSTOFFANTEIL IN REZYKLIERTEN FRISCHEN MEU-HTR-BRENNELEMENTEN BEI KONSTANTEM T_{H-} ZUSATZ

barkeit dieser neuen Brennstoffkreislaufkomponente sollen dabei nicht berücksichtigt werden. Ebenso wird eine Ergänzung des Restspaltstoffs durch hochangereichertes ^{235}U nicht in Betracht gezogen. Diese Möglichkeit ist zwar technisch wesentlich einfacher zu realisieren, durchbricht aber den Rahmen dieser Studie.

Grundsätzlich ist die Anreicherung des Resturans bereits für den HEU-Zyklus erwogen worden [3,7], um durch die Abtrennung der Nuklide ^{236}U und ^{238}U bei gleichzeitiger Anreicherung des rezyklierten Brennstoffs auf 93 % die Konzentration der alpha-strahlenden Transurane zu reduzieren. Im vorliegenden Beispiel soll der Restbrennstoff nur auf 20 % angereichert werden. Bei diesem Anreicherungsgrad verbleibt in erster Näherung ^{236}U vollständig bei ^{235}U , nur ^{238}U wird aus dem Brennstoff entfernt [8]. In den folgenden Kapiteln wird die Anreicherung bei Rezyklierung von U und von U + Pu betrachtet.

2.4.1 Rezyklierung von Uran mit Restspaltstoffanreicherung

Wird der Urananteil des Restspaltstoffs des verbrauchten Brennelements angereichert, gelten die Gleichungen 2 - 7 unverändert. ^{238}U wird durch die Spaltstoffanreicherung entzogen, seine Konzentration beträgt im rezyklierten Brennelement

$$\begin{aligned} [^{238}\text{U}]_{\text{nF}} &= 0,99 \cdot 4 \{ [^{233}\text{U}]_{(n-1)\text{S}} + [^{235}\text{U}]_{(n-1)\text{S}} \} \\ &- 0,99 \{ [^{234}\text{U}]_{(n-1)\text{S}} + [^{236}\text{U}]_{(n-1)\text{S}} \} \\ &+ \frac{80}{19,8} [^{235}\text{U}]_{\text{nA}} \end{aligned} \quad (11)$$

Die Nuklidkonzentrationen für diese Rezyklierungsstrategie sind in Tabelle 6 zusammengefaßt. Durch die Anreicherung werden

Zyklus Nuklid	1	5	10	15	20	25
^{232}Th [g]	4,6	4,6	4,6	4,6	4,6	4,6
^{231}Pa [μg]	10	10	10	10	10	10
^{232}U [μg]	23	55	59	60	60	60
^{233}U [mg]	137	157	157	157	157	157
^{234}U [mg]	19	76	93	96	96	96
^{235}U [mg]	70	61	63,5	64	64	64
^{236}U [mg]	81	249	358	411	438	450
^{238}U [g]	1,9	1,7	1,6	1,55	1,5	1,5
^{237}Np [mg]	4,9	19	28	33	35	36
^{238}Pu [mg]	1,2	5	8	9	10	10
^{239}Pu [mg]	18	25	24	23,5	23	23
^{240}Pu [mg]	17	23	22	22	22	22
^{241}Pu [mg]	4,9	6,6	6,4	6,3	6,3	6,2
^{242}Pu [mg]	5,9	7,8	7,5	7,4	7,3	7,3
^{241}Am [mg]	0,1	0,13	0,13	0,13	0,13	0,13
^{243}Am [mg]	0,34	0,44	0,42	0,42	0,41	0,41
^{242}Cm [mg]	0,1	0,13	0,12	0,12	0,12	0,12
^{244}Cm [mg]	0,13	0,12	0,12	0,12	0,12	0,12

TAB. 6: AKTINIDNUKLIDGEHALTE IN EINEM VERBRAUCHTEN HTR-MEU-BRENNELEMENT BEI REZYKLIERUNG VON U NACH ANREICHERUNG DES RESTSPALTSTOFFS

nur die Nuklidkonzentrationen von ^{238}U und dessen Folgeprodukte beeinflusst. ^{238}U wird durch den anwachsenden ^{236}U -Gehalt vermindert, dieser Trend ist ebenfalls bei den Folgeprodukten zu beobachten. Dadurch wird - verglichen mit der U-Rezyklierung ohne Anreicherung - der mittlere Anteil an Spaltstoff im Abfall auf die Hälfte, der der nicht spaltbaren Transurane wegen der unveränderten Nuklidkonzentrationen von ^{237}Np und ^{238}Pu auf 70 % verringert.

2.4.2 Rezyklierung von Uran und Plutonium mit Restspaltstoffanreicherung

Wird auch die Pu-Rezyklierung in das Konzept der Restspaltstoffanreicherung eingeschlossen, gelten die Gleichungen 3 - 7, 9 und 10 unverändert. Auch bei dieser Variante wird ausschließlich U angereichert, der spaltbare Anteil von Pu im verbrauchten Brennelement übersteigt immer (s. Abb. 3) 20 %.

Die ^{238}U -Konzentration im unbestrahlten, rezyklierten Brennelement wird durch die Gleichung

$$\begin{aligned} [^{238}\text{U}]_{\text{nF}} &= 4 \cdot 0,99 \{ [^{233}\text{U}]_{(n-1)\text{S}} + [^{235}\text{U}]_{(n-1)\text{S}} + [^{239}\text{Pu}]_{(n-1)\text{S}} \\ &+ [^{241}\text{Pu}]_{(n-1)\text{S}} \} - 0,99 \{ [^{234}\text{U}]_{(n-1)\text{S}} \\ &- [^{236}\text{U}]_{(n-1)\text{S}} \} + \frac{80}{19,8} [^{235}\text{U}]_{\text{nA}} \end{aligned} \quad (12)$$

ausgedrückt.

Vergleicht man die Nuklidkonzentrationen (Tabelle 7) dieser Variante mit der Rezyklierung von U und Pu ohne Anreicherung (Tab. 5), ergibt sich ein um die Hälfte verringerter Transurannuklidgehalt, da das Ausgangsglied dieser Kette, ^{238}U , ständig dem Brennstoffkreislauf entzogen wird. Die Uranisotope und Transurannuklide niedrigerer Ordnungszahl sind durch die Anreicherung in ihren Konzentrationen nur geringfügig verändert.

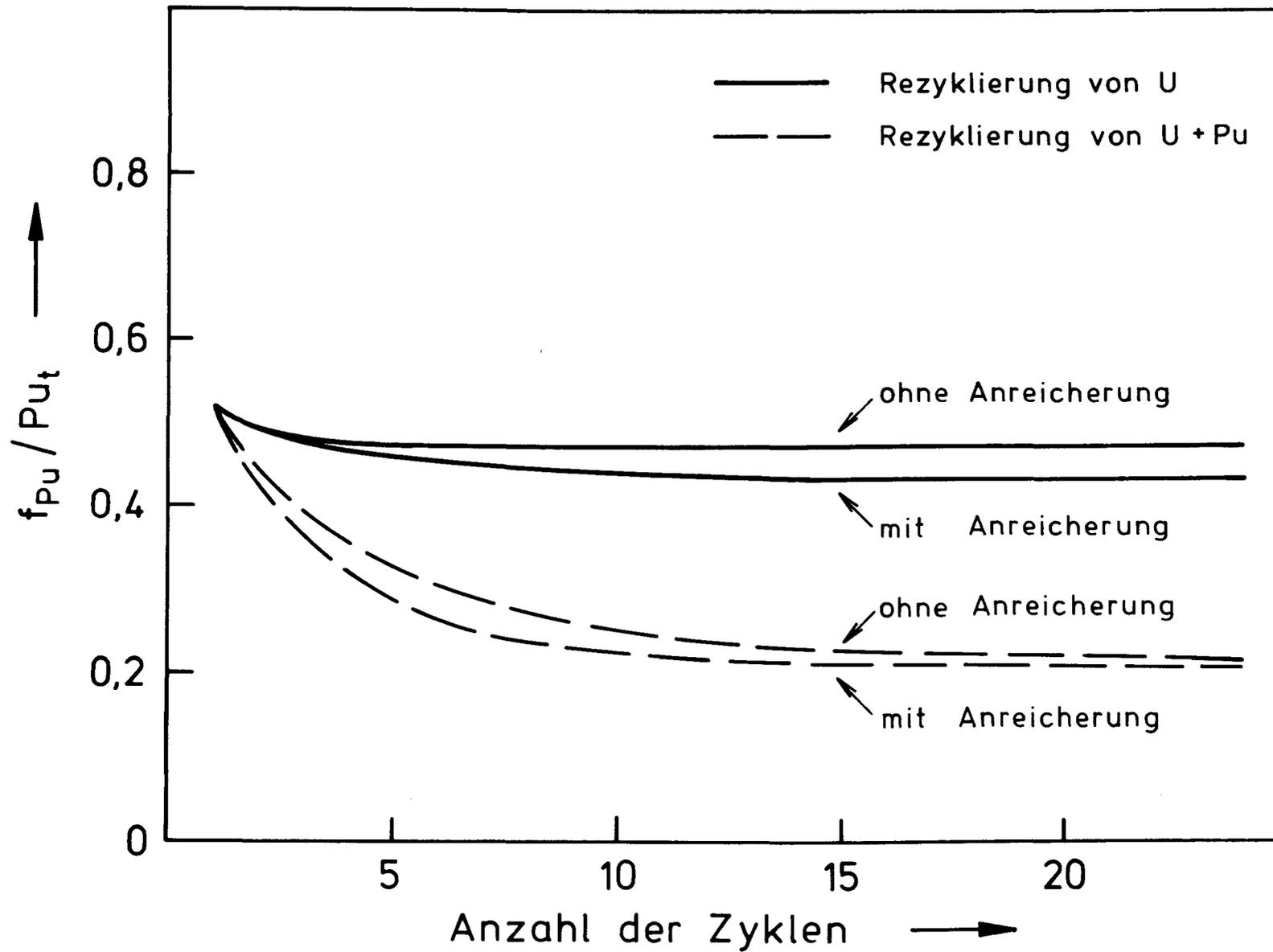


ABB. 3: SPALTBARER ANTEIL VON PU IN VERBRAUCHTEN MEU-HTR-BRENNELEMENTEN BEI VERSCHIEDENEN REZYKLIERUNGSSTRATEGIEN

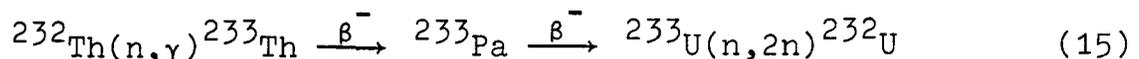
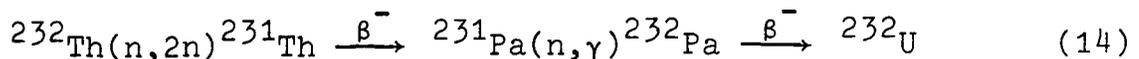
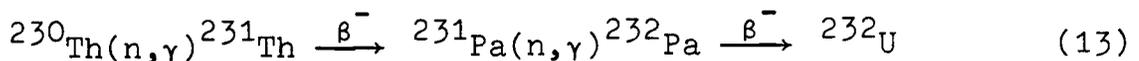
Zyklus Nuklid	1	5	10	15	20	25
^{232}Th [g]	4,6	4,6	4,6	4,6	4,6	4,6
^{231}Pa [μg]	10	10	10	10	10	10
^{232}U [μg]	23	55	59	60	60	60
^{233}U [mg]	137	157	157	157	157	157
^{234}U [mg]	19	75	92	95	95	96
^{235}U [mg]	70	58	60	61	61	61
^{236}U [mg]	81	236	336	386	411	423
^{238}U [g]	1,9	1,7	1,6	1,6	1,6	1,6
^{237}Np [mg]	4,9	18	26	31	33	34
^{238}Pu [mg]	1,2	5	8	9	10	10
^{239}Pu [mg]	18	24	23	23	23	23
^{240}Pu [mg]	17	25	25	24	24	24
^{241}Pu [mg]	4,9	7,7	7,5	7,4	7,3	7,3
^{242}Pu [mg]	5,9	49	71	78	81	82
^{241}Am [mg]	0,1	0,18	0,17	0,17	0,17	0,17
^{243}Am [mg]	0,34	6,3	9,7	11	11	11
^{242}Cm [mg]	0,1	0,2	0,2	0,2	0,2	0,2
^{244}Cm [mg]	0,1	1,8	2,8	3,2	3,3	3,3

TAB. 7: AKTINIDNUKLIDGEHALTE IN EINEM VERBRAUCHTEN HTR-MEU-BRENNELEMENT BEI REZYKLIERUNG VON U UND PU NACH ANREICHERUNG DES RESTSPALTSTOFFS

Der Gesamtsplattstoffanteil im verglasten hochradioaktiven Abfall liegt bei 0,05 %.

2.5 Rezyklierung von Thorium

Die Rezyklierung von Resturan aus HTGR-Brennelementen wird durch den verhältnismäßig raschen Aufbau von γ -Strahlern hoher Energie - ^{212}Bi und ^{208}Tl den Zerfallsprodukten von ^{232}U - sehr erschwert. ^{232}U wird durch folgende Kernreaktionen gebildet (s. Abb. 4):



Reaktion Nr. 15 ist umstritten, in den einschlägigen Handbüchern [9,10] ist kein Hinweis darauf zu finden.

Bei Untersuchungen an verbrauchten AVR-Brennelementen [2] konnte ebenfalls kein Hinweis auf die Reaktionen gemäß den Gleichungen 14 und 15 gefunden werden. Es wird allerdings betont, daß die Deutung der experimentellen Ergebnisse mit Fehlern behaftet sein kann, da die ^{230}Th -Anfangskonzentration in den frischen Brennelementen nur aus einer internen Spezifikation der Herstellerfirma bekannt war, die ^{230}Th -Konzentration der verbrauchten Brennelemente sich einer analytischen Bestimmung entzog.

In Kapitel 2. wurde bereits erwähnt, daß die Rezyklierung von Th aus gesetzlichen und ökonomischen Gründen Bestandteil des Konzepts des Th-U-Brennstoffkreislaufs ist. Dadurch wird der Gehalt an ^{230}Th und damit auch die Bildung von ^{232}U in den rezyklierten Brennelementen verändert. Die ^{232}Th -Konzentration bleibt für jeden Zyklus konstant.

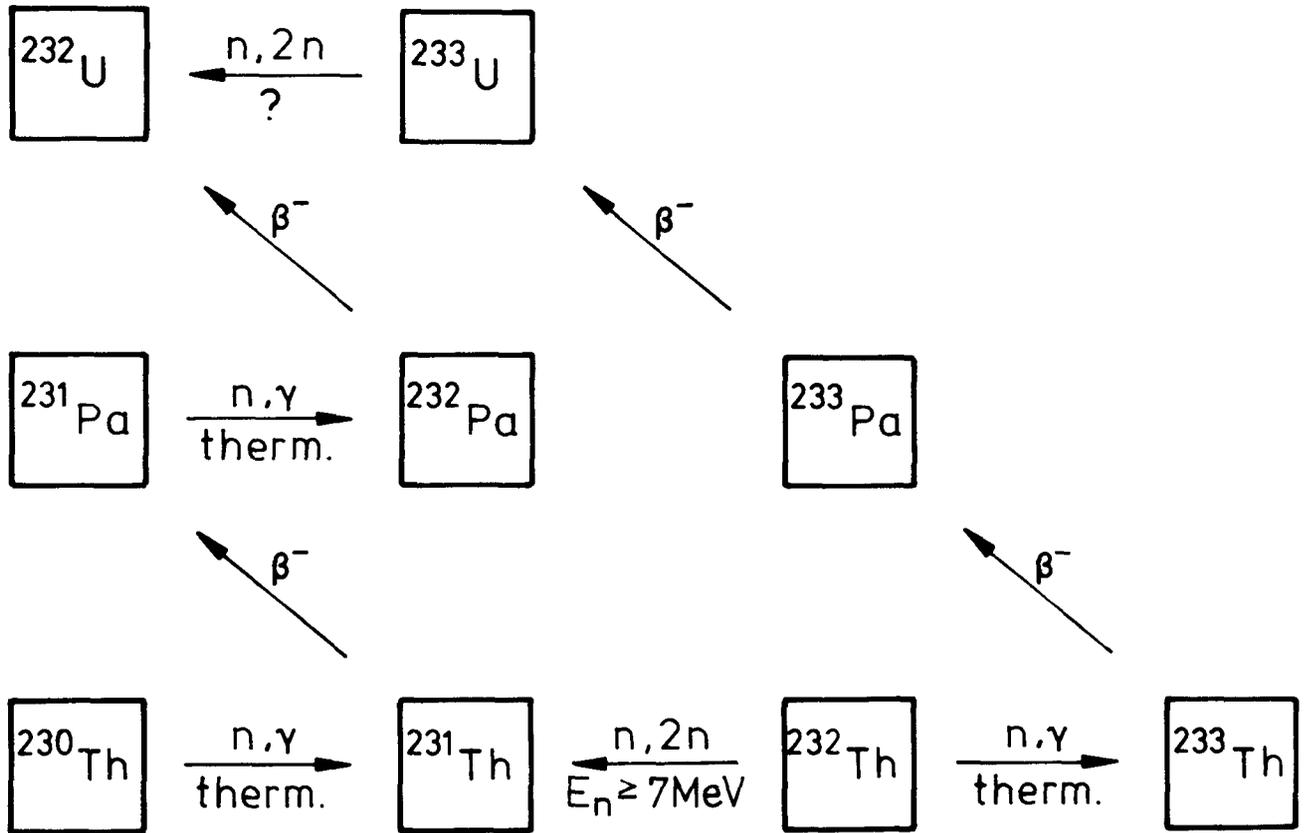


ABB. 4: BILDUNG VON ^{232}U IN TH-U-BRENNELEMENTEN

In den verbrauchten Brennelementen ergibt sich die ^{230}Th -Konzentration nach Gleichung 1. Für die ^{230}Th -Konzentration der frischen rezyklierten Brennelemente gilt:

$$[^{230}\text{Th}]_{nF} = 0,99 [^{230}\text{Th}]_{(n-1)S} + 10^{-5} [^{232}\text{Th}]_A \quad (16)$$

$$[^{232}\text{Th}]_A = [^{232}\text{Th}]_F - 0,99 [^{232}\text{Th}]_S \quad (17)$$

Die Gehalte der Nuklide ^{230}Th , ^{231}Pa und ^{232}U , die durch die Th-Rezyklierung beeinflusst werden, sind in Tabelle 8 zusammengefaßt. ^{231}Pa wird nicht rezykliert, sondern dem Brennstoff nach jedem Zyklus vollständig entzogen.

Zyklus Nuklid	1	5	10	15	20	25
^{230}Th [μg]	11,3	1,1	1,1	1,1	1,1	1,1
^{231}Pa [μg]	10,4	1,0	1,0	1,0	1,0	1,0
^{232}U [μg]	23	9,9	6,1	5,8	5,7	5,7

TAB. 8: AKTINIDNUKLIDGEHALTE AUS DER KERNUMWANDLUNG VON ^{230}Th IN EINEM VERBRAUCHTEN HTR-MEU-BRENNELEMENT BEI REZYKLIERUNG VON Th

Durch die Th-Rezyklierung wird die ^{232}U -Konzentration der verbrauchten Brennelemente durchschnittlich um eine Größenordnung verringert. Zwei Gesichtspunkte dürfen hierbei nicht außer acht gelassen werden:

- ^{230}Th ist ein natürlich vorkommendes Nuklid, jedoch nicht ein Glied der ^{232}Th -, sondern der ^{238}U -Zerfallskette. Bestandteil von Th wird es bei der Uranerzaufbereitung; U- und Th-Erze kommen in der Natur vergesellschaftet vor.

Durch Auswahl geeigneter, uranarmer Erze kann der ^{230}Th -Gehalt des bei der Brennelementfabrikation eingesetzten Th bis auf 0,1 ppm gesenkt werden [11].

- Die Konkurrenzreaktion aus ^{232}Th (Gleichung 14) gewinnt bei der Th-Rezyklierung mehr an Gewicht, sie muß deshalb in die Rechnung mit einbezogen werden.

Die Umwandlung von ^{232}Th in ^{231}Th beginnt bei Neutronenenergien $\geq 6,5$ MeV spürbar zu werden [9]. Im Energiebereich

$$8 \text{ MeV} \leq E \leq 13 \text{ MeV}$$

ist der Wirkungsquerschnitt der Kernreaktion (Gleichung 14) nahezu konstant und beträgt: $\sigma_{n,2n} \approx 2$ barn. Für das Neutronenspektrum eines Kernreaktors wird ein Wirkungsquerschnitt von:

$$\sigma_{n,2n} \text{ Th-232} = 0,014 \text{ barn}$$

empfohlen [10]. Der Anteil schneller Neutronen (≥ 6 MeV) des Jülicher Kugelhaufenreaktors AVR am Gesamtspektrum beträgt 0,15 % [12]. Aus diesen Angaben konnte der ^{232}U -Anteil aus ^{232}Th in verbrauchten rezyklierten MEU-Brennelementen rechnerisch ermittelt werden. Es muß aber betont werden, daß die Ergebnisse dieser Kalkulation (Tabelle 9) experimentell noch nicht bestätigt worden sind, der Gesamtfehler der analytischen ^{232}U -Bestimmung in verbrauchten HTR-Brennelementen liegt bei $\pm 3,8$ % [2], somit in der gleichen Größenordnung wie der berechnete ^{232}U -Anteil aus ^{232}Th .

Zyklus	1	5	10	15	20	25
Nuklid						
^{232}U [μg]	0,84	2,0	2,2	2,2	2,2	2,2

TAB. 9: ^{232}U -ANTEIL AUS DER KERNUMWANDLUNG VON ^{232}Th IN EINEM VERBRAUCHTEN MEU-HTR-BRENNELEMENT BEI REZYKLIERUNG VON TH

Der ^{231}Pa -Anteil aus ^{232}Th ist für alle Zyklen konstant und beträgt 0,6 μg /Brennelement.

Aus der graphischen Darstellung der ^{232}U -Konzentration in MEU-Brennelementen (Abbildung 5) geht hervor, daß der ^{232}U -Gehalt durch eine Verringerung der ^{230}Th -Konzentration im eingesetzten Th bei der Brennelementfabrikation auf 1 ppm auf ca. 10 % gesenkt werden kann. Eine weitere Reduzierung ist wegen der n,2n Kernumwandlung von ^{232}Th zu ^{232}U nicht möglich.

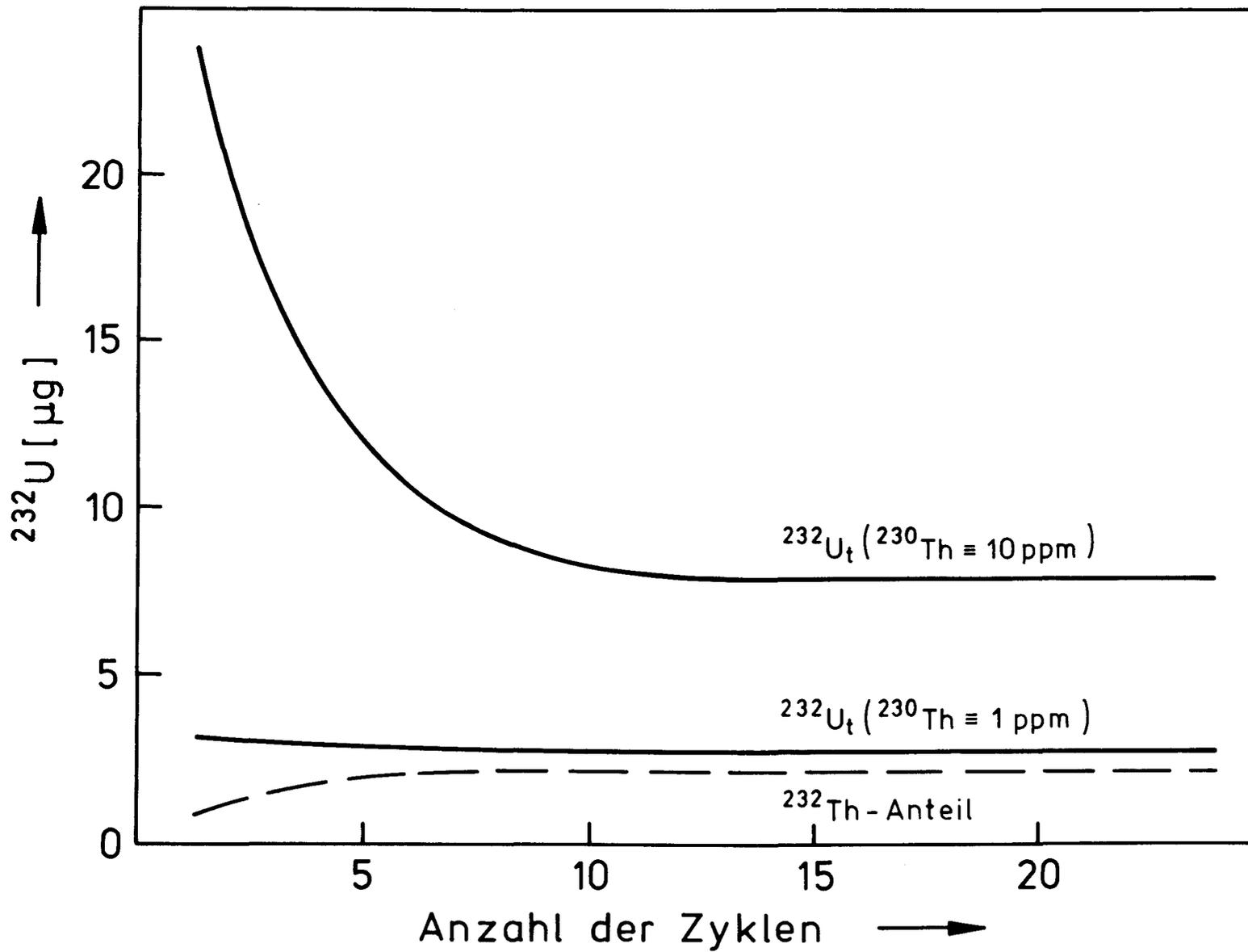


Abb. 5: ^{232}U -KONZENTRATION IN VERBRAUCHTEN MEU-HTR-BRENNELEMENTEN BEI VERSCHIEDENEN ^{230}Th -GEHALTEN

3. VERFAHREN ZUR BRENNSTOFFKREISLAUFSCHLIESSUNG

Das MEU-HTR-Brennelementkonzept wurde aus zwei Gründen entwickelt

- Verwendung niedriger angereicherter Urans im Brennstoffkreislauf
- Bewahrung des Potentials des Hochtemperaturreaktors

Die ausschließliche Verwendung 20 % U-235 führt zu erheblichen Veränderungen im Th-U-Brennstoffkreislauf (Abbildung 6). Hauptsächlich ist die Schließung des Brennstoffkreislaufs davon betroffen, einerseits durch die Rezyklisierung von Pu, die sich auf Wiederaufarbeitung und Brennelementherstellung auswirkt, andererseits durch die diskutierte Anreicherung des Restspaltstoffs.

Verfahren zur Schließung des äußeren Kernbrennstoffkreislaufs nach diesem MEU-HTR-Konzept sind bisher noch nicht entwickelt. Eine Abschätzung der Kreislaufkosten ist somit noch nicht möglich. In den folgenden Kapiteln sollen deshalb ausschließlich die unterschiedlichen Auswirkungen der Brennelementzusammensetzung beider Varianten (HEU und MEU) auf die Kreislaufkomponenten verdeutlicht werden.

3.1 Wiederaufarbeitung

Die Wiederaufarbeitung besteht aus dem Head-end - der Abtrennung des Moderatorgraphits von dem verbrauchten Brennstoff und der Auflösung der Oxidasche - dem chemischen Prozeßteil - der extraktiven Fraktionierung der Brennstofflösung in die einzelnen Bestandteile (Schwermetalle und Spaltprodukte) - und der Produktfeinreinigung.

Beim Head-end sind keine gravierenden Unterschiede zwischen MEU- und HEU-Konzept zu erwarten. Die Zusammensetzung der Brennstofflösung beim MEU-Konzept (Tabelle 10) verdeutlicht

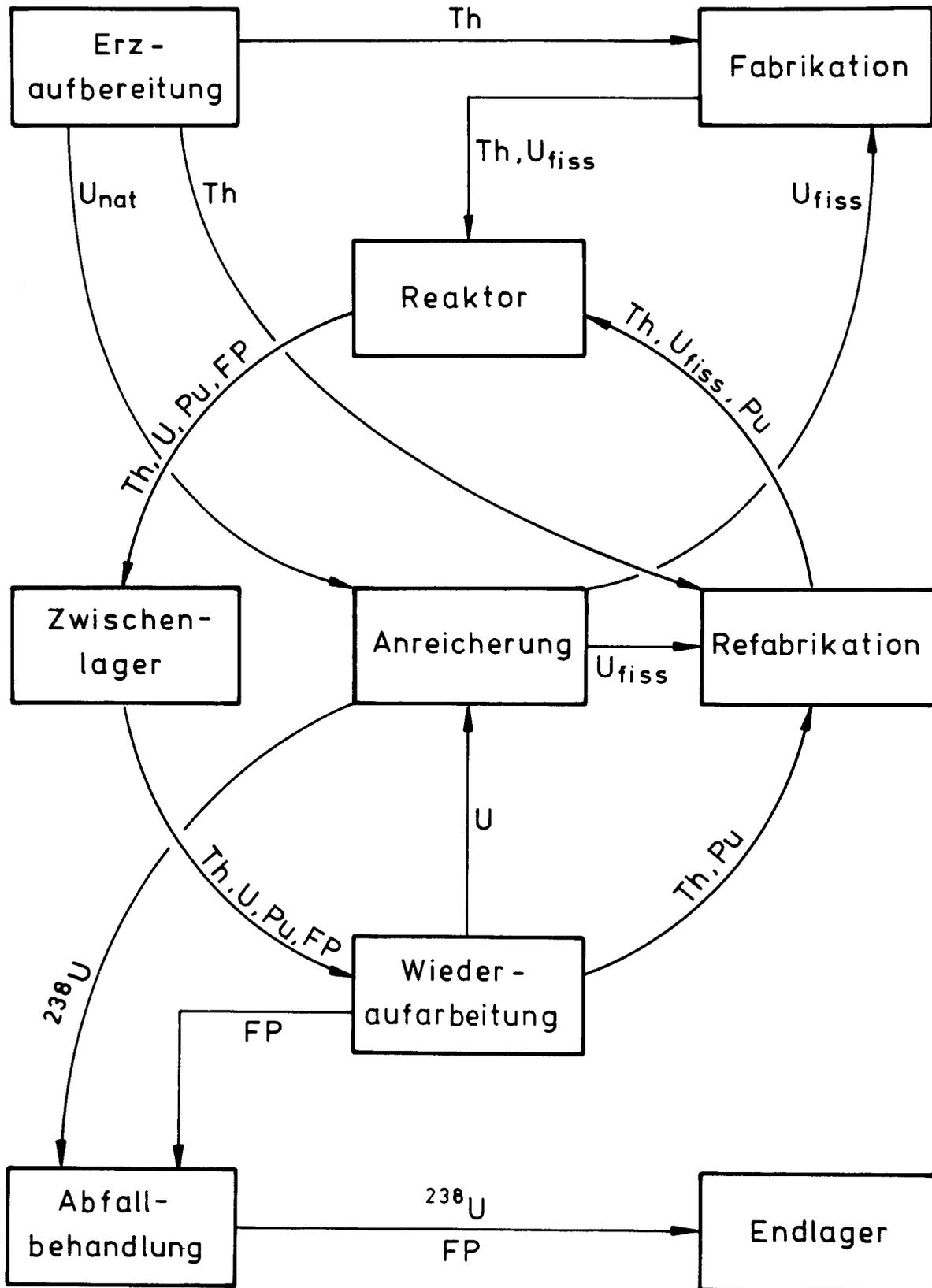


ABB. 6: BRENNSTOFFKREISLAUF FÜR DAS MEU-HTR-KONZEPT

jedoch, daß die bisher gebräuchlichen extraktiven Verfahren - ein- und zweizyklischer THOREX-Prozeß - stark modifiziert werden müssen. Das Verhältnis Th : U beträgt 8 : 1 beim HEU-Konzept, 0,8 : 1 beim MEU-Konzept bzw. 2 : 1 bei zusätzlicher Restspaltstoffanreicherung. Pu ist mit 1 % bzw. 2 % des Gesamtschwermetalls nicht mehr Spurenbestandteil, sondern wird das Extraktionsverhalten beeinflussen.

Die Rezyklierung von Pu erfordert nicht unbedingt eine Aufspaltung der Schwermetalle in drei getrennte Produktströme. Es ist sowohl vom apparativen Aufwand als auch vom chemischen Verhalten her einfacher, Th und Pu in einem Produktstrom zu vereinigen und der gemeinsamen Refabrikation zu überantworten. Der Uranstrom sollte wegen der sich an die Wiederaufarbeitung anschließenden Restspaltstoffanreicherung Pu-frei sein.

Wird der Restspaltstoff nicht angereichert, verändert sich die Zusammensetzung der Brennelemente mit wachsender Zahl der Reaktorzyklen so stark, daß unterschiedliche Wiederaufarbeitungsprozesse für oft und wenig rezyklierten Brennstoff entwickelt werden müssen.

Tabelle 10 wurde eine Gesamtkonzentration an Th + U von 300 g/l Brennstofflösung (das entspricht dem Konzept der Wiederaufarbeitung von HEU-Brennelementen) zugrunde gelegt, um einen Vergleich der verschiedenen Brennelementkonzepte zu ermöglichen.

3.2 Abfallbehandlung

Das zur Zeit gültige Konzept für die Behandlung des hochradioaktiven Abfalls sieht eine Denitrierung und Kalzinierung mit anschließender Verglasung der Abfalloxide vor. Der verglaste Abfall soll entweder direkt als Glasblock oder eingegossen in eine Bleimatrix in Steinsalzstöcken endgelagert werden.

Konzept Rezyklierung		H E U		M E U		M E U	
		U	U + Pu	U	U + Pu	U	U + Pu
Bestandteil		Restspaltstoffanreicherung nach jedem Zyklus					
Th	g/l	266	266	133	138	200	196
U	g/l	34	34	167	155	100	98
Pu	g/l	0,5	0,7	3,8	7,4	3	6
Transurane	g/l	1,2	1,2	1	1,6	1,5	2
Spaltprodukte	g/l	28,5	28,5	13,4	13,8	20	19,7

TAB. 10: ZUSAMMENSETZUNG DER BRENNSTOFFLÖSUNG BEI DER WIEDERAUFARBEITUNG VON HEU- UND MEU-BRENNELEMENTEN NACH 15 REAKTORZYKLEN

Konzept Rezyklierung		H E U		M E U		M E U	
		U	U + Pu	U	U + Pu	U	U + Pu
Bestandteil		Restspaltstoffanreicherung nach jedem Zyklus					
Schwermetall	[%]	2,6	2,4	6,6	4,6	4,9	3,6
Th	[%]	1,5	1,5	1,2	1,4	1,3	1,4
^{235}U	[%]	0,1	0,1	1,5	1,6	0,6	0,7
TU	[%]	0,9	0,7	2,3	1,5	2,1	1,4
FM	[%]	0,11	0,07	1,6	0,09	0,9	0,08
Spaltprodukte	[%]	17,1	17,3	12,7	14,8	14,3	15,6
Korrosionsprodukte	[%]	0,3	0,3	0,6	0,7	0,7	0,7

TAB. 11: ZUSAMMENSETZUNG DES VERGLASTEN, HOCHRADIOAKTIVEN ABFALLS VON HEU- UND MEU-BRENNELEMENTEN NACH 15 REAKTORZYKLEN

Dieses Verfahren lässt sich auch auf das MEU-Brennelement anwenden. Die Hauptkomponente des verglasten Abfalls (Tabelle 11) sind bei jedem Konzept Spalt- und Korrosionsprodukte, eine Veränderung des Glaskörpers durch den höheren Schwermetall-oxidanteil ist nicht zu erwarten.

Ohne Rezyklierung von Pu steigt der Spaltstoffanteil im verglasten MEU-Abfall auf den zehnfachen bzw. sechzehnfachen Gehalt gegenüber dem MEU-Abfall. Soll diese hohe Spaltstoffkonzentration im Abfall vermieden werden, folgt zwangsläufig die Forderung nach einer Rezyklierung von Pu für das MEU-Brennelement.

Die numerischen Werte der Tabelle 11 basieren auf folgenden Annahmen:

- Anteil der Abfalloxide im Glas 20 %
- Abbrand 100.000 MWd/t (das entspricht 128 % fisa beim HEU-THTR- und 85 % fisa beim MEU-Brennelement)
- nicht flüchtiger Anteil der Spaltprodukte 85,9 %
- Verhältnis $FP/FP_{x,y} O_2$ 0,82

Aus der Anreicherung von U aus der Wiederaufarbeitung resultiert eine neue Abfallspezies. Dieser Abfall besteht aus abgereichertem Uran und gehört in die Kategorie der schwachradioaktiven Abfälle. Einzelheiten über die Beseitigung dieser Abfälle werden hier nicht diskutiert, sie können einer Studie entnommen werden [13].

3.3 Refabrikation

Die veränderte Zusammensetzung der MEU-Brennelements wirkt sich auf die Refabrikation noch stärker aus als auf die Wiederaufarbeitung. Die gängigen Verfahren zur (Th,U)O₂-Partikelherstellung (Sol-Gel-Verfahren, KFA-Fällungsverfahren) sind nur bis zu einem Mischungsverhältnis von Th : U = 3 : 1

möglich. Muß auf eine Restspaltstoffanreicherung verzichtet werden, wird die Refabrikation durch die Veränderung der Brennelementzusammensetzung bei wachsender Reaktorzyklenzahl noch erschwert.

Die Herstellung von ThO_2 - und UO_2 -Partikeln in Anlehnung an das Feed-Breed-Konzept (separate Brenn- und Brutstoffpartikel in einem Brennelement) ist denkbar, Pu kann, wie Vorversuche ergaben [2], ohne Verfahrensänderung zusammen mit Th refabriziert werden. Eine getrennte Wiederaufarbeitung von Brenn- und Brutstoff ist bei einer der Aufrechterhaltung der ausschließlichen Verwendung von 20 % U-235 im Brennstoffkreislauf nicht möglich. Aus dem gleichen Grund verbietet sich das Seed-Breed-Konzept (separate Brenn- und Brutstoffelemente).

3.4 Rekonversion und Anreicherung des Restspaltstoffs

Die Umwandlung von $\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2$ in flüchtiges UF_6 und die anschließende Anreicherung sind bekannte Verfahren. Sie sind allerdings noch nicht unter den Bedingungen einer Heißzellentechnologie erprobt worden. Diese Technologie ist für die Rekonversion und Anreicherung von Restspaltstoff aus Th-Konvertern wegen des raschen Aufbaus der Zerfallsprodukte von ^{232}U mit harter γ -Strahlung und hoher spezifischer Aktivität unbedingt erforderlich. Maßnahmen zur Senkung der ^{232}U -Produktion, wie sie in Kapitel 2.5 diskutiert worden sind, erleichtern eine Anpassung der Verfahren an heiße Zellen, z. B. ermöglichen sie Froschmanneinsätze bei größeren Störfällen, machen eine Heißzellentechnologie aber keinesfalls überflüssig. Der Umfang der notwendigen Änderungen einzelner Verfahrensschritte läßt sich zur Zeit noch nicht abschätzen.

4. ZUSAMMENFASSUNG

Das MEU-HTR-Brennelement wird vorgeschlagen, um bei Verwendung niedriger angereichertem Kernbrennstoff das Potential des HTR als Konverter und Lieferant für Prozeßwärme zu erhalten. Zur Entsorgung eines mit diesen Brennelementen beladenen Reaktors muß, falls die Endlagerung von Kernbrennstoffen in der Bundesrepublik Deutschland nicht genehmigt wird, ein kompletter Kernbrennstoffkreislauf zur Verfügung stehen.

Hierzu wurde in dieser Studie die Zusammensetzung verbrauchter oxidischer MEU-HTR-Brennelemente unter Berücksichtigung verschiedener Rezyklierungsstrategien berechnet. Folgende Schlußfolgerungen lassen sich aus den vorliegenden Daten ziehen:

- Die Brutrate an spaltbarem Pu ist so groß, daß Pu in die Rezyklierung mit einbezogen werden sollte.
- Durch die Frischzufuhr an Kernbrennstoff unter ausschließlicher Verwendung von 20 % U-235 wächst der ^{238}U -Anteil in rezyklierten Brennelementen bei gleichzeitiger Verringerung des prozentualen Kernbrennstoffanteils stark an. Das MEU-Brennelement nähert sich dem für HTR's ungünstigen LEU-Konzept, sofern der Restspaltstoff nicht zusätzlich angereichert wird.
- Die Rezyklierung von Th bei gleichzeitiger Herabsetzung der ^{230}Th -Konzentration in natürlichem Th verringert die ^{232}U -Produktion und erleichtert die technische Durchführung einiger Prozesse der Brennstoffkreislaufschließung.
- Neue Prozesse müssen für die Wiederaufarbeitung und Refabrikation von MEU-Brennelementen entwickelt werden; es wird vorgeschlagen, Th und Pu gemeinsam zu rezyklieren.
- Für die Anreicherung des Restspaltstoffs steht noch keine Technologie bereit.

Es bedarf noch erheblicher Entwicklungsarbeit, um den Kreislauf des MEU-HTR-Brennelements zu schließen.

5. LITERATURVERZEICHNIS

- [1] TEUCHERT, E.
Jül-1470 (1977)

- [2] WENZEL, U.
Das Aktinidenproblem im Th-U-Brennstoffkreislauf
Jül-Report, z. Z. in Vorbereitung

- [3] SCHULTEN, R.
Jül-1243 (1975)

- [4] HERZ, D., KANKURA, R., WENZEL, U.
Jül-1212 (1975)

- [5] HERZ, D., KANKURA, R., WENZEL, U.
DT/PS 23 65 114 (1973)

- [6]
Nachr. Chem. Techn. 23 (1975) 151

- [7] BARNERT, H.
KFA-IRE-IB-23175 (1975) Interner KFA-Bericht

- [8] MÜLLER, F. J.
Beitrag zur Theorie der Mehrkomponenten-Isotopentechnik und deren Anwendung insbesondere auf die Untersuchung des U-236 Aufbaus im Brennstoffkreislauf
Dissertation RWTH Aachen (1975)

- [9] BARBER, D. I., KINSEY, R.
Neutron Cross Sections, Vol. II (1976)

- [10] CALAMAND, A.
Handbook on Nuclear Activation Cross Sections
Techn. Rep. Ser. 156 (1974) 273; IAEA, Wien
- [11] GRAHMANN, U., TILLESSEN, U., ZIMMER, E.
Reaktortagung 387 (1974)
- [12] WAGEMANN, R.
Privatmitteilung (1978)
- [13] AUMÜLLER, L., HERRMANN, J.
Abfall, Verwendung, Lagerung und Endbeseitigung
von abgereichertem Uran
NUKEM-292, ATT 2255 (1977)

Verzeichnis der Symbole

Symbol	Dimension	Bedeutung
N		Teilchenanzahl
σ	10^{-24} cm^2	Wirkungsquerschnitt
σ_a	10^{-24} cm^2	Einfangsquerschnitt
ϕ	$\text{cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$	Neutronenfluß
$[^X\text{Me}]$	g/Brennelement	Nuklidkonzentration im Brennelement
n		Zyklenanzahl