

KERNFORSCHUNGSZENTRUM

KARLSRUHE

November 1975

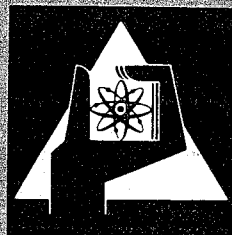
KFK 2022

Institut für Heiße Chemie

Projekt Wiederaufarbeitung und Abfallbehandlung

**Anfall, Beseitigung und relative Toxizität langlebiger
Spaltprodukte und Actiniden in den radioaktiven
Abfällen der Kernbrennstoffzyklen**

H.O. Haug



**GESELLSCHAFT
FÜR
KERNFORSCHUNG M.B.H.**

KARLSRUHE

Als Manuskript vervielfältigt

Für diesen Bericht behalten wir uns alle Rechte vor

GESELLSCHAFT FÜR KERNFORSCHUNG M. B. H.
KARLSRUHE

KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE

INSTITUT FÜR HEISSE CHEMIE

KFK-2022

PWA-Nr. 25/75

Anfall, Beseitigung und relative Toxizität langlebiger
Spaltprodukte und Actiniden in den radioaktiven Abfällen
der Kernbrennstoffzyklen

H.O. HAUG

Gesellschaft für Kernforschung mbH, Karlsruhe

Zusammenfassung

Es wird ein Überblick über die Größe der langfristigen Probleme radioaktiver Abfälle aus der industriellen Kernenergiegewinnung der BRD (und Westeuropa) gegeben. Für mehrere Brennstoffvarianten des Uran-Plutonium- und Thorium-Uran-Brennstoffzyklus wurden in Verbindung mit einer Prognose der Entwicklung und des Anteils der Leichtwasser-, Schnellbrüter- und Hochtemperaturreaktoren der Anfall langlebiger Spaltprodukte und Actiniden berechnet. Menge und Konzentration der Actiniden, die Radioaktivität und der relative Toxizitätsindex für die Abfälle der Wiederaufarbeitung (und Brennstoffrefabrikation) und ihre zeitliche Veränderung durch radioaktiven Zerfall wurden dargestellt. Die Radiotoxizität des Nuklidinventars von verfestigten hochaktiven Abfällen wurde mit natürlichen radioaktiven Uranerzen verglichen. Über das gesamte Feld des Endlagers in tiefen geologischen Schichten gesehen erfolgt langfristig ($>10^3$ Jahre) keine wesentliche Erhöhung des Radiotoxizitätsniveaus über Uranerzlager mit geringem Urangehalt hinaus. Zum Vergleich wird auch die chemische Abtrennung der Actiniden aus den hochaktiven Abfällen und die Rezyklierung in Kernreaktoren diskutiert.

Abstract

Amount, disposal and relative toxicity of long-lived fission products and actinides in the radioactive wastes of the nuclear fuel cycles

A review is presented on the magnitude of the long-term problems of radioactive wastes from the nuclear power industry of the FRG (and Western Europe). The production of long-lived fission products and actinides has been calculated for several fuel types of the uranium-plutonium and thorium-uranium fuel cycles and related to a prediction of the development and share of LWR, FBR and HTGR. The quantities and concentrations of actinides, the radioactivity and relative toxicity index of the wastes of reprocessing (and fuel refabrication) and their changes by radioactive decay are presented. The radiotoxicity of the nuclide inventory of the solidified high-level wastes have been compared with naturally occurring uranium ores. On the long term ($>10^3$ years) the radiotoxicity level of the total area of the final repository in deep geological formation does not result in a significantly higher radiotoxicity level than an uranium ore deposit of low uranium content. Also discussed have been the chemical separation of the actinides from high-level wastes and recycling in fission reactors.

Danksagung

Der Dank des Autors gilt Herrn Prof.Dr.F. BAUMGÄRTNER und Dr.G. HÖHLEIN für die Anregung dieser Arbeit, die im Projekt PACT begann, Herrn Dr. G. KOCH für viele wertvolle Hinweise bei der Durchsicht des Manuskripts, sowie den Herren Prof.Dr.E. MERZ, KFA Jülich, Dr. W. SCHÜLLER und Dr.W. HEINZ, GWK, Dr. R. KROEBEL, R. KRAEMER, Dr. H. KRAUSE und Dr. K. SCHEFFLER für ihre kritischen Anmerkungen bei der Durchsicht des Entwurfs. Besonderer Dank gilt Herrn Dr. P. McGRATH und Herrn W. SCHIKORR für gemeinsame Abbrand- und reaktorphysikalische Rechnungen sowie Herrn Dr.P.J. JANSEN und Frau U. SEELE für Berechnungen zur Reaktorstrategie. Nicht zuletzt sei Frau M. STARCH für die Beschaffung wenig verbreiteter Literatur, Herrn M. LINKE für die Anfertigung der Diagramme, Frau W. HÖHN und Frl. I. NAGEL für die Reinschrift des Manuskripts gedankt.

zum Druck eingereicht: 26.9.75

Inhaltsübersicht

Zusammenfassung

1. Einleitung

2. Voraussichtliche Entwicklung der Kernenergiegewinnung in der BRD und in Westeuropa

2.1 Anteil der Kernkraftwerke an der Erzeugung elektrischer Energie

2.2 Anteil verschiedener Reaktortypen

2.3 Benötigte Brennelementfabrikations- und Wiederaufarbeitungskapazitäten

3. Brennstoffzyklusvarianten und Anfall von Spaltprodukten und Actiniden im radioaktiven Abfall aufgearbeiteter Brennstoffe

3.1 Berechnungsmethode

3.2 Uran-Plutonium-Zyklus

3.2.1 LWR mit U-235/U-238

3.2.2 LWR mit Plutoniumrückführung

3.2.3 SBR mit Plutonium/U-238 (Oxid)

3.3 Thorium-Uran-Zyklus

3.3.1 HTR mit U-235/Th-232

3.3.2 HTR mit U-233 Rückführung (U-233, U-235/Th)

3.3.3 HTR mit LWR-Plutonium

3.3.4 SBR mit Thorium-Brutmantel

3.4 Gesamtmengen von Spaltprodukten und Actiniden im hochradioaktiven Abfall in der BRD und Westeuropa

- 3.5 Mittelaktive und α -aktive Abfälle der Brennstoffzyklen
 - 3.5.1 Klassifizierung der radioaktiven Abfälle
 - 3.5.2 Abfälle der Brennelementfertigung
 - 3.5.3 Abfälle der Reaktoren
 - 3.5.4 Abfälle der Wiederaufarbeitung
 - 3.5.5 Zusammenfassung
- 4. Langlebige Spaltprodukte und Actiniden in den Abfallströmen der Wiederaufarbeitung von Kernbrennstoffen
 - 4.1 Wiederaufarbeitung für LWR-Brennstoff
 - 4.1.1 Brennelementempfang
 - 4.1.2 Chop-leach-headend
 - 4.1.3 Extraktionsprozeß und Tail-end
 - 4.1.3.1 Hochaktive flüssige Abfälle
 - 4.1.3.2 Mittelaktive flüssige Abfälle
 - 4.1.3.3 Mittelaktive feste Abfälle
 - 4.2 Wiederaufarbeitung von Thorium-Uran-Brennelementen
- 5. Relativer Toxizitätsindex
 - 5.1 Risikoanalyse und hazard index
 - 5.2 Relativer Toxizitätsindex
 - 5.3 Berechnungsmethode
 - 5.4 Relativer Toxizitätsindex von hochaktivem Abfall verschiedener Brennstoffvarianten
- 6. Gegenwärtig bevorzugte Waste-Management Konzepte
 - 6.1 Verfestigung hochaktiver Abfälle
 - 6.2 Endlagerung in Formationen des tiefen Untergrundes
 - 6.3 Verfahren in der BRD zur Endlagerung radioaktiver Abfälle in Salzformationen
 - 6.4 Endlagerung von hochaktiven Abfällen durch alternative Konzepte

7. Alternative Konzepte zur Beseitigung hochaktiver Abfälle

7.1 Chemische Abtrennung der Actiniden aus den hochaktiven Abfällen

7.1.1 Ermittlung des Grads der Actinidenabtrennung

7.1.2 Chemische Probleme der Actinidenabtrennung

7.1.3 Abtrennung von Neptunium

7.1.4 Abtrennung von Americium/Curium

7.2 Beseitigung langlebiger Radionuklide durch Kernumwandlung

7.2.1 Rezyklisierung von Transuranen in LWR-Brennstoff

7.2.2 Weiterbestrahlung von Transuranen in separaten Bestrahlungseinsätzen und eigener Aufarbeitung

7.3 Der Schuß in den Weltraum

8. Literaturverzeichnis

Anhang 1 Eine Prognose der Entwicklung der Kernkraftwerke in der BRD und in Westeuropa

A.1 Prognosezeitraum

A.2 Wachstum des Primärenergieverbrauchs

A.3 Wachstum des Verbrauchs elektrischer Energie

A.4 Installierte elektrische Leistung

A.5 Installierte Kernkraftwerksleistung

A.6 Anteil verschiedener Reaktortypen

Anhang 2 Aufbau der Transurane im Uran-Plutonium-Brennstoffzyklus

Anhang 3 Notizen zum Thorium-Uran-Brennstoffzyklus mit coated-particle-Brennstoff

Abkürzungen

LWR	- Leichtwasser moderierter Reaktor
DWR	- Druckwasserreaktor
SWR	- Siedewasserreaktor
SBR	- Schneller Brutreaktor (hier Natrium-gekühlter Schneller Brüter)
HTR	- Hochtemperaturreaktor
FP	- Spaltprodukte
ACT	- Actinidenelemente
TU	- Transuranelemente
Pu_{fiss}	- Mischung der im thermischen Neutronenfluß spaltbaren Isotope Pu-239 und Pu-241
SM	- Schwermetall
HAW	- hochaktiver Abfall, Raffinat des 1. Extraktionszyklus
HAWC	- hochaktives Abfallkonzentrat
HLW	- verfestigter hochaktiver Abfall
MAW	- mittelaktiver Abfall
MW_e	- Megawatt elektrisch = 10^6 Watt
GW_e	- Gigawatt elektrisch = 10^9 Watt
$TW_e \cdot h$	- Terawattstunden elektrisch = 10^{12} Wattstunden
t	- (metrische) Tonne
s	- Sekunde
m	- Minute
h	- Stunde
a	- Jahr
α	- Alphazerfall
β	- Betazerfall
γ	- Emission von Gammaquanten
f	- durch thermische Neutronen induzierte Kernspaltung
σ_c	- Wirkungsquerschnitt für Neutroneneinfang
σ_f	- Wirkungsquerschnitt für Kernspaltung

Zusammenfassung

In dieser Arbeit wird ein Überblick über die Größe der langfristigen Probleme radioaktiver Abfälle für die BRD (und Westeuropa) gegeben. Zur Abschätzung der Art und Menge der radioaktiven Abfälle aus der industriellen Kernenergiegewinnung wurde eine Prognose des zukünftigen Verbrauchs elektrischer Energie und der installierten Kernkraftwerksleistung erstellt. Nach Strategiebetrachtungen wurde der nukleare Anteil auf die Reaktortypen LWR, SBR und HTR aufgeteilt und gleichzeitig die jährliche Brennelementfabrikation und notwendige Wiederaufarbeitungskapazität getrennt für den Uran-Plutonium- und den Thorium-Uran-Brennstoffzyklus berechnet (Kapitel 2).

Zur Berechnung des Anfalls von Spaltprodukten und Actiniden wurden in den beiden Brennstoffzyklen jeweils mehrere Brennstoffvarianten (Spaltstoff-Brutstoff Kombinationen) für 1000 MW_e LWR-, SBR- und HTR-Referenzreaktoren ausgewählt (Kapitel 3). Berechnet wurden jeweils die Nuklid- und Elementkonzentrationen, die Radioaktivität (Abschnitt 3.2 und 3.3) und der relative Toxizitätsindex (Abschnitt 5.4) pro Tonne Brennstoff als Funktion der Zeit nach der Reaktorentladung bzw. der Wiederaufarbeitung und zwar für das Brennelementhüll- und -strukturmaterial, den Brennstoff und die radioaktiven Abfälle nach der Wiederaufarbeitung. Die Ergebnisse wurden für einen Zeitraum bis 10⁶ Jahre in graphischer Form wiedergegeben. Dabei wurde angenommen, daß bei der Wiederaufarbeitung nur die Elemente Uran und Plutonium bzw. Thorium und Uran wiedergewonnen werden, die nicht gasförmigen Spaltprodukte, die Actiniden Protactinium, Neptunium, Americium und Curium und alle Zerfallsprodukte zusammen mit 0,5 bis 1 % Uran-, Plutonium- oder Thoriumverlusten in die hochaktiven Abfälle gehen. Im Falle

von HTR-Brennstoff (feed-breed-Konzept) wurde angenommen, daß auch das Plutonium quantitativ in den hochaktiven Abfall geht.

Für den Prognosezeitraum 1970 bis 2010 wurde der jährliche (und integrale) Anfall der Spaltprodukte, von Pa, Np, Pu, Am und Cm im hochaktiven Abfall ermittelt (Abschnitt 3.4). Hier zeigt ein Vergleich der beiden Brennstoffzyklen, daß durch den HTR nur relativ kleine Plutoniummengen erzeugt werden, aber wenn diese quantitativ dem hochaktiven Abfall zugeschlagen werden, eine größere Plutoniummenge (mit einem Anteil von ca. 65 % Pu-238) in die hochaktiven Abfälle gelangt, als die Verluste bei der Wiederaufarbeitung von LWR-Brennstoff in die hochaktiven Abfälle ausmachen.

Am Beispiel einer großen Wiederaufarbeitungsanlage für LWR-Brennstoff wird auch die Entstehung mittel- und α -aktiver Abfälle diskutiert (Kapitel 4) und die gesamten Plutoniumverluste bei der Wiederaufarbeitung und der Brennstoffrefabrikation bis zum Jahre 2010 abgeschätzt (Abschnitt 3.5).

Die mittelaktiven Abfälle stellen wegen ihrer großen Menge und unterschiedlichen Eigenschaften einen beträchtlichen Teil des gesamten Abfallproblems dar. Ein Teil dieser Abfälle enthält langlebige α -strahlende Elemente, insbesondere Plutonium (sowie einen Teil des Neptuniums je nach Prozeßführung). Mit Ausnahme eines kleinen Teils spezieller Abfälle können die mittel- und schwachaktiven Abfallströme wegen ihres großen Volumens nicht wie die hochaktiven Abfälle über längeren Zeitraum zwischengelagert werden, sondern müssen unmittelbar nach ihrer Entstehung verfestigt und einer Endlagerung zugeführt werden. Daraus ergibt sich die Forderung, daß der Gehalt an

Plutonium in den mittelaktiven und α -Abfällen auf das nach dem jeweiligen Stand der Technik erreichbare Minimum reduziert werden muß. Dabei resultieren voraussichtlich etwas höhere Kosten, doch muß hier die langfristige Sicherheit den Vorrang haben.

Zum Vergleich der Toxizität der Radionuklide, der Zeitabhängigkeit, des positiven oder negativen Einflusses verschiedener Verfahren der Abfallbehandlung wurde der relative Toxizitätsindex für die hochaktiven Abfälle berechnet und für die langlebigen Spaltprodukte und Actiniden der ausgewählten Brennstoffvarianten in einer Reihe von Diagrammen dargestellt (Kapitel 5).

Der relative Toxizitätsindex der hochaktiven Abfälle fällt in den ersten 400 Jahren um mehrere Größenordnungen ab, danach erfolgt nur noch ein äußerst langsamer Abfall über Zeiträume von einigen Millionen Jahren. Bis 400 Jahre wird der relative Toxizitätsindex überwiegend von den Spaltprodukten wie Strontium-90, Cäsium-137 u.a. bestimmt, danach von den langlebigen Transuranen. Nach 600 bis 700 Jahren sind diese Spaltprodukte mit Halbwertszeiten von ca. 30 Jahren praktisch abgeklungen, während Jod-129 und die hochtoxischen, α -strahlenden Actiniden zum Teil Halbwertszeiten über 1000 Jahre besitzen. Beim Uran-Plutonium-Zyklus wird der relative Toxizitätsindex nach mehr als 1000 Jahren durch Americium und Curium und deren Folgeprodukte bestimmt, sehr langfristig gewinnt Neptunium an Bedeutung. Dabei zeigt sich, daß Plutoniumverluste kleiner 1 % nur unbedeutend zu einer Reduktion des langfristigen Toxizitätsindex von hochaktivem Abfall beitragen. Beim Thorium-Uran-Zyklus wird langfristig der relative Toxizitätsindex durch Plutonium bestimmt. Für den Fall, daß neben Thorium und Uran

auch Plutonium wiedergewonnen werden sollte, würde der relative Toxizitätsindex zwischen etwa 1000 und 10.000 Jahren durch Protactinium und danach durch Uran- und Neptuniumfolgeprodukte bestimmt.

Bei einem Vergleich des relativen Toxizitätsindex der hochaktiven Abfälle von LWR, SBR und HTR zeigt sich, daß zwar im Thorium-Uran-Zyklus insgesamt deutlich weniger Transurane produziert werden, der langfristige Toxizitätsindex jedoch aufgrund des hohen Anteils der Uran-234 Zerfallsreihe, in der sich relativ hohe Konzentrationen von Radium-226 bilden, sehr hoch liegt.

Für die Endlagerung der hochaktiven Abfälle ist in der BRD die Verfestigung (wahrscheinlich Verglasung), eine Zwischenlagerung der verfestigten Abfälle und die Tieflagerung in Salzformationen vorgesehen. Die voraussichtlichen Mengen (nach mehrjähriger flüssiger Zwischenlagerung) verglaster hochaktiver Abfälle wurden ebenfalls berechnet (Kapitel 6).

Die Radiotoxizität der Actiniden, die in einer schwerlöslichen Matrix verfestigter radioaktiver Abfälle fixiert sind, lassen sich mit natürlichen radioaktiven Stoffen wie Uran- oder Thoriumerzen vergleichen, deren Radiotoxizität in der Hauptsache von dem im Gleichgewicht befindlichen Radium bestimmt wird (Kapitel 5).

Der Vergleich wurde auf das gesamte Feld eines Endlagers bei dem die verfestigten hochaktiven Abfälle in Form von Abfall-

zylindern in räumlich getrennten Bohrlöchern im Salzgestein stehen, d.h. in erster Näherung der Abfall in kleinen Einheiten über eine große Salzschrift verteilt ist, ausgedehnt (vgl. Kapitel 6). In diesem Falle erfolgt der Vergleich des Lagerfeldes - Abfallzylinder plus umgebendes Salz - mit einem gleichgroßen Uranerzlager von geringer Urankonzentration bzw. der Vergleich der Radiotoxizität des Actinideninventars im Waste (nach 10^3 Jahren) mit der Radiotoxizität des Nuklidinventars im Uranerz. Unter Einbeziehung des "verdünnenden" Salzes fallen die Toxizitätskurven für die hochaktiven Abfälle von LWR und HTR nach 1000 bis 2000 Jahren, LWR mit Pu-Rezyklierung nach ca. 20 000 Jahren und SBR nach ca. 5000 bis 10 000 Jahren unter die Radiotoxizität des natürlichen Uranerzes mit einer Urankonzentration von 0,2 w/o. (Beim HTR erfolgt nach >2000 Jahren wieder ein Anstieg aufgrund der relativ hohen Konzentration des Zerfallsprodukts Ra-226 in der Uran-234 Zerfallsreihe).

Über das Gesamtvolumen des Endlagers gesehen erfolgt langfristig (>1000 Jahre) also keine wesentliche Erhöhung des Radiotoxizitätsniveaus über das vergleichbarer geologischer Schichten hinaus, wie sie anderswo - auch an der Erdoberfläche - schon immer vorhanden waren.

Die langlebigen α -Strahler erfordern einen Ausschluß aus der Biosphäre über Zeiträume von Millionen Jahren. Da dies von keiner Endlagerphilosophie absolut garantiert werden kann, wird als Alternative eine Abtrennung der Actiniden und deren Beseitigung durch Kernumwandlung und Kernspaltung diskutiert. Dieses Konzept würde die theoretische Möglichkeit beinhalten, die langfristigen Probleme der Actiniden auf die mittelfristigen Probleme der Spaltprodukte zu reduzieren (Kapitel 7).

Die notwendigen Abtrennfaktoren für die Transurane aus den hochaktiven Abfallkonzentraten wurden auf der Basis der Chemie dieser Elemente und der gegenwärtigen Technologie der Brennstoffaufarbeitungsprozesse ermittelt. Um den relativen Toxizitätsindex des hochaktiven Rückstands nach 10^3 Jahren in den Bereich natürlich vorkommender radioaktiver Uranerze (5 % Pechblende) zu reduzieren, ergeben sich sehr hohe Abtrennfaktoren für ein integrales Wiederaufarbeitungs- und Actinidenabtrennsystem. Die hierfür erforderlichen Trennprozesse, insbesondere für die Abtrennung von Americium und Curium aus dem hochaktiven Abfall, müßten erst noch entwickelt und ihre technische Durchführbarkeit demonstriert werden.

Die bisher vorliegenden Rechnungen (für LWR) zeigen, daß die Eliminierung der abgetrennten Actiniden durch Kernumwandlung und -spaltung bei Rückführung in die Reaktoren möglich ist. Durch die Rezyklierung würde das Actinideninventar im hochaktiven Rückstand, der zur Endlagerung gelangt, deutlich reduziert werden. Eine geeignete Technologie für die Fabrikation der Bestrahlungseinsätze steht jedoch bisher nicht zur Verfügung.

Für eine Beurteilung der relativen Vorteile einer chemischen Abtrennung, Rezyklierung und Kernumwandlung der Actiniden reichen die bisherigen Rechnungen nicht aus. Hier ergibt sich die Notwendigkeit einerseits einer systemanalytischen Untersuchung des gesamten Systems der Bildung und Beseitigung der Actiniden, der hoch- und mittelaktiven Abfälle in einer entwickelten Kernenergiewirtschaft, andererseits einer Risikoanalyse des zusätzlichen Risikos während der Betriebsphase, einer Actinidenrezyklierung, sowie eines Risikovergleichs der gesamten Abfälle im Endlager nach 10^3 Jahren mit und ohne Actinidenabtrennung und -rezyklierung.

1. Einleitung

In den nächsten Jahrzehnten wird die Kernenergiegewinnung steil ansteigen und einen beträchtlichen Teil unserer gesamten Energieerzeugung übernehmen. Die radioaktiven Abfälle, die in jeder Stufe der Kernbrennstoffzyklen in vielfältiger chemischer Form und unterschiedlicher Konzentration anfallen, erfordern ein Waste-Management, das technisch, ökonomisch und politisch akzeptable Beseitigungsmethoden für diese Abfälle entwickelt. Wenn auch die genaue Prognose einer Kernenergiewirtschaft nicht möglich ist, so bleibt doch die Pflicht einer Abschätzung zukünftiger Entwicklungen nach den besten zur Verfügung stehenden Daten.

Die Hauptmenge der radioaktiven Abfälle umfaßt im wesentlichen zwei Kategorien /K3, B11/:

- Erstens die Gruppe der Spaltprodukte, deren Toxizität vor allem durch Isotope wie Strontium-90 und Cäsium-137 mit Halbwertszeiten von ca. 30 Jahren bestimmt wird. Nach etwa 700 Jahren sind diese Nuklide auf ein Zehnmillionstel, d.h. praktisch vollständig, zerfallen.

- Zweitens die Kategorie der langlebigen Nuklide wie Jod-129 und die Gruppe der Actiniden. Letztere sind überwiegend α -Strahler mit Halbwertszeiten größer 1000 Jahren und besitzen - bedingt durch die α -Aktivität - eine sehr hohe Toxizität.

Die Actiniden verursachen vor allem an zwei Stellen der Brennstoffkreisläufe Probleme für das Waste Management:

- vermischt mit den Spaltprodukten im hoch-aktiven Abfallstrom der Kernbrennstoffwiederaufarbeitung,
- in den mit Plutonium (und Neptunium) kontaminierten mittelaktiven Abfallströmen aus der Wiederaufarbeitung und
- in den α -Abfällen (die hauptsächlich Plutonium und Americium enthalten) der Brennstoffrefabrikation.

Bei den hochradioaktiven Abfällen wird die Toxizität mittelfristig durch die Spaltprodukte, langfristig durch die Actiniden bestimmt. Die Aktivität der Spaltprodukte fällt über einige hundert Jahre um mehrere Größenordnungen ab und nach ca. 4000 Jahren übersteigt die Toxizität der Actiniden diejenige der Spaltprodukte /K3/.

Bei den übrigen mittel- und schwachaktiven Abfällen stellen in der Regel nur die Abfälle mit Jod-129 und Nickel-59/63, sowie die mit Plutonium (und anderen Actiniden) kontaminierten Abfälle ein langfristiges Problem dar. Die Situation ist dadurch gekennzeichnet, daß die α -kontaminierten Abfälle in großen Mengen und einem Spektrum unterschiedlicher Eigenschaften und Actinidenkonzentrationen anfallen.

Jede Lösung des Wasteproblems hat sicherzustellen, daß alle denkbaren Wege einer Rückkehr der radioaktiven Isotope in den Biozyklus bis zu ihrem Zerfall ausgeschlossen bleiben. Für die Actiniden und ihre Folgeprodukte sind hierfür Zeiträume von Millionen Jahren erforderlich.

Eine derzeit verfolgte Strategie ist die in den hochaktiven Abfällen konzentrierten nicht gasförmigen Spaltprodukte und die Actiniden (Pa, U, Np, Pu, Am, Cm) in Glas oder keramische Massen

zu fixieren und in tiefe geologische Schichten, wie Steinsalzformationen, zur Endlagerung zu bringen. Krypton-85 könnte als Gas und Tritium als tritiiertes Wasser bis zum vollständigen Zerfall gelagert werden.

Eine Endlagerung in geeigneten tiefliegenden geologischen Formationen bietet über lange Zeitperioden eine hohe Sicherheit für die Beseitigung radioaktiver Abfälle. Nach unserem gegenwärtigen Stand der Technologie sollten für einen Zeitraum von 10^3 bis 10^4 Jahren in die Zukunft sicherheitsrelevante Aussagen, z.B. über die tektonische Stabilität oder die Isolation gegen zirkulierendes Grundwasser möglich sein, ebenso sollte es möglich sein, die Information über die Lagerstätten für die radioaktiven Rückstände über den gleichen Zeitraum weiterzugeben und zu erhalten.

Die Problematik der extrem langen Zeiträume bei radioaktiven Abfällen, die Transurane enthalten, führt in ein grundlegendes Dilemma, und es erscheint kaum akzeptabel über die kommenden 100 000 oder 500 000 Jahre oder noch längere Zeiten zu spekulieren /W7,H1/. Die Endlagerung müßte mit extrem hohen Garantien für ein mehrfaches Containment (Verfestigungsprodukt, Umhüllung und die Endlagerstätten selbst) erfolgen, da über geologische Zeiträume eine Rückholbarkeit des Waste nicht denkbar ist.

Das führt zu der Frage, ob die chemische Abtrennung der Actiniden ein "Millionen-Jahr-Problem" in ein "700-Jahr-Problem" reduziert? /K3/. A.F. Rupp sagte in einer Arbeit über Waste-Fraktionierung "Further, I should like to suggest that the spent-fuel-processing job isn't finished if only the fissionable materials are returned to the reactor" /R2/. Wenn die problematische Zeitperiode für die Endlagerung der Abfälle um wenigstens einen Faktor 1000 reduziert werden kann, dann stelle die Abtrennung und separate Beseitigung der Actiniden einen echten

Sicherheitsgewinn dar /K3/. Als Methode einer endgültigen Beseitigung der langlebigen Nuklide wird hierbei die Kernspaltung oder Kernumwandlung in stabile oder kurzlebige Nuklide durch Bestrahlung im Neutronenfluß diskutiert /K3, C1/. Die problematischen Isotope würden durch Rückführung in die Kernreaktoren durch eine Art Nebenreaktion wieder beseitigt /B11,H1/.

Der vorliegende Bericht will, ausgehend von einer Prognose der Kernenergiegewinnung, die Bildung der Actiniden und Spaltprodukte im Uran-Plutonium- und im Thorium-Uran-Brennstoffzyklus, ferner den Anfall, die Beseitigung und die langfristigen Probleme der radioaktiven Abfälle, die Actiniden enthalten, geben. Auf die möglichen Gefahren und Risiken der radioaktiven Abfälle während ihrer Entstehung, Zwischenlagerung und Behandlung, der Transporte und der Einlagerung in ein Endlager wird dabei nicht eingegangen.

Der vorliegende Bericht soll einige langfristige Probleme radioaktiver Abfälle aufzeigen und mit dazu beitragen, eine intensive Bearbeitung ungelöster Fragen und Details der Wastebeseitigung anzuregen. Die Verantwortung für Behandlung und sichere Beseitigung radioaktiver Abfälle erstreckt sich weit über den Zeitraum hinaus, in dem elektrische Energie durch Kernkraftwerke erzeugt wird.

2. Voraussichtliche Entwicklung der Kernenergiegewinnung

in der BRD und in Westeuropa

Zur Abschätzung der Größe und Bedeutung von Problemen der Beseitigung radioaktiver Abfälle aus der Kernenergiegewinnung ist eine möglichst fundierte Voraussage über den zukünftigen Energieverbrauch notwendig. In Zusammenarbeit mit dem Institut für Angewandte Systemtechnik und Reaktorphysik wurde eine eigene Prognose für diese Arbeit erstellt /M2/, wobei auf die Transparenz aller Einzelannahmen besonderer Wert gelegt wurde. Im Anhang 1 ist eine kurze Darstellung dieser Prognose gegeben.

2.1 Anteil der Kernkraftwerke an der Erzeugung elektrischer Energie

Zunächst wurden maximale und minimale Wachstumsraten für die Erzeugung elektrischer Energie abgeschätzt. Aus dem so gewonnenen Bereich für die jährliche Elektrizitätserzeugung (Fig. 2.1) wurden mit Hilfe ebenfalls geschätzter Lastfaktoren die voraussichtlich installierte Leistung für den betrachteten Zeitraum von 1970 bis 2010 ermittelt (Fig. 2.2). Hieran schloß sich eine Abschätzung des nuklearen Anteils an der Energieerzeugung (Fig. 2.2) an, der dann nach Strategiebetrachtungen auf verschiedene Reaktortypen aufgeteilt wurde.

Die in diese Kette von Abschätzungen eingehenden Annahmen werden jeweils im Anhang 1 kurz erläutert. Der Vorhersagezeitraum wurde bis zum Jahre 2010 ausgedehnt, da erst in

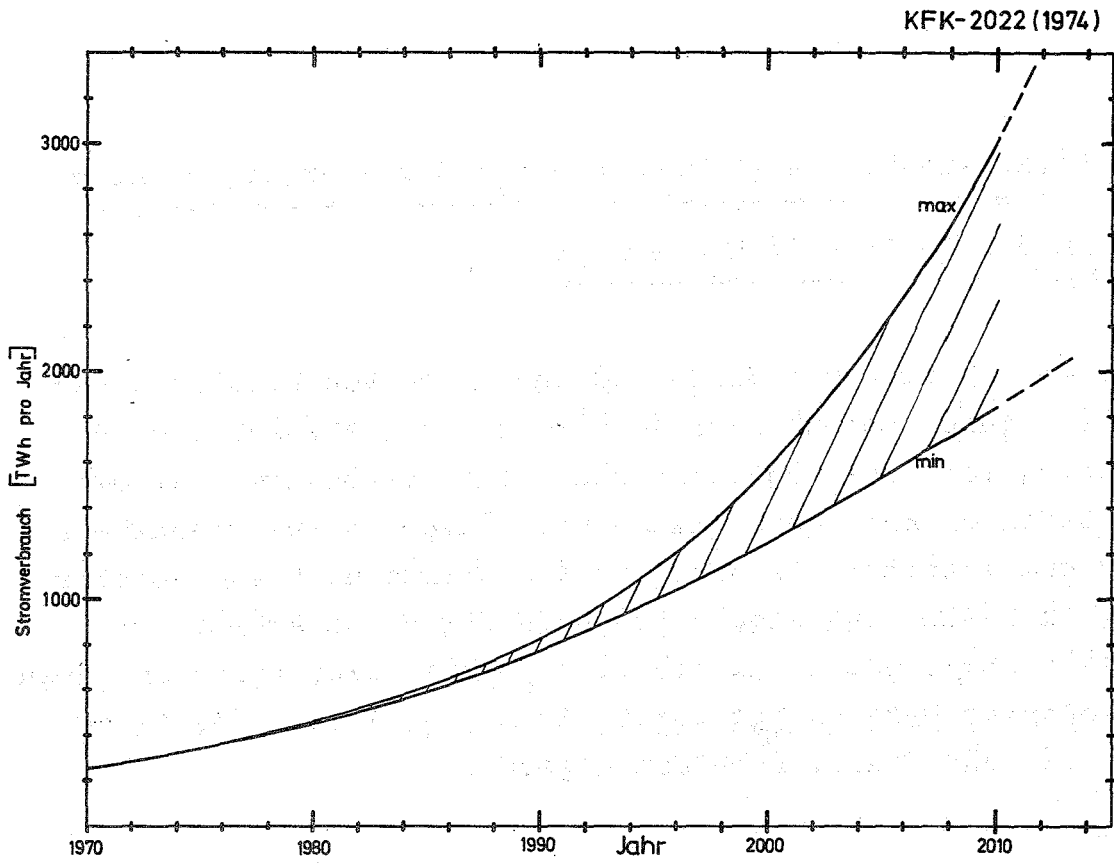


Fig. 2.1 Stromerzeugung in der BRD

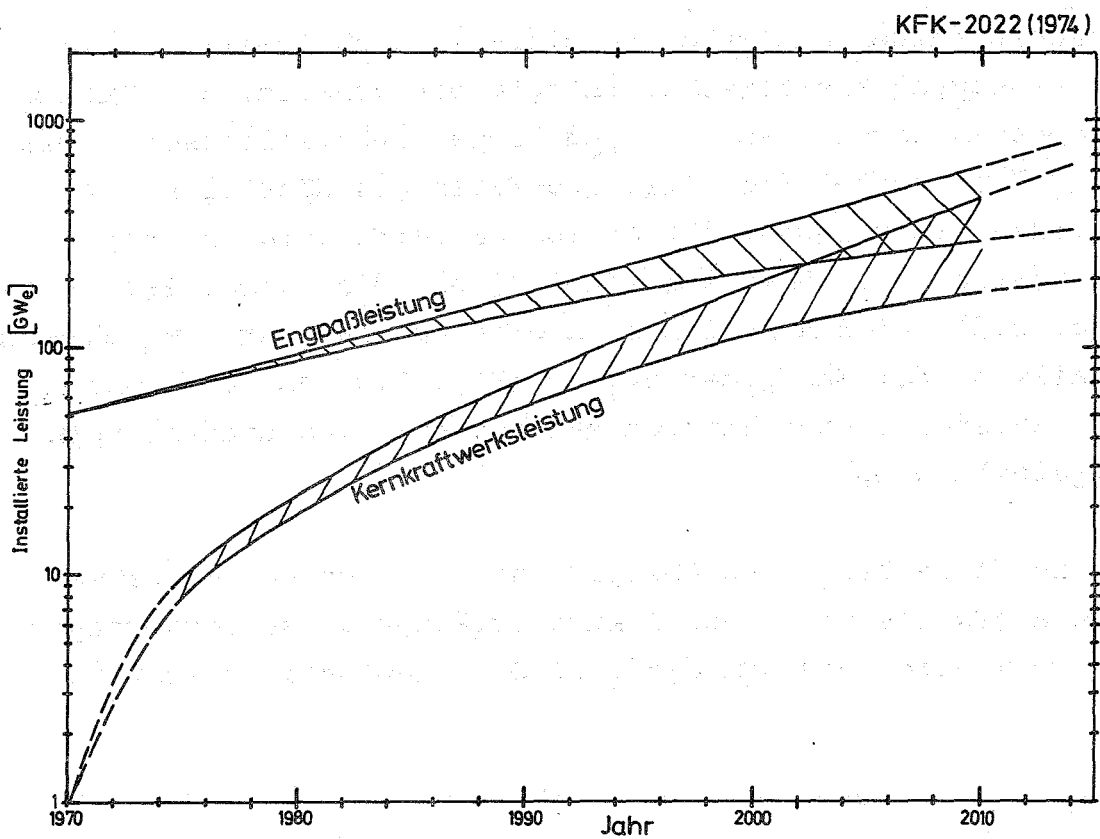


Fig. 2.2 Installierte Engpaßleistung und Kernkraftwerksleistung in der BRD

den 90er Jahren mit einem merklichen Anteil der Hochtemperaturreaktoren und Schnellen Brütern an der Kernenergieerzeugung zu rechnen ist.

In den 70er Jahren beginnt die Kernenergie einen rasch steigenden Anteil der Elektrizitätserzeugung in der BRD zu übernehmen. Bis zum Jahr 2000 könnte die Kernenergie 80 bis 85 % der Elektrizitätserzeugung, d.h. ca. 40 % der gesamten Energieerzeugung bestreiten. Darüberhinaus dürfte in den 90er Jahren die Nutzung der Kernenergie zur Prozeßwärmeerzeugung schnell an Bedeutung gewinnen /M1/. Es bestehen berechtigte Aussichten, daß gegen Ende des Jahrhunderts Hochtemperaturreaktoren (HTR) Prozeßwärme für die chemische Industrie, die Kohlevergasung und Metallurgie liefern werden /F2/. Im Jahr 2000 könnten ca. 3 % der Primärenergieerzeugung in Form von Prozeßwärme aus HTR stammen /M1/. Zur Vereinfachung wurden in der hier erstellten Prognose HTR nur für die Elektrizitätserzeugung berücksichtigt.

Die starke weltweite Expansion der Energieerzeugung dürfte in einigen Jahrzehnten an die Grenzen der Rohstoffversorgung und der ökologischen Belastbarkeit der Erde stoßen /M3/. Um die Jahrhundertwende ist mit einer Abflachung der Energieerzeugungskurven (S-Form) zu rechnen /W8/, wobei für die Erzeugung elektrischer Energie zu berücksichtigen ist, daß sie einen starken Substitutionseffekt durch ihre vielseitigen Einsatzmöglichkeiten gegenüber anderen Primärenergieträgern aufweist, der auch bei abflachender Kurve des gesamten Primärenergieverbrauches noch weiter anhalten dürfte. Zum gegenwärtigen Zeitpunkt ist jedoch über die ausschlaggebenden Faktoren, die zu einer S-förmigen Abflachung der Elektrizitätserzeugungskurve führen werden, noch zu wenig bekannt. Deshalb kann die Bandbreite der hier verwendeten Prognose auch nur den unteren Teil der S-förmigen Energiekurven erfassen.

Obwohl eine solche Prognose mit großen Unsicherheiten behaftet ist, wurde zum Vergleich der Ergebnisse mit anderen Voraussagen die relative Entwicklung in der BRD, in Westeuropa und den USA, die mit Hilfe von Skalenfaktoren (siehe Anhang 1, Abschnitt A.5) errechnet wurde, in Fig. 2.3 dargestellt und mit früher veröffentlichten Voraussagen /S4, U2, U3, A1/ verglichen. Während der Zusammenstellung der vorliegenden Arbeit wurde im Rahmen der Systemstudie "Radioaktive Abfälle in der BRD" eine ähnliche Prognose erstellt /B15/. Die optimistischen und pessimistischen Voraussagen der Kernkraftwerks-Entwicklung - ebenfalls in Fig. 2.3 eingetragen - wurde dabei bis 1985 unter Zugrundelegung der bereits installierten Kernkraftwerke und von Zubauprogrammen /B15/ ermittelt.

Durch Zubau und Inbetriebnahme großer Kernkraftwerksblöcke und durch Verschiebungen auf Grund von Genehmigungsverfahren und Baubeginnverzögerungen entsteht tatsächlich ein treppenförmiger Anstieg, der sich besonders deutlich während der Einführungsphase der Kernenergie in den 70er Jahren bemerkbar macht. Für die Abschätzung der anfallenden Menge radioaktiver Abfälle dürften die Abweichungen (hier in der Größe von ca. 2 Jahren) während der Anfangsphase nicht sehr ins Gewicht fallen.

2.2 Anteil verschiedener Reaktortypen

In Rechnungen zur Reaktorstrategie wurde versucht, den Marktanteil der Leichtwasserreaktoren, der Schnellen Brüter und Hochtemperaturreaktoren /U1/, sowie die Konsequenzen für die Fabrikations- und Wiederaufarbeitungskapazitäten abzuschätzen, um für einige einfache Fälle die Ausgangsdaten für den Anfall von Spaltprodukten und Transuran-

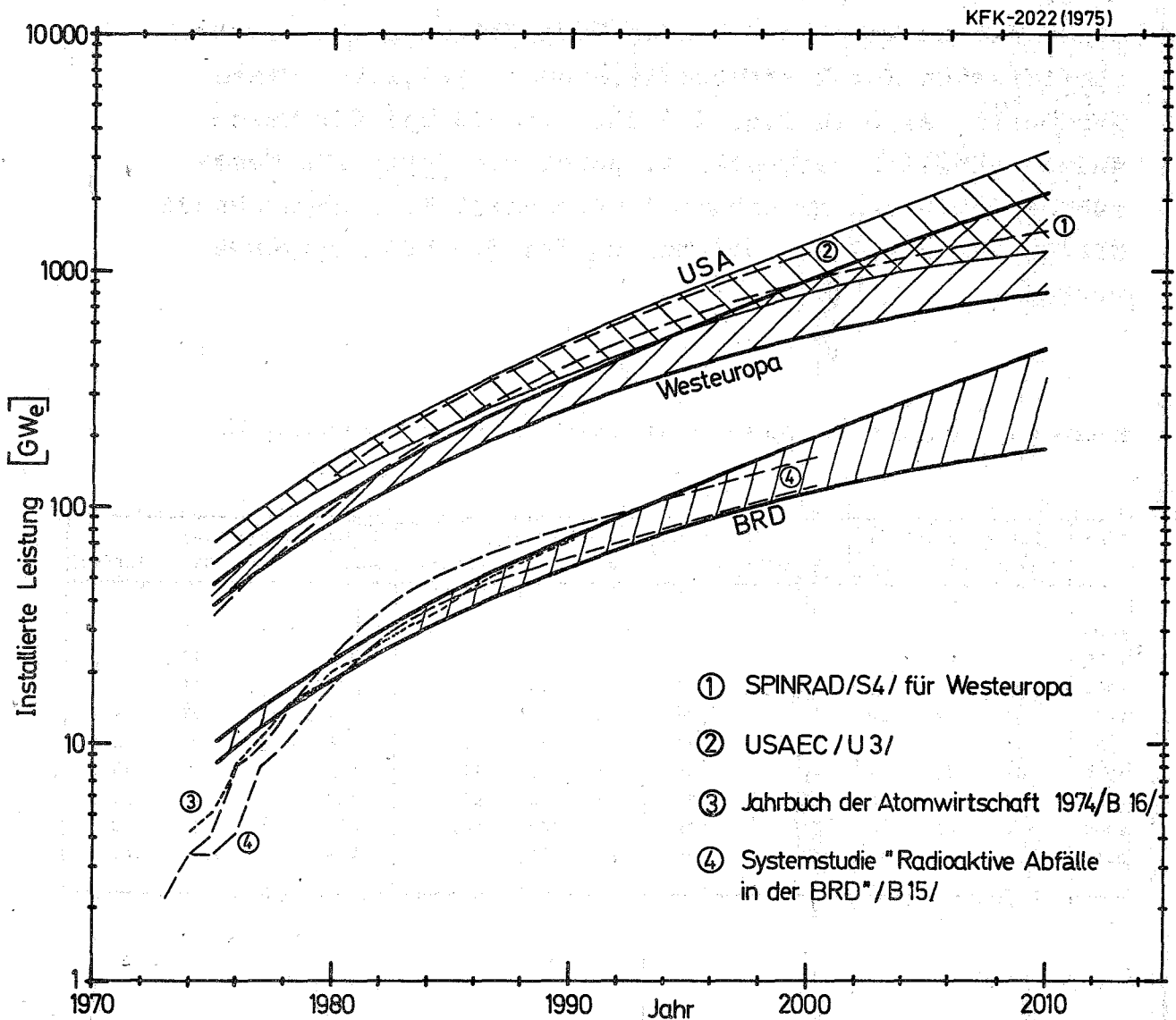


Fig. 2.3 Instalierter Kernkraftwerksleistung in der BRD, in WEST-EUROPA und in den USA

elementen zu bekommen. Für eine Strategie mit LWR, SBR (Oxid) und HTR wurden für eine minimale, mittlere und maximale Prognose unter Zugrundelegung von 1000 MW_e-Referenzreaktoren (deren Daten in Tab. 3.1 aufgeführt sind) die in Tabelle 2.1 zusammengefaßten installierten elektrischen Kernkraftwerksleistungen erhalten. Diese Ergebnisse sind in Fig. 2.4 für die BRD und für Westeuropa grafisch dargestellt, wobei die Werte für Westeuropa durch den im Anhang 1, Abschnitt A.5, angegebenen Skalenfaktor 4,7 aus den Werten für die BRD errechnet wurden.

Tabelle 2.1 Strategie mit LWR, HTR und SBR (Oxid). Installierte Leistung in GW_e.

Jahr	Minimale Schätzung				Mittlere Schätzung				Maximale Schätzung			
	Gesamt	HTR	LWR	SBR(Ox)	Gesamt	HTR	LWR	SBR(Ox)	Gesamt	HTR	LWR	SBR(Ox)
1970	1		1		1		1		1		1	
1975	8		8		9		9		10		10	
1980	18	1	17		20	1	19		22	1	21	
1985	32	2	30		36	3	33		40	3	37	
1990	55	7	46	2	63	8	52	3	72	9	60	3
1995	85	13	62	10	105	16	77	12	125	20	91	14
2000	116	19	74	23	155	26	102	27	193	34	127	32
2005	144	26	77	41	222	43	129	50	300	61	179	60
2010	172	33	76	63	316	66	167	83	460	101	257	102

2.3 Benötigte Brennelementfabrikations- und Wiederauf- arbeitungskapazitäten

Gleichzeitig mit der Reaktorstrategie wurde der jährliche Durchsatz für die Brennelementfabrikation sowie für die

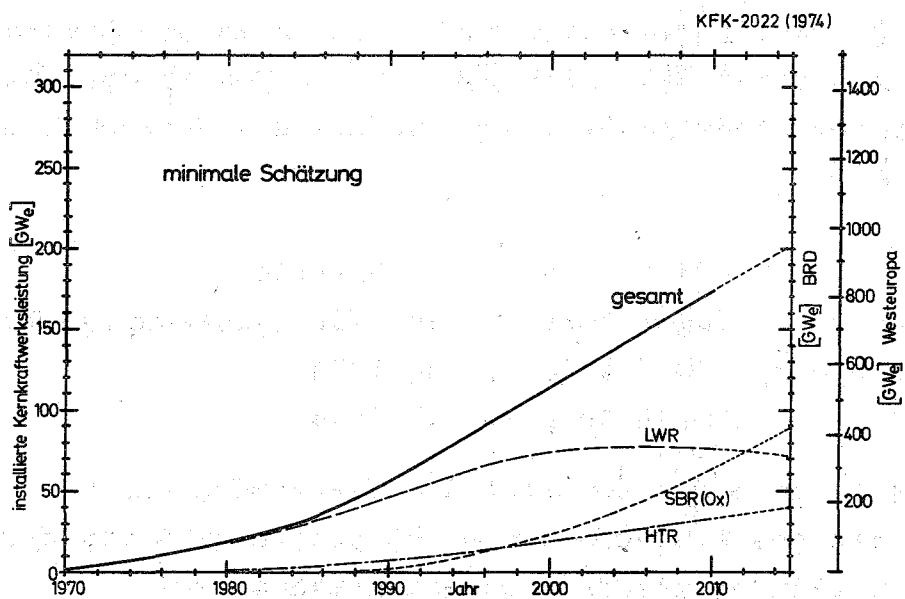
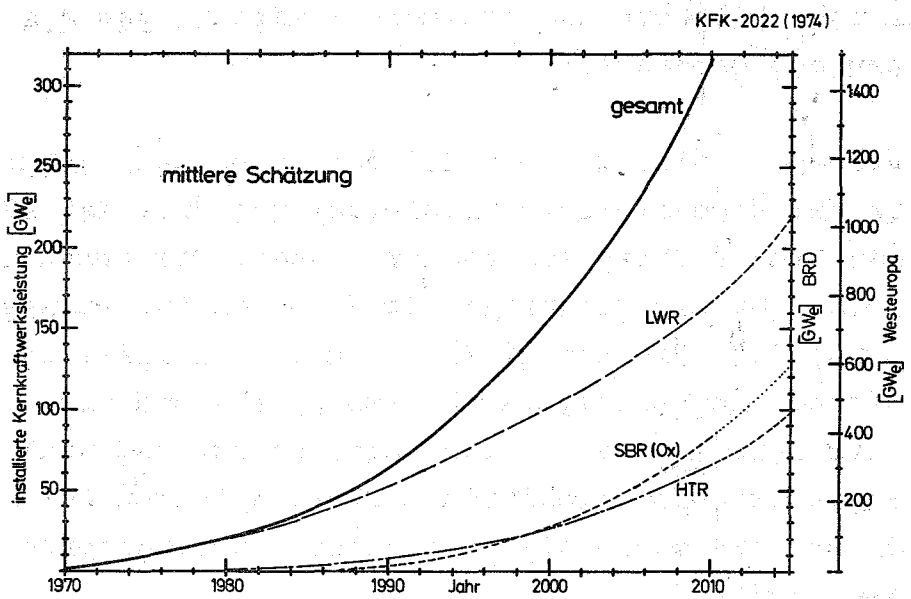
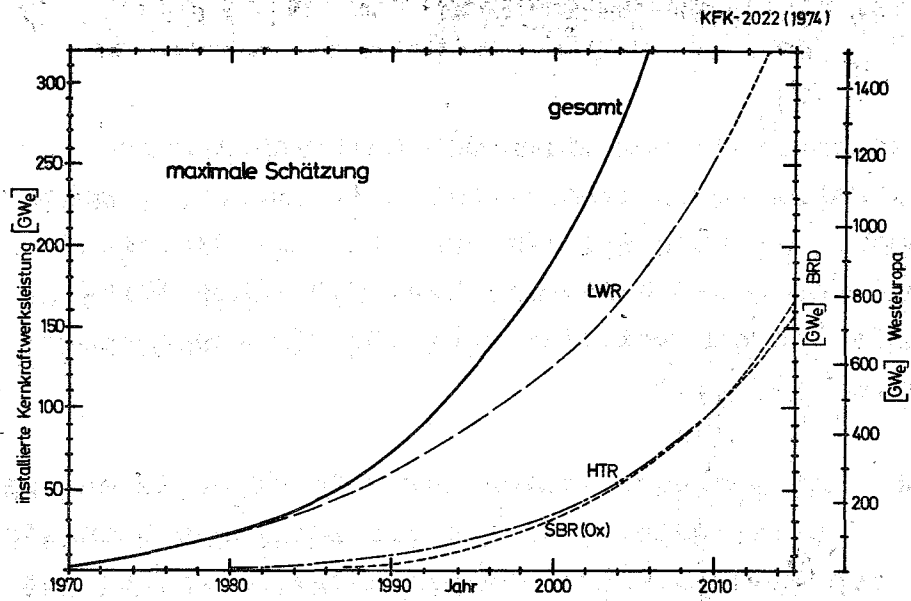


Fig. 24 Installierte elektrische Kernkraftwerksleistung und Anteil einzelner Reaktortypen

Wiederaufarbeitung der abgebrannten Brennelemente gerechnet. Dabei wurde eine Excore-Zeit von ca. 2 Jahren angenommen, die sich auf ein Jahr für die Wiederaufarbeitung von LWR-Brennstoff, bzw. 0,9 Jahre für SBR-Brennstoff und ein weiteres Jahr für die Brennelementfabrikation aufteilt.

Die gemäß den Auslegungsdaten für 1000 MW_e-Referenzreaktoren (Tab. 3.1) errechnete, jährlich erforderliche Brennstofffabrikation im Uran-Plutonium-Brennstoffkreislauf ist in Fig. 2.5, im Thorium-Uran-Zyklus in Fig. 2.6 jeweils für die minimale, mittlere und maximale Schätzung für die BRD und Westeuropa dargestellt.

Analog wurden in Fig. 2.7 und 2.8 der berechnete jährliche Durchsatz der Brennstoffwiederaufarbeitung getrennt für die beiden Brennstoffzyklen eingezeichnet. Die Prognose stimmt recht gut mit bisherigen Schätzungen für Westeuropa überein /M5, F4/. Die Abschätzungen der industriellen Wiederaufarbeitung erfolgten für Westeuropa und nicht nur für die Europäische Gemeinschaft, da auf dem nuklearen Sektor wegen Transportproblemen und Auslastungen der Anlagen weniger nationale als geografische Gesichtspunkte überwiegen dürften.

In Fig. 2.7 wurden folgende Ausbaustufen an Wiederaufarbeitungskapazität für LWR-Brennstoff in Westeuropa /Z1/ gemäß dem neuesten Stand /B19/ (nach Ausfall der Windscale I Anlage) eingetragen:

WAK	35 t SM/a	in Betrieb
La Hague	800 t SM/a	ab 1981 (stufenweise ab 1976)
Windscale II	800 t SM/a	ab 1983
KEWA	1500 t SM/a	ab 1985

Berücksichtigt man also nicht nur die Länder der EG sondern das gesamte Westeuropa, so ergibt sich ein deutliches Defizit an Wiederaufarbeitungskapazität.

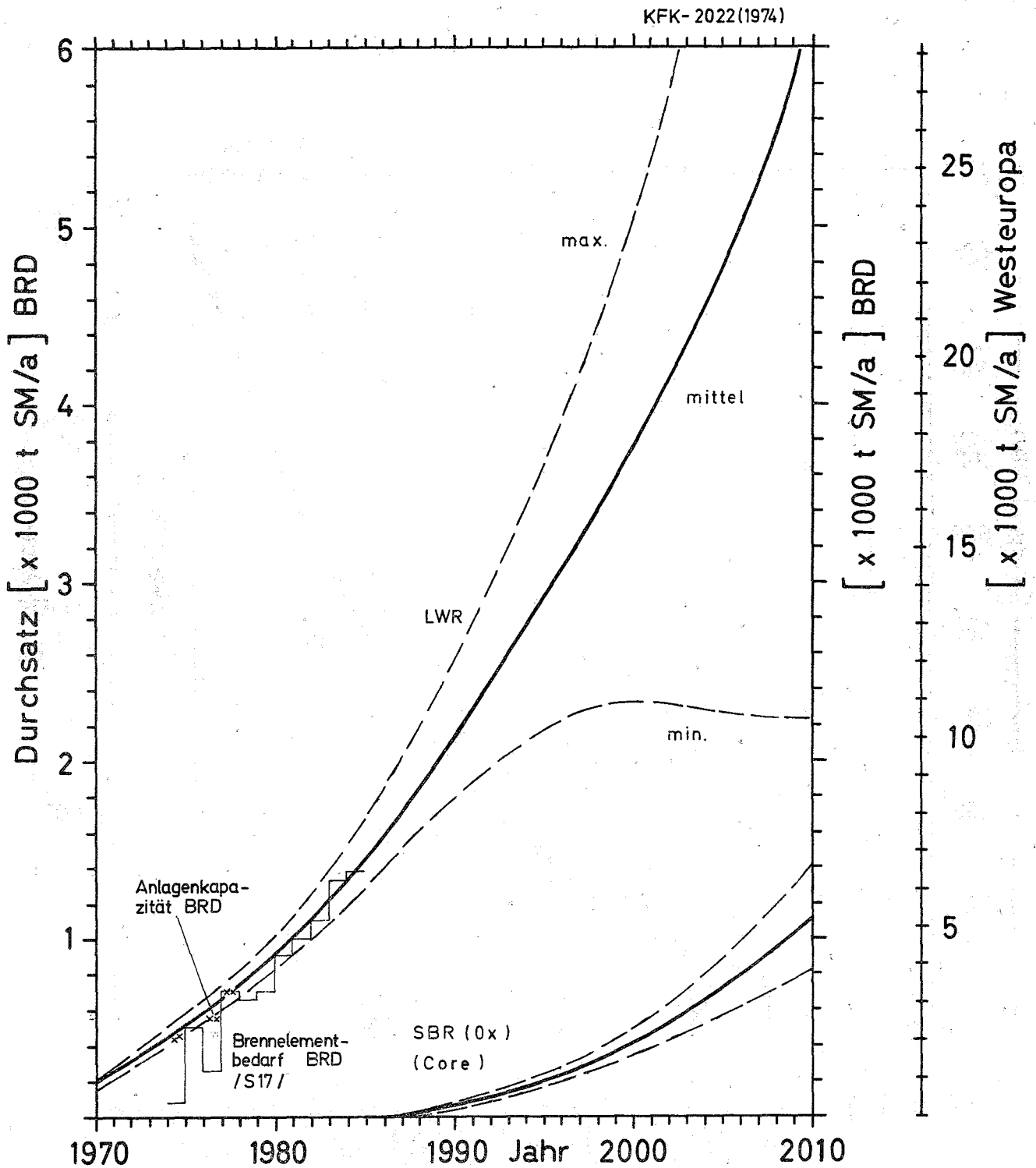


Fig. 2.5 Jährlich erforderliche Brennstofffabrikation im Uran-Plutonium-Zyklus für minimale, mittlere und maximale Schätzung für die BRD und Westeuropa

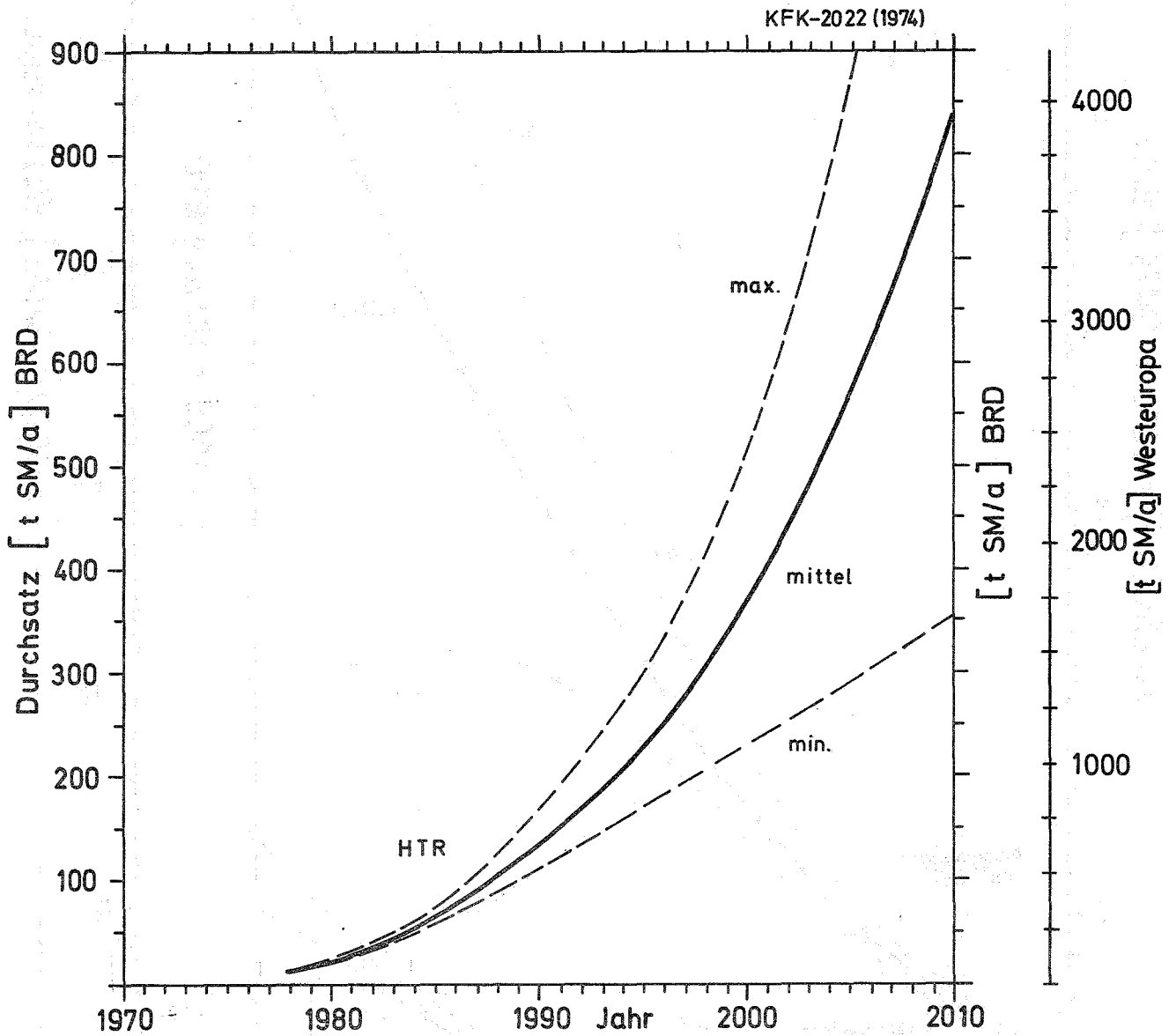


Fig. 2.6 Jährlich erforderliche Brennstofffabrikation im Thorium-Uran-Zyklus für minimale, mittlere und maximale Schätzung für die BRD und Westeuropa

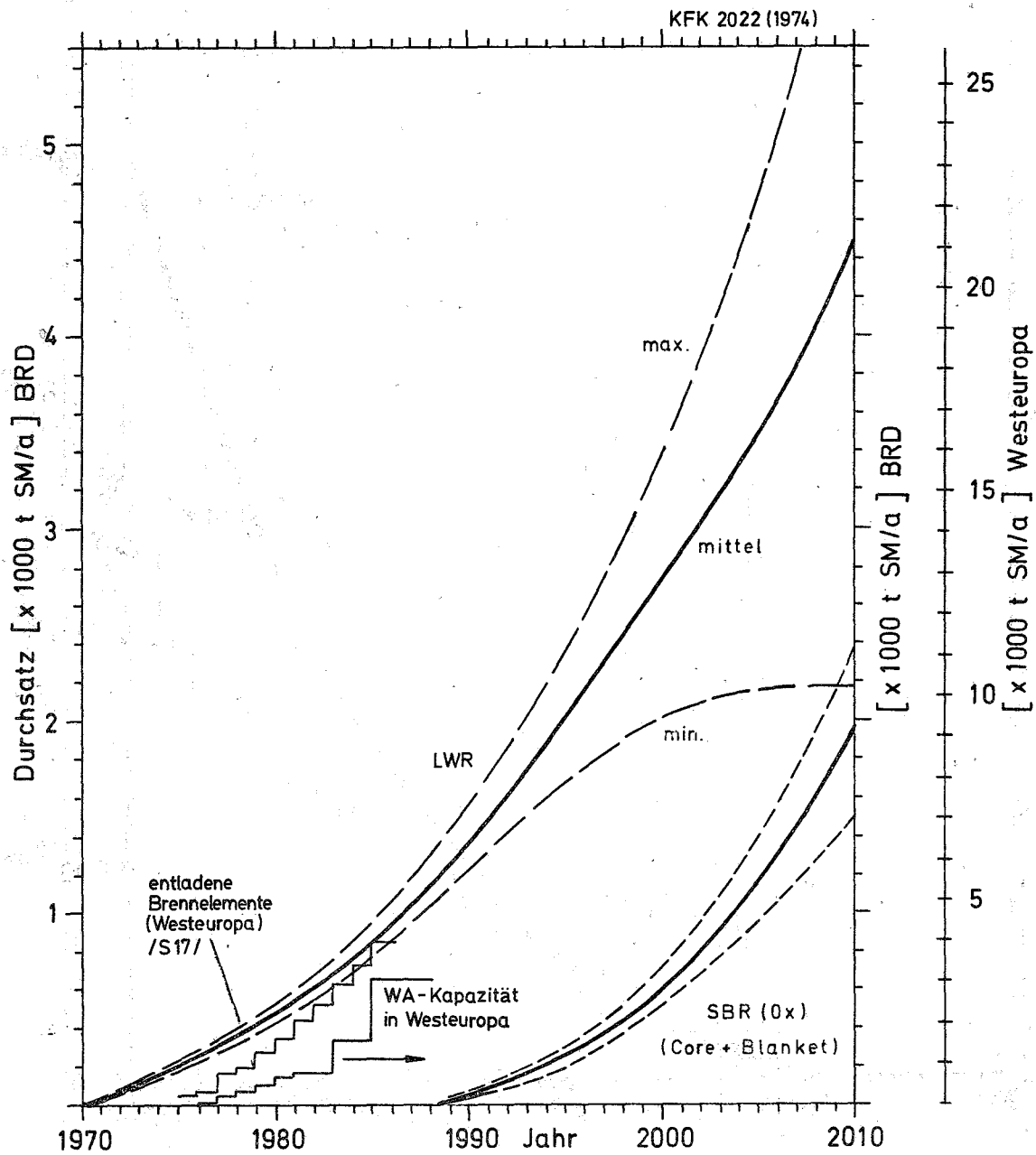


Fig. 2.7 Jährlicher Bedarf an Wiederaufarbeitungs-kapazität im Uran-Plutonium-Zyklus für minimale, mittlere und maximale Schätzung für die BRD und Westeuropa

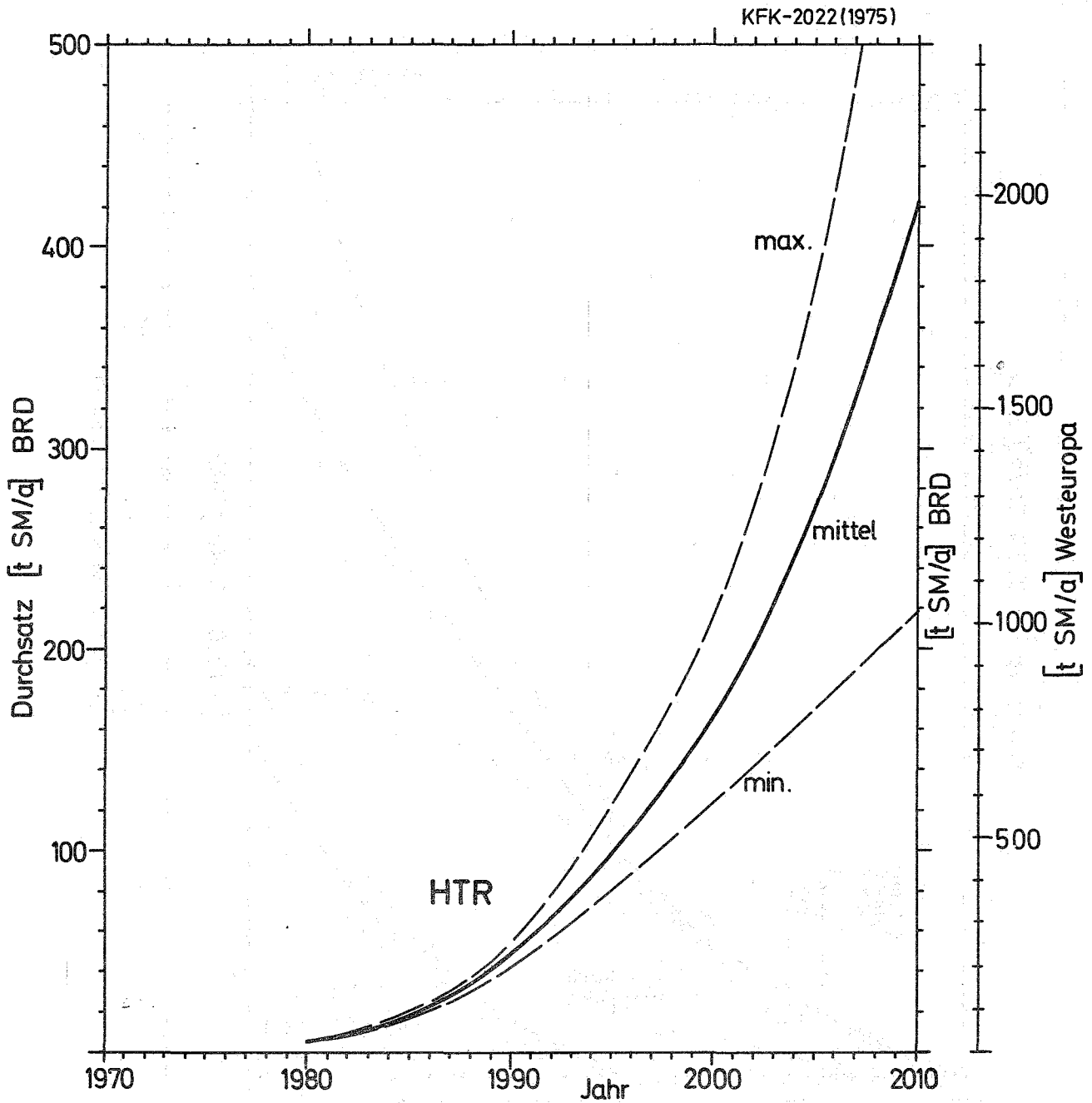


Fig. 2.8 Jährlicher Bedarf an Wiederaufarbeitungskapazität im Thorium-Uran-Zyklus bei minimaler, mittlerer und maximaler Schätzung für die BRD und Westeuropa

3. Brennstoffzyklusvarianten und Anfall von Spaltprodukten und Actiniden im radioaktiven Abfall aufgearbeiteter Brennstoffe

Verschiedene Brennstoffvarianten gegenwärtiger und zukünftiger Leistungsreaktoren werden in dieser Arbeit in zwei übergeordneten Brennstoffzyklen zusammengefaßt (Fig. 3.1), dem Uran-Plutonium-Zyklus /E1/ und dem Thorium-Uran-Zyklus. Hauptsächlicher Grund für diese Einteilung sind die unterschiedlichen Verfahren der Wiederaufarbeitung (im Uran-Plutonium-Zyklus durch den PUREX-Prozeß, im Thorium-Uran-Zyklus durch den THOREX-Prozeß) und der Refabrikation der gewonnenen Spaltstoffe.

Innerhalb eines Brennstoffzyklus sind jeweils mehrere Spaltstoff-Brutstoff-Kombinationen im Einsatz oder in der Entwicklung, von denen einige zur Berechnung des Anfalls an Spaltprodukten und Transuranen ausgewählt wurden.

Bei der Einteilung in zwei Brennstoffzyklen verbleibt das aus U-238 erzeugte spaltbare Plutonium innerhalb des Uran-Plutonium-Zyklus und das aus Th-232 erbrütete spaltbare Uran-233 innerhalb des Thorium-Uran-Zyklus. Der Spaltstoff U-235 ist zur Ingangsetzung beider Brennstoffzyklen notwendig und durchläuft somit beide Zyklen, und zwar im allgemeinen in wenig angereicherter Form (2-4 % Anreicherung) den Uran-Plutonium-Zyklus, in hochangereicherter Form (ca. 93 % Anreicherung) den Thorium-Uran-Zyklus.

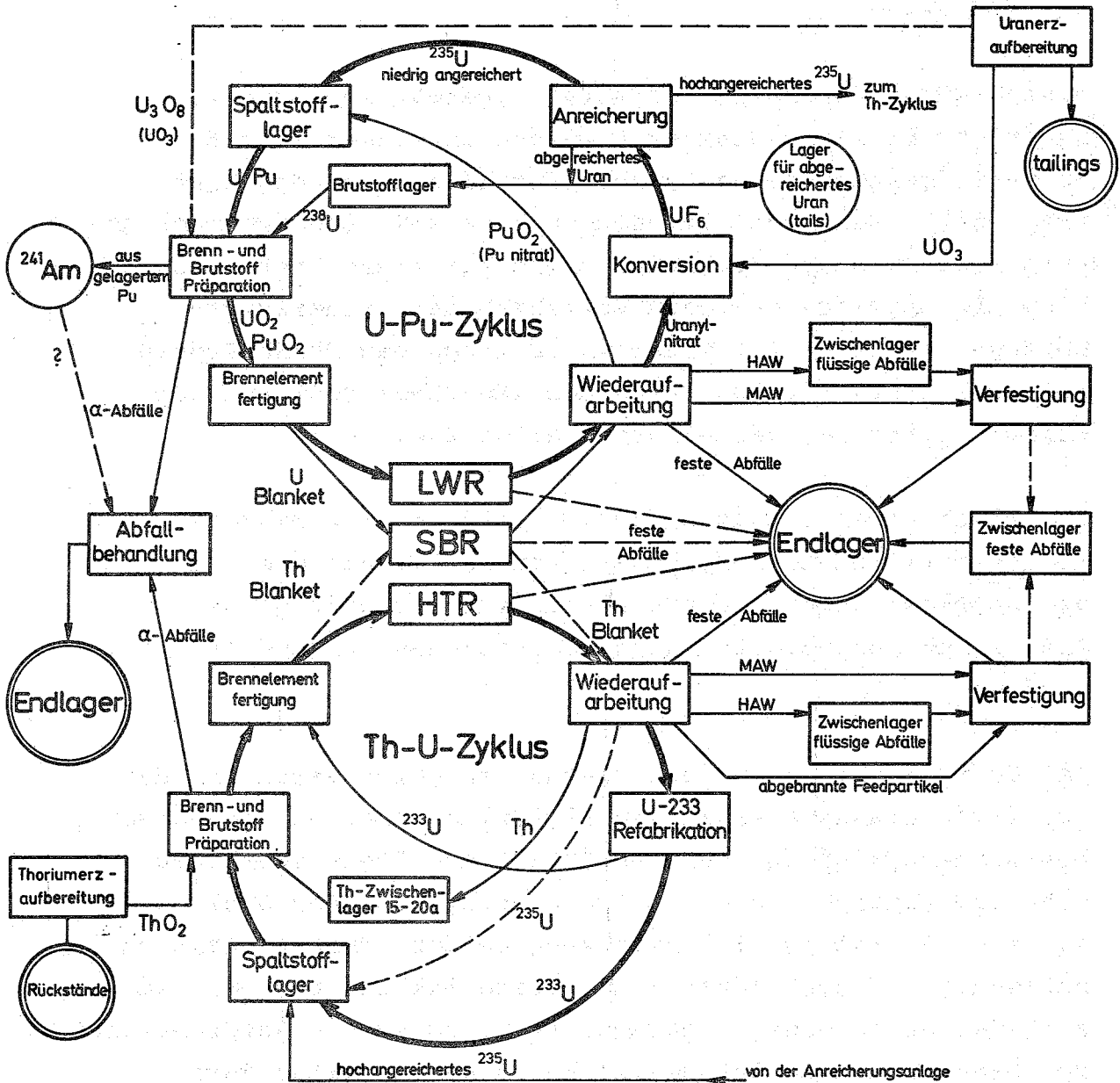


Fig. 3.1 Die Kernbrennstoffkreisläufe

KFK-2022 (1974)

3.1 Berechnungsmethode

Die Bildung von Spaltprodukten durch die Spaltung schwerer Atomkerne im Neutronenfluß der betrachteten Reaktoren, der konkurrierende Aufbau schwerer Isotope durch wechselweisen Neutroneneinfang und Betazerfall sowie der Zerfall der entstandenen radioaktiven Isotope wurde in Abbrandrechnungen mit dem Computerprogramm ORIGEN /B3/ gerechnet. In diesen Berechnungen wurden 461 Spaltproduktisotope und eine genaue rechnerische Behandlung der verzweigten Reaktionsketten und der Rückwirkung von α -Zerfallsketten der Nuklide Tl-204 bis Es-253 berücksichtigt (Fig. 3.2). Die zugrundegelegten 1000 MW_e Referenzreaktoren und Brennstoffkonzepte wurden in Tabelle 3.1 zusammengestellt. Es wurden jeweils die

- Nuklid- und Elementkonzentration [g/t Schwermetall]
- Radioaktivität [Ci/t SM]
- Zerfallswärme [Watt/t SM] und der
- relative Toxizitätsindex

als Funktion der Zeit nach der Reaktorentladung bzw. der Wiederaufarbeitung für

- Brennelementhüll- und Strukturmaterial
- Brennstoff und
- radioaktive Abfälle nach der Aufarbeitung

gerechnet. Die Ergebnisse dieser Rechnungen werden überwiegend in grafischer Form für die einzelnen Brennstoffvarianten wiedergegeben.

In einer vergleichenden Zusammenstellung wurden in Tabelle 3.2 die Konzentrationen von Spaltprodukten und Actiniden der abgebrannten Brennstoffe verschiedener Reaktortypen und Brennstoffvarianten aufgeführt.

Tabelle 3.1: Auslegungsdaten der 1000 MW_e Referenzreaktoren bei Lastfaktor 0.8

KFK-2022 (1975)

	DWR ^{a)}	SWR ^{a)}	DWR Pu- Rezykl.	SBR ^{b)} LWR-Pu	HTR ^{c)} U-235	HTR ^{c)} U-233 Rezykl.
ERSTKERN						
Schwermetall (Th+U+Pu) [t]	78.2	96.5	78.2	17.4/26.1	33.8	
Th [t]					32.3	
U [t]	78.2	96.5	78.2	14.5/26.1	1.5	
spaltbares Pu [t]				2.0/-		
NACHLADUNGEN (Gleichgewicht)						
Schwermetall (Th+U+Pu) [t]	26.0	32.2	26.0	10.9/14.4	7.6	7.7
Th [t]					7.0	7.0
U [t]	26.0	32.2	25.8	9.1/14.4	0.62	0.55
Anreicherung %	3.3	2.8	2.7	0.25/0.25	93	(93)
U-233 [t]						0.17
spaltbares Pu [t]			0.16	1.3/ -		
ABBRAND/STANDZEIT						
Abbrand Core [MWd/tSM]	34000	28000	34000	70000	95000	95000
Core + Blanket [MWd/tSM]				34000		
Standzeit [a]	3	3	3	1.6	4	4
ENTLADUNGEN (Gleichgewicht)						
Th [t]					6.44	6.46
U gesamt [t]	24.8	30.9	24.8	22.7	0.37	0.44
U-235 [t]	0.21	0.28	0.18		0.041	0.50
U-233 [t]					0.171	0.179
Pu gesamt [t]	0.25	0.26	0.28	2.0	0.010	0.016
Pu spaltbar [t]	0.17	0.18	0.18	1.5	0.002	0.003

a) Referenzreaktoren nach Angaben der KWU (1973)

b) basierend auf 2GW_e Referenzreaktor von INTERATOM-Projekt Schneller Brüter (1973)

c) basierend auf 1160 MW_e Referenzreaktor von GENERAL ATOMIC /D5/

TABELLE 3.2 ELEMENT-KONZENTRATIONEN (G/T SM) VON SPALTPRODUKTEN UND ACTINIDEN IN ABGEBRANNTEN BRENNSTOFFEN (KUEHLZEIT LWR 150 D, SBR 150 D, HTR 270 D)

KFK-2022(1975)

ELEMENT	LWR	LWR	LWR	SBR (OXID)	HTR	HTR
	34 GWD/T 3.3%U-235	45 GWD/T 4.5%U-235	34 GWD/T PU-REZYK	CORE+BLANKET 34 GWD/T LWR-PU	95 GWD/T U-235	95 GWD/T U-233 REZYK
H-3	0.074	0.095	0.08	0.097	0.13	0.13
HE	0.37	0.54	1.69	1.2	0.29	0.43
KR	382	526	345	287	1820	1990
XE	5590	7450	5610	4170	15200	15000
RB	341	472	305	248	1690	1870
CS	2800	3690	2840	3780	7090	7070
SR	914	1250	818	548	3620	3730
EA	1440	1950	1450	1380	4260	4300
Y	480	653	426	306	1940	2000
LA	1300	1740	1290	1160	3710	3690
CE	2790	3720	2730	2590	9170	8950
PR	1230	1650	1190	974	3800	3870
ND	3990	5400	3890	3460	12000	11700
PM	104	116	106	331	162	169
SM	834	1100	848	970	1850	1790
EU	191	258	205	141	347	331
GD	113	172	128	105	553	499
TB	1.9	2.2	2.4	8.5	0.8	0.8
DY	1.1	1.4	1.5	3.7	0.5	0.5
ZR	3760	5110	3540	3010	12500	12600
NB	12.9	15.2	12.8	20.7	9.7	9.7
MO	3540	4730	3520	3029	9480	9230
TC	863	1140	865	899	2060	1990
RU	2340	3050	2490	3050	4240	3870
RH	391	460	424	909	420	419
PD	1350	1730	1660	2140	1350	1240
AG	62.3	70.9	78.2	212	12.5	14.1
CD	88.4	115	117	127	61.6	64.2
IN	1.2	1.3	1.4	13.5	1.4	1.5
SN	53.5	67.1	62.3	136	96.5	111
SB	17.7	21.9	20.4	51.3	36.2	41.3
SE	53.3	72.4	50.8	58.5	247	278
TE	582	763	619	572	1660	1790
BR	15.7	21.0	15.4	22	81.9	96.8
J	277	357	300	289	835	951
TH					849000	840000
PA					20.3	19.6
U	954000	942000	952000	860000	49000	57600
NP	500	769	376	263	1760	2310
PU	9080	9510	10600	103000	1320	1770
AM	153	208	544	959	38.2	46.1
CM	42.9	72.5	317	21.9	20.7	22.7
SUMME FP	35900	47900	35900	35300	100000	99700
SUMME TU	9776	10560	11837	104244	3139	4149

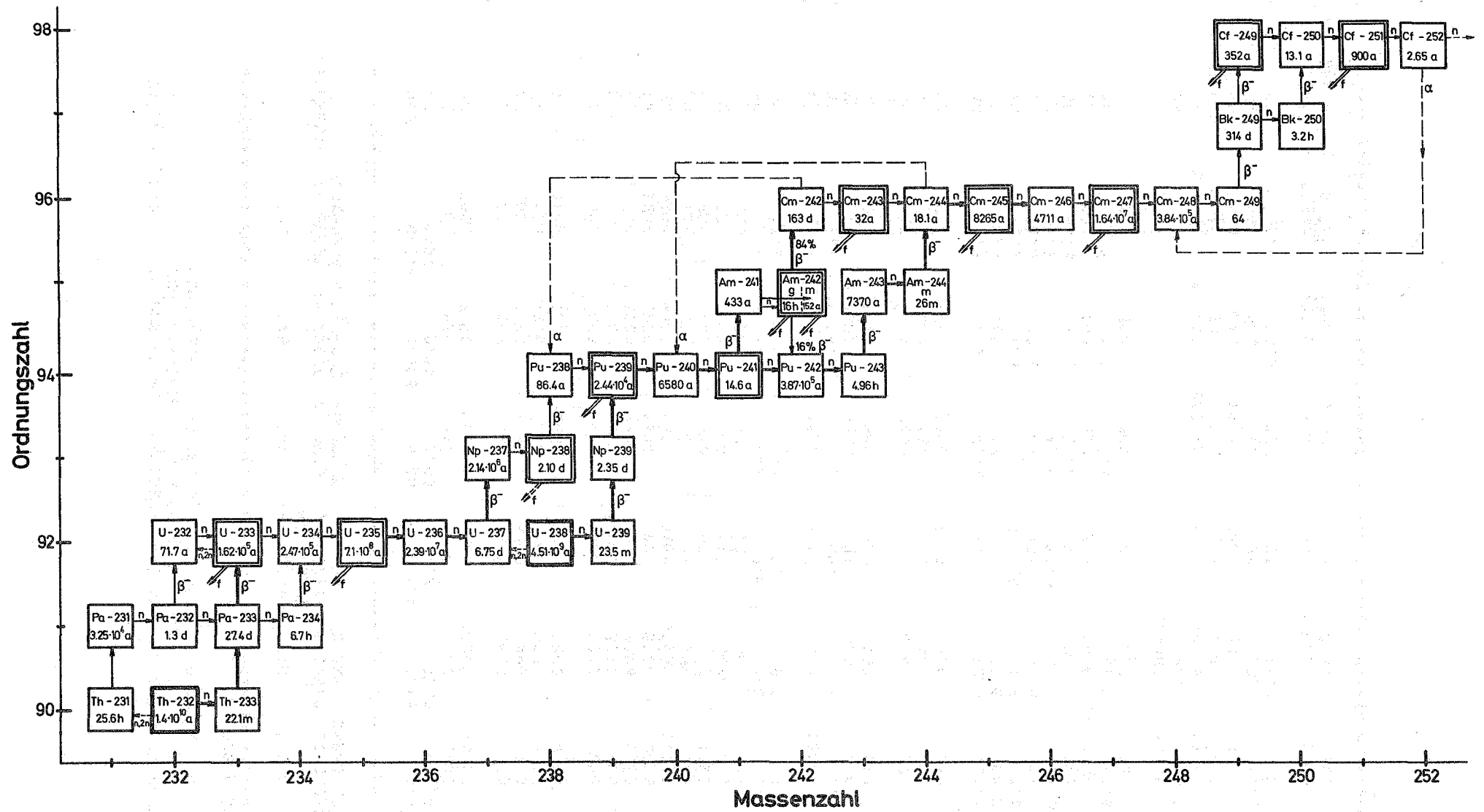


Fig. 3.2 Aufbau von Isotopen der Actiniden durch Reaktorneutronen

3.2 Uran-Plutonium-Zyklus

Bei den kommerziellen Kernkraftwerken haben sich auf breiter Basis Leichtwasserreaktoren (LWR) durchgesetzt. Diese mit leichtem Wasser moderierten und gekühlten Kernreaktoren werden in den beiden Bauformen als Druckwasser- und Siedewasserreaktoren mit niedrig angereichertem Uran (2-4 % angereichertes U-235) betrieben.

Ebenfalls zum Uran-Plutonium-Zyklus sind die in der Entwicklung befindlichen Schnellen Brutreaktoren (SBR) zu rechnen, die mit dem aus LWR-Brennstoff gewonnenen Plutonium als Spaltstoff arbeiten.

Die wichtigsten Stufen des Uran-Plutonium-Brennstoffkreislaufs sind in der oberen Hälfte von Fig. 3.1 schematisch dargestellt. In allen Stufen des Brennstoffkreislaufs fallen radioaktive Abfälle in verschiedenen physikalischen und chemischen Formen sowie stark unterschiedlichem Aktivitätsbereich an. Einige bedeutende Abfallströme sind daher ebenfalls in Fig. 3.1 angedeutet.

Die mengenmäßig bedeutendsten Ströme radioaktiver Abfälle fallen in den Stufen

- Brennelementfabrikation und -refabrikation
- dem Betrieb der Reaktoren und
- der Wiederaufarbeitung der abgebrannten Brennelemente an.

Die Hauptmenge

- des aktivierten Hüll- und Strukturmaterials
- der Spaltprodukte und
- der Transuranelemente

werden jedoch bei der Wiederaufarbeitung abgetrennt. Dabei gelangen im ersten Extraktionszyklus des PUREX-Prozesses

- > 99 % der nicht flüchtigen Spaltprodukte
- einige Transurane
- die Zerfallsprodukte und
- die Uran- und Plutoniumverluste

in den "hochaktiven Abfall" (siehe Abschnitt 4.1.3.1).

Die Rechnungen zu den nachfolgenden Brennstoffvarianten beziehen sich im wesentlichen auf die hochaktiven Abfälle sowie auf das anfallende Hüll- und Strukturmaterial.

3.2.1 LWR mit U-235 / U-238

Leichtwasserreaktoren benötigen als Brennstoff leicht angereichertes Uran. Gegenwärtig gebaute große Kraftwerksreaktoren werden mit Urananreicherungen von 2,8 bis 3,3 % ausgelegt. Die Abbrände dieser Brennstoffe liegen bei 2 - 3 Gewichtsprozent des ursprünglich eingesetzten Gesamturans (wobei der Gehalt an erzeugtem Plutonium in den abgebrannten Brennelementen 0,8 bis 1,2 % beträgt).

Für den radioaktiven Abfall von aufgearbeitetem LWR-Brennstoff lagen folgende Daten eines 1000 MW_e Referenzreaktors (Entwurf KWU) zugrunde:

- Gleichgewichtsbrennstoffzyklus mit 3,3 % angereichertem Uran-235
- jährlicher Brennstoffwechsel 26,0 t bei Lastfaktor 0,8 entsprechend 1/3 des Reaktorkerns
- Abbrand 34000 MWd/t SM
- Brennelementhüll- und Strukturmaterial 414 kg/t SM (Zircaloy 4 und Edelstahl)
- Wiederaufarbeitung nach 150 Tagen Kühlzeit

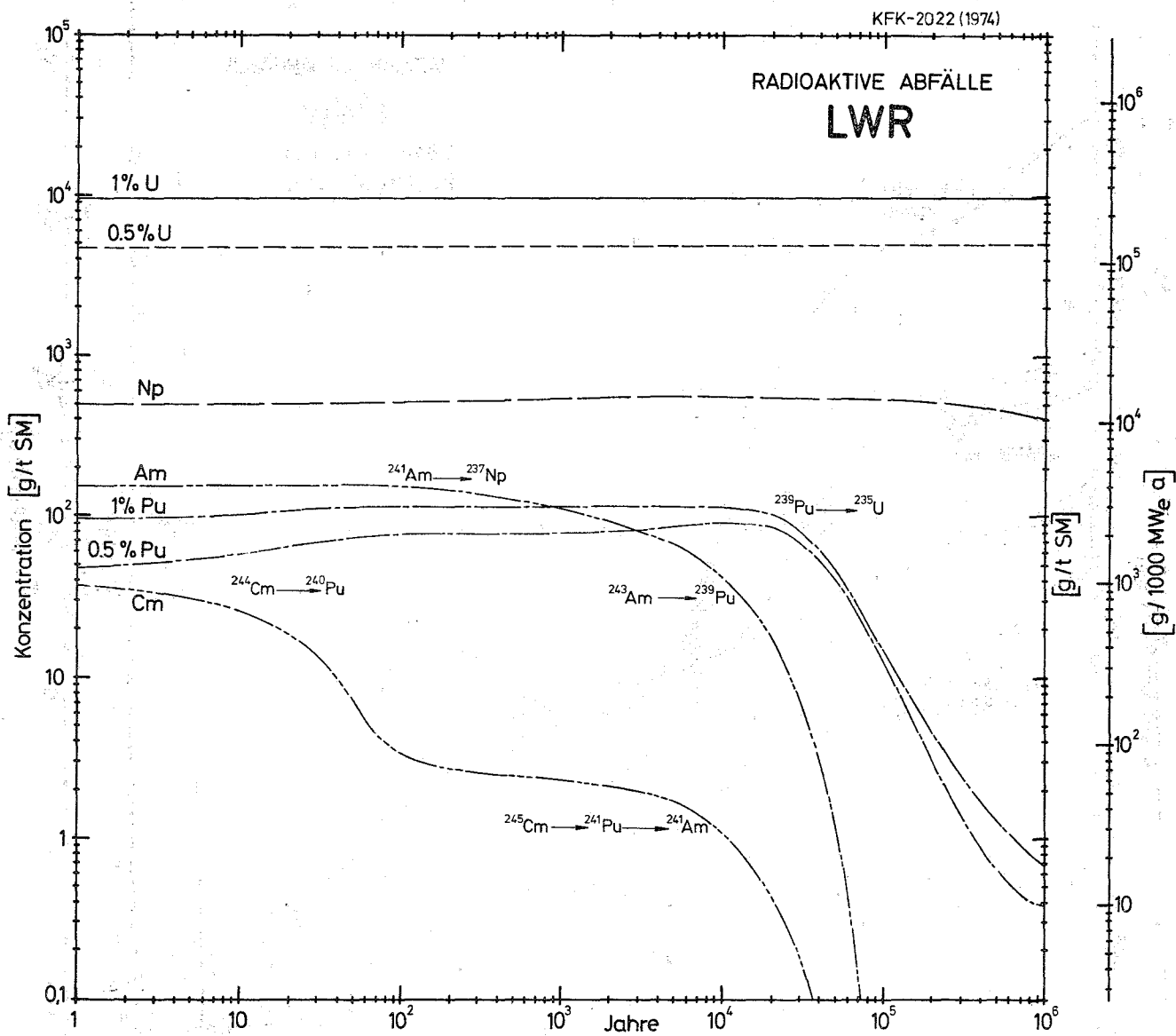


Fig. 3.3 Konzentration von Actiniden im radioaktiven Abfall von LWR-Brennstoff 3.3% U-235 Gleichgewichtszyklus, Abbrand 34 000 MWd/t SM; Wiederaufbereitung nach 150 Tagen Kühlzeit; Verluste 1% U und 1% Pu bzw. 0.5 % U und 0.5 % Pu

KFK-2022 (1974)

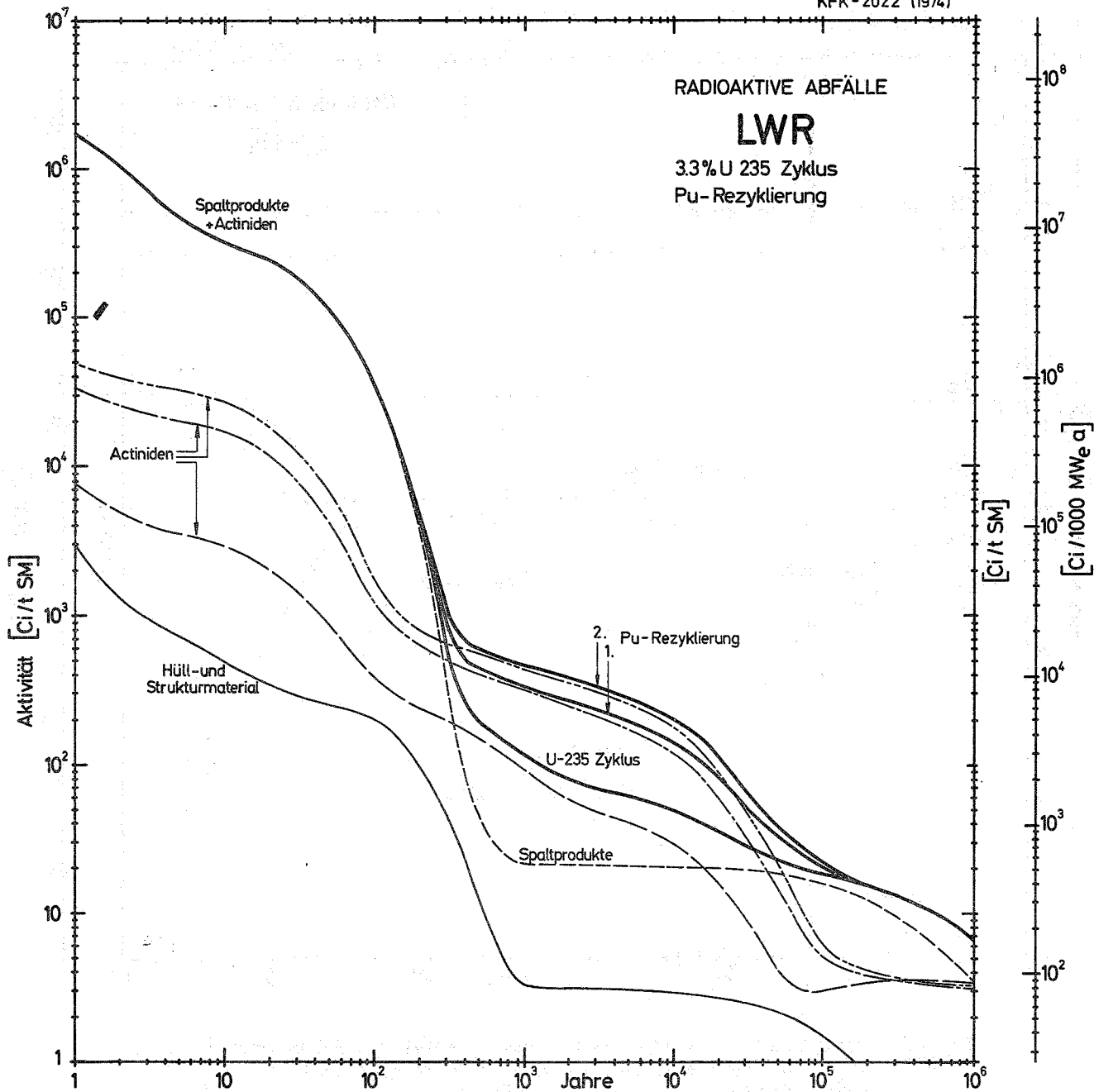


Fig.3.4 Aktivität von Spaltprodukten, Actiniden und Hüll- und Strukturmaterial im radioaktiven Abfall von LWR-Brennelementen (U-235, 1.u. 2. Pu-Rezyklierung, Abbrand je 34000 MWd/t SM), Wiederaufarbeitung nach 150 Tagen Kühlzeit. Verlust: 1% Pu und 1% U

In Fig. 3.3 und 3.4 wurden die Konzentrationen und Aktivitäten für die langlebigen Spaltprodukte und Actiniden bis zu einem Zeitraum von 10^6 Jahren für den hochaktiven Abfall der Wiederaufarbeitung des LWR-Brennstoffs wiedergegeben. Es wurde ein Verlust von 0,5 % Uran und 0,5 % Plutonium angenommen (weitere Annahmen siehe 3.4).

Die Menge Americium-241, die bei der Wiederaufarbeitung praktisch quantitativ in den hochaktiven Abfall geht, ist wegen des Zuwachses durch den Zerfall von Pu-241 (Betastrahler; 14,5 a) stark vom Zeitpunkt der Wiederaufarbeitung abhängig. Für LWR-Brennstoff mit 3,3 % angereicherem Uran wurden nach einem Abbrand von 34000 MWD/t SM folgende Konzentrationen [g/t SM] berechnet /H6/:

	Kühlzeit					
	150 d	270 d	1 a	3 a	5 a	10 a
Am-241	47.2	63.3	75.9	168	265	426

3.2.2 LWR mit Plutoniumrückführung

Bei der Wiederaufarbeitung von LWR-Brennstoff wird in Zukunft mehr und mehr Plutonium anfallen. Wegen seiner reaktorphysikalischen Eigenschaften eignet sich Plutonium am besten als Kernbrennstoff für die in der Entwicklung befindlichen Schnellen Brutreaktoren (vgl. 3.2.3). Bis

zur Markteinführung dieses Reaktortyps gegen Ende der 80er Jahre ergäbe sich das Problem schnell akkumulieren-der Plutoniummengen (Fig. 3.14).

Gründe der Sicherheit, der wirtschaftlichen Nutzung und der Entwicklung einer geeigneten Plutoniumtechnologie sprechen für einen Wiedereinsatz auch in LWR (thermische Plutoniumrückführung /A3, M6/). Um 1 g U-235 zu ersetzen braucht man etwa 1,25 g Pu. (Im schnellen Reaktor dagegen ersetzen ca. 0,7 g Pu 1 g U-235 /H2/). Testbestrahlungen plutoniumhaltiger Brennelemente in Siede- und Druckwasserreaktoren sind sowohl in den USA /A3/ als auch in der BRD /M6, L1/ im Gange.

Zur Berechnung der Bildung von Transuranelementen wurde von den praktisch realisierbaren Möglichkeiten für die Plutoniumrückführung die Variante ausgewählt, bei der die Pu-Rückführung im Umfang der Eigenerzeugung erfolgt, d.h. nur das von einem bestimmten Reaktor produzierte Plutonium wird in diesen rezykliert. Als Isotopenzusammensetzung des rezyklierten Plutoniums wurde diejenige genommen, die für den Gleichgewichtszyklus eines Druckwasser-Referenzreaktors mit 3,3 % angereichertem Uran und 34000 MWd/t SM Abbrand bei 150 Tagen Kühlzeit und zusätzlich ein Jahr für die Brennelementfertigung berechnet wurde. Es konnte etwa 19 % des Spaltstoffs durch spaltbares Plutonium ersetzt werden.

Die Isotopenzusammensetzung des Plutoniums nach der Rezyklisierung in den LWR ist in Anhang 2, Tab. A 2.1 aufgeführt. Für den hochaktiven Abfall des aufgearbeiteten LWR-Brennstoffs mit rezykliertem Plutonium ergaben sich die in Fig. 3.5 eingetragenen Konzentrationen. Die erzeugten Mengen an Americium und Curium liegen um ein Mehrfaches über denen des Uranzyklus. Die Aktivitätskurven wurden bereits in Fig. 3.4 eingezeichnet.

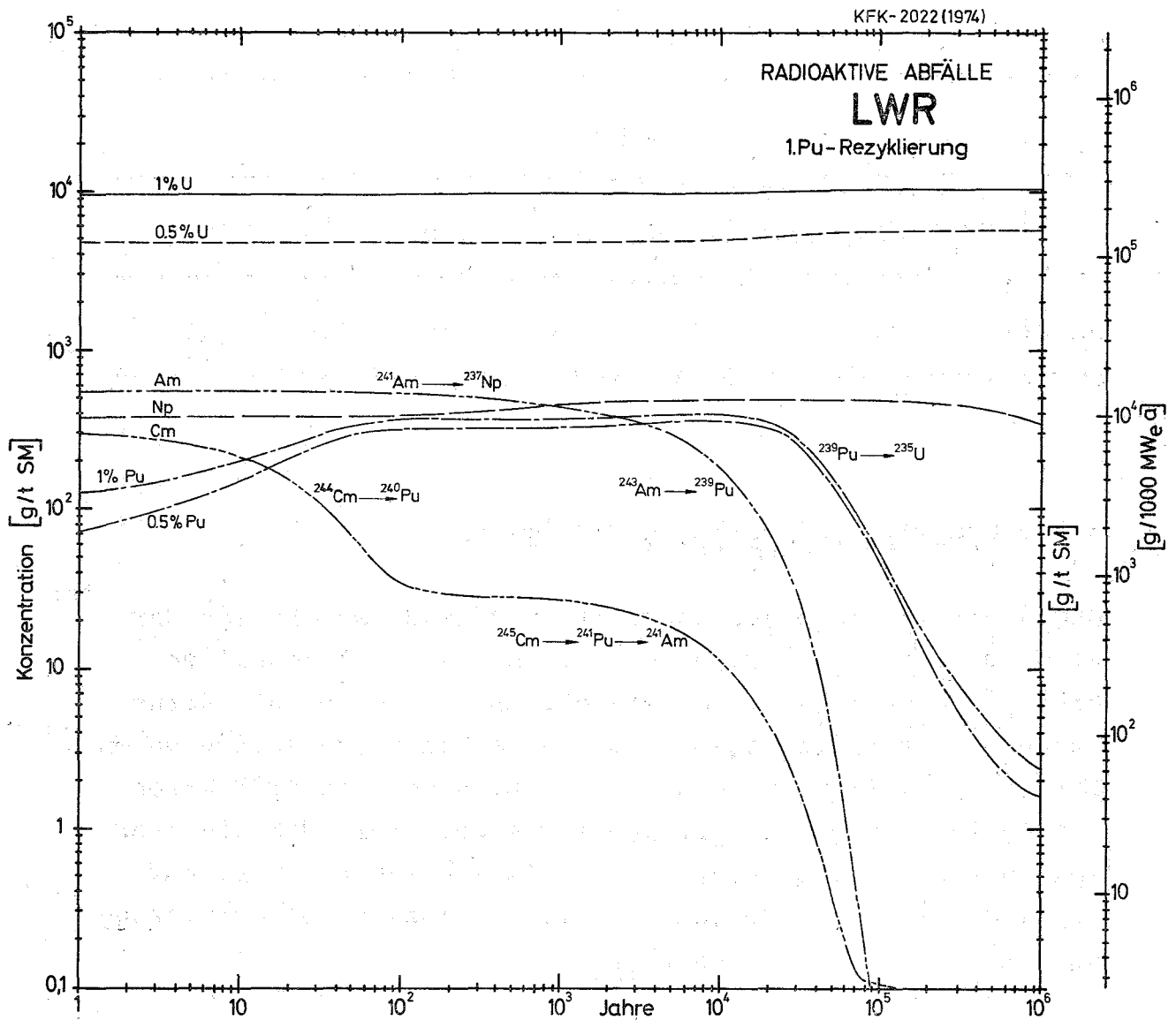


Fig.3.5 Konzentration von Actiniden im radioaktiven Abfall von LWR-Brennstoff bei 1. Plutonium-Rezyklierung, Abbrand 34000 MWd/t SM, Wiederaufbereitung nach 150 Tagen Kühlzeit, Verluste: 1% U und 1% Pu bzw. 0.5% U u. 0.5% Pu

Auch im Falle der Plutoniumrezyklierung in den LWR ist auf Grund des Zerfalls von Pu-241 die Menge Americium-241 im hochaktiven Abfall stark vom Zeitpunkt der Wiederaufarbeitung abhängig [in g/t SM] /H6/.

	Kühlzeit					
	150 d	270 d	1 a	3 a	5 a	10 a
Am-241	80	102	120	246	385	603

3.2.3 SBR mit Plutonium / U-238 (Oxid)

Wegen der reaktorphysikalischen Eigenschaften erfolgt der Wiedereinsatz von Plutonium am günstigsten in Schnellen Brutreaktoren (SBR), die speziell auf Plutonium als Kernbrennstoff zugeschnitten sind. Diese Reaktoren werden neben der wirtschaftlichen Optimierung auf eine hohe Produktion von Pu-239 und Pu-241 optimiert mit dem Ziel, daß sie mehr spaltbares Material brüten, als sie abbrennen, um so auf lange Sicht eine hohe (ca. 30 bis 50-prozentige) Ausnutzung des Natururans erreichen zu können.

Im Bereich schneller Neutronen nimmt mit steigender Neutronenenergie der Wirkungsquerschnitt für Neutroneneinfang (σ_{γ}) rascher ab als der Wirkungsquerschnitt für Kernspaltung (σ_f). Außerdem spalten mit schnellen Neutronen auch Transuranisotope, die mit thermischen Neutronen nicht spalten. Aus beiden Gründen werden im schnellen Reaktor (unter Berücksichtigung des hohen

Plutoniuminventars) relativ kleinere Mengen an Transplutoniumnukliden aufgebaut.

Die Rechnungen für den radioaktiven Abfall erfolgten unter Berücksichtigung folgender Daten (siehe auch Tab. 3.1) eines natriumgekühlten 1000 MW_e Referenzreaktors (Entwurf Interatom - Projekt Schneller Brüter):

- Gleichgewichtszyklus mit LWR-Plutonium
- Standzeit von Core und innerer Blanketreihe 1,6 Jahre, äußere Blanketreihe 3,2 Jahre
- mittlerer Entladeabbrand im Core 70000 MWd/t SM
- jährlicher Brennstoffwechsel 25,0 t SM bei Lastfaktor 0.8
- Brennelementhüll- und Strukturmaterial 640 kg/t SM (Edelstahl)
- gemeinsame Wiederaufarbeitung von Core und Blanket (mit einem mittleren Abbrand von 34000 MWd/t SM) nach 150 Tagen Kühlzeit.

Die berechneten Konzentrationen und Aktivitäten sind in Fig. 3.6 und 3.7 grafisch zusammengestellt.

In Fig. 3.7 wurde zusätzlich noch der Aktivitätsverlauf beim Einsatz von SBR-Plutonium eingezeichnet. Dieses enthält einen geringeren Anteil schwerer Pu-Isotope und es werden weniger Americium und Curium erzeugt.

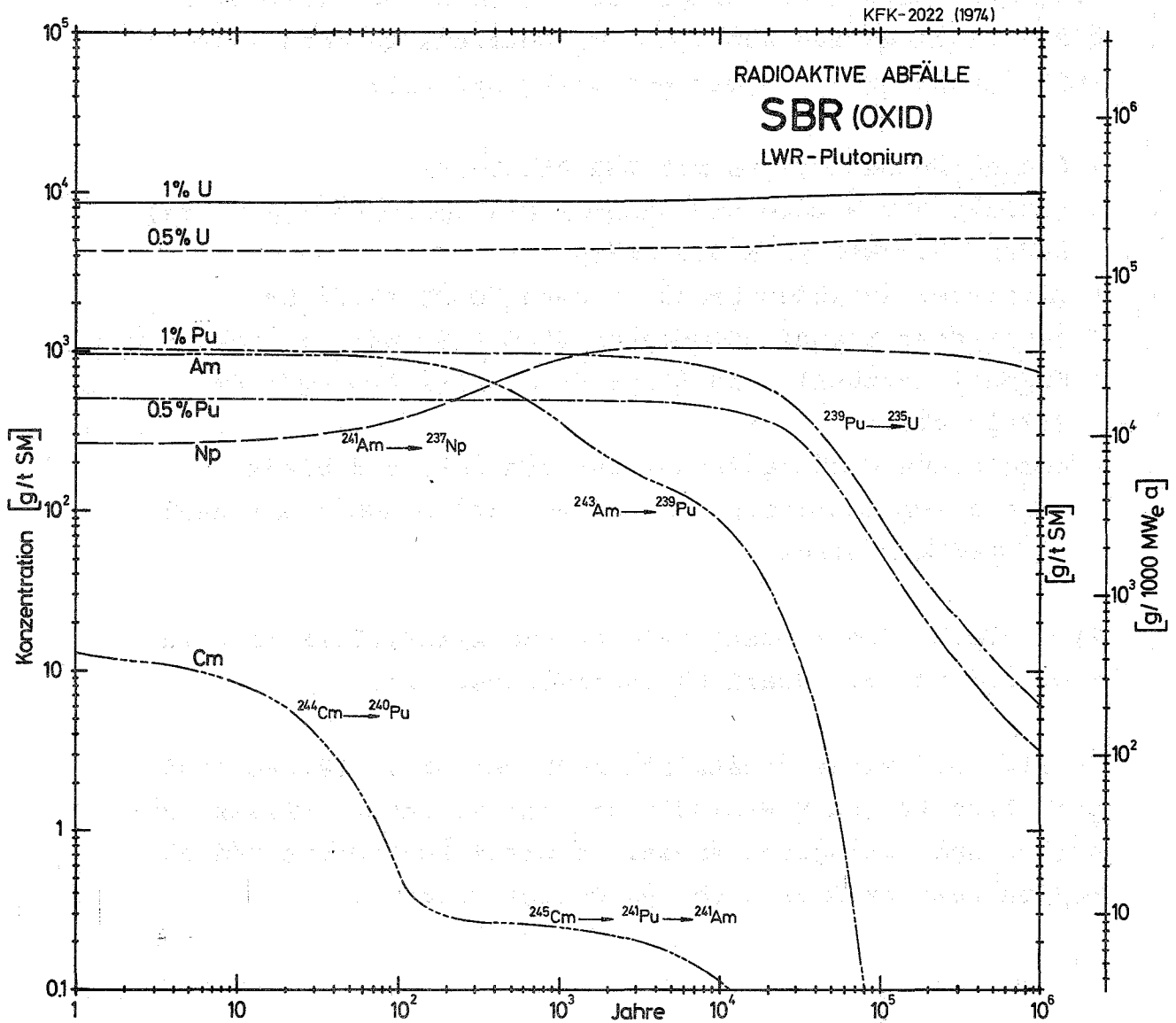


Fig. 3.6 Konzentration von Actiniden im radioaktiven Abfall von SBR-Brennstoff mit LWR-Plutonium, Abbrand von Core + Blanket 34000 MWd/t SM, Wiederaufarbeitung nach 150 Tagen Kühlzeit; Verluste: 1% U und 1% Pu bzw. 0.5% U und 0.5% Pu

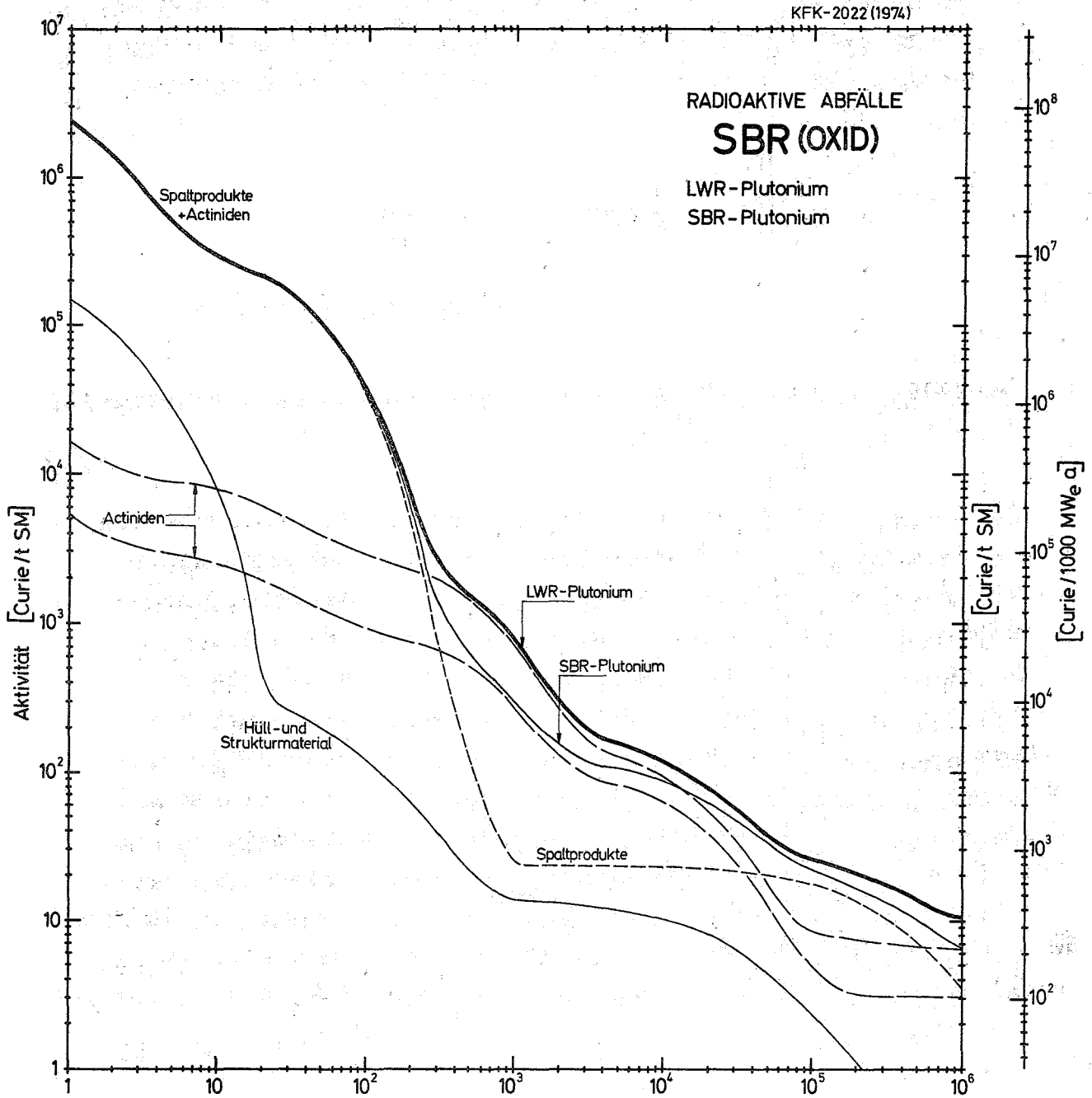
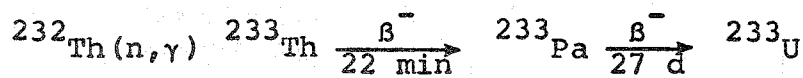


Fig. 3.7 Aktivität von Spaltprodukten, Actiniden und Hüll- und Strukturmaterial im radioaktiven Abfall von SBR-Brennelementen (LWR-/SBR-Plutonium) Abbrand von Core+Blanket 34000 MWd/t SM, Wiederaufarbeitung nach 150 Tagen Kühlzeit. Verlust: 1% Pu und 1% U

3.3 Thorium-Uran-Zyklus

Für die Kernenergiegewinnung kommt neben U-235 und Pu-239 / Pu-241 auch U-233, das ebenfalls mit thermischen Neutronen spaltbar ist, in Betracht. U-233, das im natürlichen Uran nicht vorkommt, kann nach folgender Kernreaktion gewonnen werden.



(α -Strahler; $1,6 \cdot 10^5$ a)

Ausgangsmaterial ist das in der Natur vorkommende Thorium-232 (α -Strahler; $1,39 \cdot 10^{10}$ a).

Die Anwendung des Thorium-Uran-Zyklus erfolgt vorzugsweise in gasgekühlten Hochtemperaturreaktoren. Hochtemperaturreaktoren können zwar in einem einfachen Brennstoffdurchsatz mit niedrig angereichertem Uran (etwa 5-10 % angereichertes U-235) betrieben werden /S8/, jedoch bietet langfristig der geschlossene Thorium-Uran-Kreislauf mit Rückführung des erzeugten U-233 Kostenvorteile /B5/. Dies liegt einerseits in den guten nuklearen Eigenschaften des erbrüteten U-233 im Bereich thermischer Neutronen, da ein reines U-233-Core einen deutlich größeren Konversionsfaktor als ein U-235-Core besitzt, andererseits braucht der Thorium-Uran-Brennstoffkreislauf mit U-233-Rückführung etwa 30 bis 50 % weniger U-235 Nachladung, und damit entsprechend weniger Trennarbeit.

Für den Anfall radioaktiven Abfalls ergibt sich im Thorium-Uran-Zyklus folgende Problematik:

- Das erzeugte Plutonium liegt mengenmäßig in der gleichen Größenordnung wie das gebildete Neptunium. Wegen der relativ kleinen Mengen und dem geringen Anteil an mit thermischen Neutronen spaltbaren Plutoniumisotopen (25 % spaltbares Pu, ca. 65 % Pu-238) scheint eine Abtrennung bei der Wiederaufarbeitung und eine Rückführung in die Reaktoren nicht vorgesehen zu sein. Das Plutonium stellt somit ein zusätzliches langfristiges Waste-Problem dar (siehe Abschnitt 5.4).

- Vorschläge zum Feed-Breed-Konzept (U-235 Abbrandpartikel und Th-232 / U-233 Brutpartikel) sehen vor, daß das Uran der Abbrandpartikel auf wenige Prozent der ursprünglichen hohen U-235 Anreicherung in ein, höchstens zwei Durchgängen abgebrannt wird /D2, S6/, "before retiring it at zero value" /S6/. Das bedeutet, daß sie ohne nochmalige Wiederaufarbeitung als hochradioaktiver Abfall zur Endlagerung gebracht werden sollen /M4/.

- Eine Wiederaufarbeitung der Abbrandpartikel, wenn sie nach dem 2. Reaktordurchsatz nur noch 4-5 % U-235 besitzen, könnte nur zum Ziel haben, die Spaltprodukt- und Actinidenoxide in der relativ sicheren Verpackung der beschichteten Partikel in eine noch sicherere Lagerform (Glas, Keramik etc.) zu bringen. Die Vorteile eines solchen Verfahrens sind noch unklar. Außerdem bedeutet ein solcher Aufarbeitungsprozeß zwangsläufig eine Vergrößerung des Abfallvolumens durch die entstehenden mittel- und schwachaktiven Abfälle.

3.3.1 HTR mit U-235 / Th-232

Der Thorium-Hochtemperaturreaktor wird mit hochangereichertem Uran (93 % angereichertem U-235) und der 10- bis 20-fachen Menge Thorium angefahren /S6/. Wegen der hohen Anreicherung

und des größeren thermodynamischen Wirkungsgrads des HTRs (39 - 42 %) beträgt das Schwermetallinventar nur ca. 1/3 der Menge eines LWR. Die jährliche Nachladung beträgt wegen des höheren Abbrandes und der längeren Einsatzzeiten der Brennelemente von 4 Jahren nur ca. 1/4 der Menge eines LWR gleicher elektrischer Leistungen (vgl. auch Tabelle 3.1).

Die Berechnungen des radioaktiven Abfalls basieren auf einem heliumgekühlten Hochtemperaturreaktor und folgendem Brennstoffkonzept /D5/:

- offener Brennstoffzyklus ohne U-233 Rückführung
- Kohlenstoff/Thorium-Atomverhältnis 250
- Lebensdauer der Brennelemente 4 Jahre
- mittlerer Abbrand 95000 MWd/t SM
- jährlicher Brennstoffwechsel ca. 7,6 t SM (je 1000 MW_e) bei Lastfaktor 0,8
- Wiederaufarbeitung nach 270 Tagen Kühlzeit.

Für die Zusammensetzung des hochradioaktiven Abfalls wurde angenommen, daß unabhängig davon, ob Mischoxidbrennstoff oder Brennstoff nach dem Abbrand-Brut-System vorliegt, eine Wiederaufarbeitung erfolgt, bei der die Elemente Protactinium, Neptunium, Americium und Curium sowie ein Verlust von 1 % Thorium und 1 % Uran in den hochaktiven Spaltproduktabfall laufen. Für Plutonium wurde angenommen, daß es entweder quantitativ oder im Falle seiner Abtrennung zu 1 % in den Abfall gelangt.

Die Ergebnisse der Rechnungen wurden in Fig. 3.8 und 3.9 zusammengefaßt.

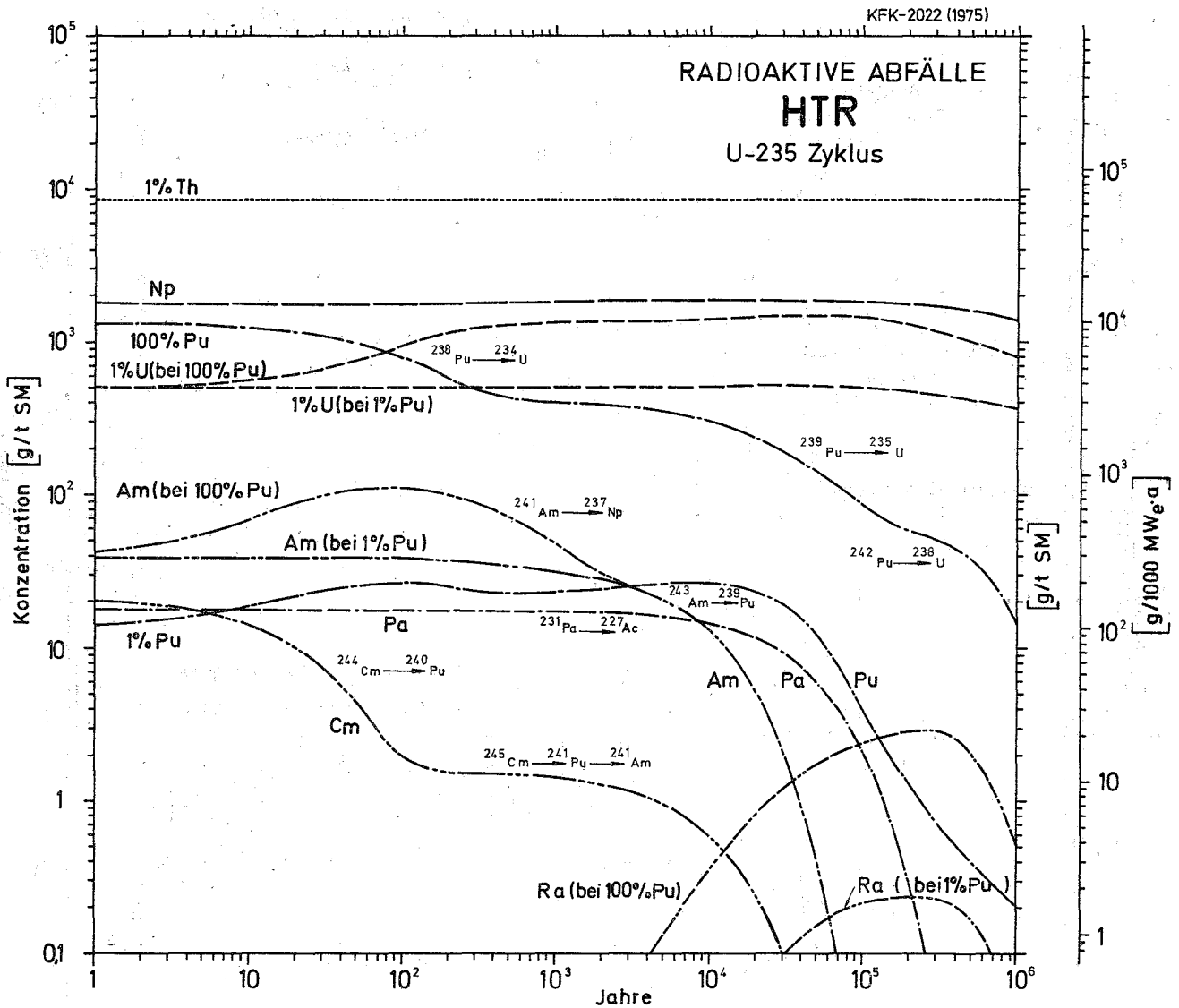


Fig. 3.8 Konzentration von Actiniden im hochaktiven Abfall von HTR-Brennstoff (93%U-235); Abbrand 95000 MWd/t SM, Wiederaufarbeitung nach 270 Tagen Kühlzeit; Verluste : 1%Th, 1%U, 1%Pu oder 100% Pu.

KFK-2022 (1975)

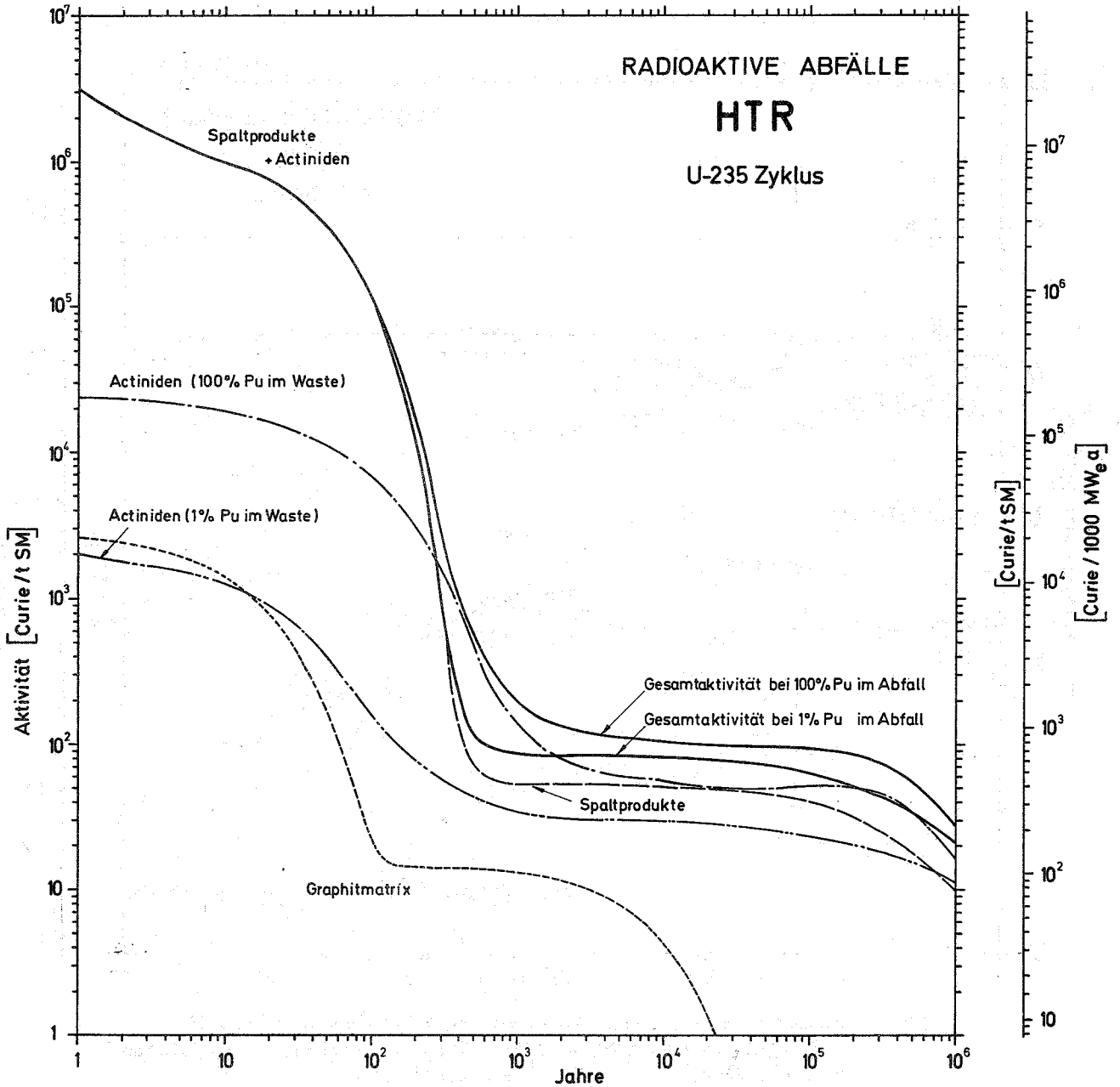


Fig.39 Aktivität von Spaltprodukten, Actiniden und Graphitmatrix im radioaktiven Abfall von HTR-Brennstoff (93% U-235).
Abbrand 95000 MWd/t SM
Wiederaufarbeitung nach 270 Tagen Kühlzeit
Verluste 1% Th, 1% U, 100% Pu (oder 1% Pu) im hochaktiven Abfall.

3.3.2 HTR mit U-233 Rückführung (U-233, U-235/Th)

Der Thorium-Hochtemperaturreaktor ist ein Konverter mit hoher Konversionsrate. Zur Deckung des gesamten Brennstoffbedarfs muß nach der Wiederaufarbeitung und Rückführung des erzeugten U-233 ein Teil des abgebrannten U-235 ersetzt werden. Die Energieerzeugung dieses Reaktortyps erfolgt zu etwa 1/3 aus dem U-235 und zu etwa 2/3 aus dem Th-232/U-233 Brutzyklus /L1/.

Beim Abbrand-Brutsystem ist eine Überschneidung des Brennstoff- und Brutstoffzyklus bei der Wiederaufarbeitung unerwünscht.

- Bei einem angestrebten Abbrand des U-235 von etwa 75 % ist aus dem restlichen Uran zum großen Teil U-236 entstanden, "das eine Wiederaufarbeitung wenig attraktiv macht" /L1/. Das restliche U-235 soll daher nur noch ein weiteres Mal eingesetzt werden /B6, S6/.
- Das zu ca. 8 % verbrauchte Thorium enthält das wertvolle U-233, dessen Weiterverarbeitung starke Abschirmung und Fernsteuerung erfordert.

Es ist vorgesehen, das bei der Wiederaufarbeitung gewonnene U-233 zu beschichteten Teilchen zu refabrikieren, das Thorium bis zum weitgehenden Zerfall des Th-228, in dessen Zerfallsreihe energiereiche γ -Quanten auftreten, ca. 15 bis 20 Jahre zu lagern. Die relativ kleinen Mengen der U-235 Abbrandpartikel sollen vorerst nach dem ersten Reaktordurchsatz ebenfalls zwischengelagert werden /T2/. Sie könnten später als Waste beseitigt oder aufgearbeitet werden, wobei die Verwendung des abgetrennten Urans noch unklar ist. Das Konzept der General Atomic /S6, D2/ sieht aus ökonomischen Gründen nur noch eine weitere Reaktorbestrahlung von 4 Jahren vor. Eine Wiederaufarbeitung der Abbrandpartikel ist dann nicht mehr vorgesehen.

Das hochangereicherte Uran der Abbrandkerne enthielt ursprünglich ca. 6 % U-238, aus dem sich durch Neutroneneinfang Plutonium, Americium und Curium bilden. Die Abbrandpartikel enthalten daher den größeren Teil der Transuranelemente.

Für die Berechnungen des hochradioaktiven Abfalls wurde unter Berücksichtigung der U-233 Rezyklierung der gleiche Referenzreaktor wie für den offenen U-235-Zyklus (Kapitel 3.3.1) zugrundegelegt /D5/.

Es wurde wiederum angenommen, daß entweder das gesamte erzeugte Plutonium (oder im Falle der Abtrennung 1 %) in den radioaktiven Abfall gelangt.

Die errechneten Gesamtkonzentrationen im Abfall (einschließlich 1 % Th und 1 % U Verlust) wurden in Fig. 3.10 eingetragen; eine Aufteilung in Brut- und Abbrandteilchen erfolgte hier nicht (vgl. dagegen Kapitel 5.4). Die gesamte Aktivität wurde in Fig. 3.11 dargestellt. Der Einfluß des Plutoniums im Waste auf die Gesamtaktivität nach $> 10^3$ Jahren ist gering (siehe hierzu auch Kapitel 5.4).

3.3.3 HTR mit LWR-Plutonium

Die Einsetzbarkeit von LWR-Plutonium anstelle von U-235 als Spaltstoff in Hochtemperaturreaktoren zusammen mit Thorium als Brutmaterial wurde ebenfalls untersucht /A3, D2, G3/. Danach scheint ein gemischtes U-Pu-Core reaktorphysikalisch Schwierigkeiten zu bereiten. Nach neueren Rechnungen /B13/ kann jedoch U-235 vollständig gegen LWR-Plutonium ersetzt werden, wenn das gesamte Core nach 2,5 Jahren entladen würde. Dieses Plutonium-Core würde gute Eigenschaften als Erst-Core zeigen, ein Übergang auf ein Uran-Core sei ohne Schwierigkeiten möglich.

KFK 2022 (1975)

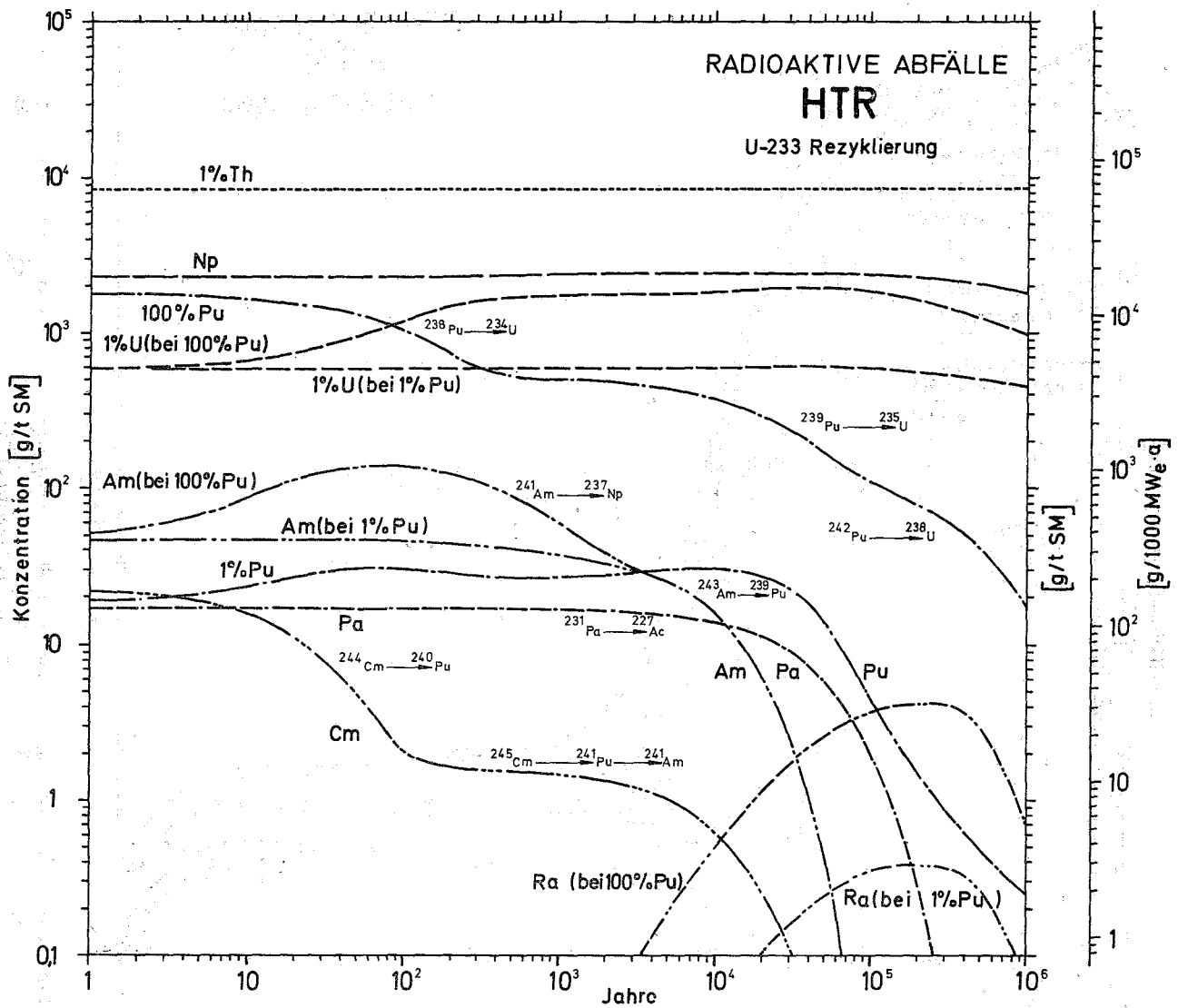


Fig. 3.10

Konzentration von Actiniden im hochaktiven Abfall von HTR-Brennstoff mit U-233 Rezyklierung, Abbrand 95000 MWd/t SM; Wiederaufarbeitung nach 270 Tagen Kühlzeit; Verluste: 1%Th, 1%U, 1%Pu oder 100%Pu.

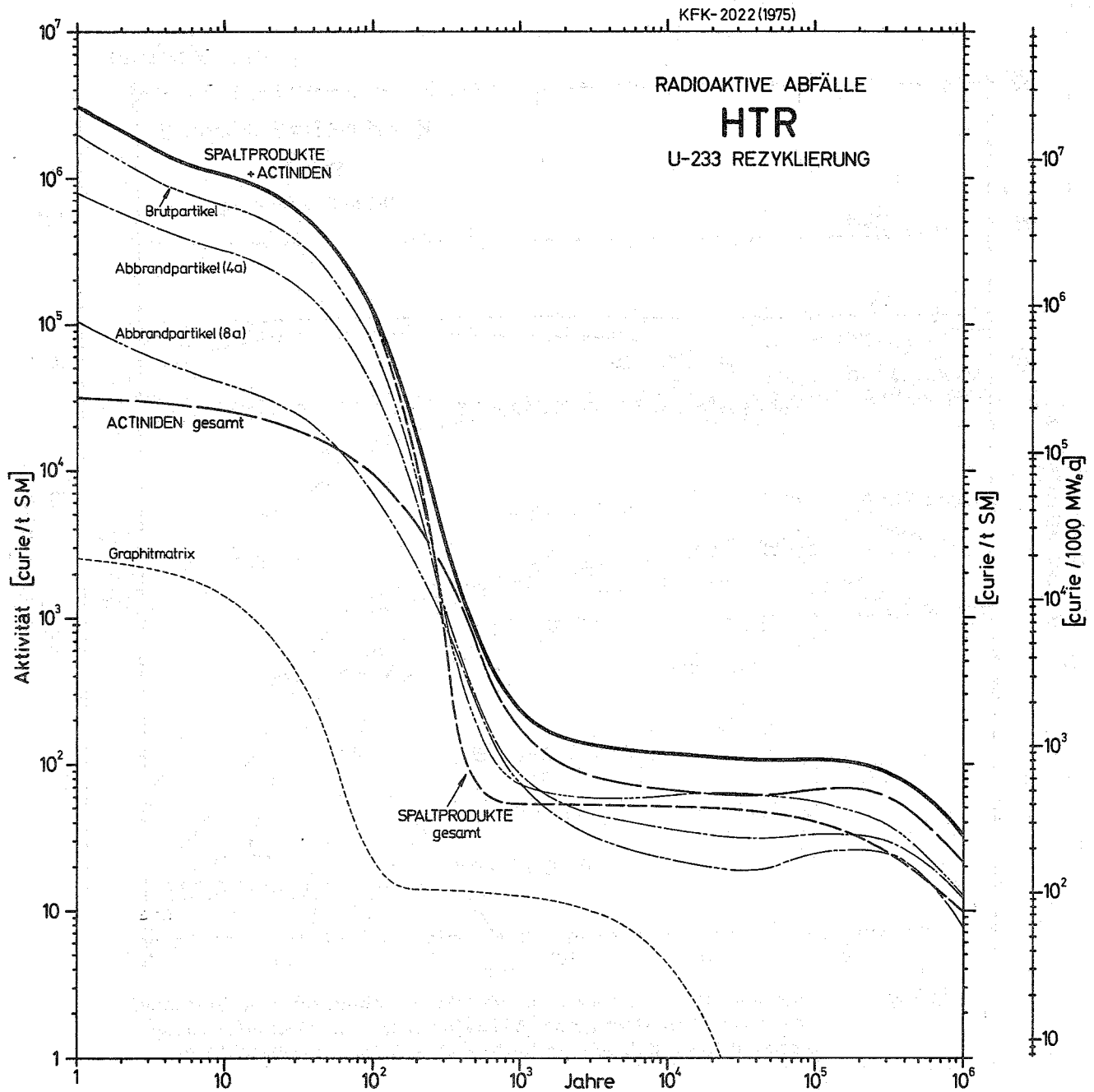


Fig. 3.11 Aktivität von Spaltprodukten, Actiniden und Graphitmatrix im radioaktiven Abfall von HTR-Brennstoff mit U-233 Rezyklierung. Abbrand 95000 MWd/t SM Wiederaufarbeitung nach 270 Tagen Kühlzeit Verluste : 1% Th, 1% U; 100% Pu im hochaktiven Abfall

Es ist unklar, ob dieses Brennstoffkonzept zum Einsatz kommt, da der zeitliche Vorsprung der Einführung des HTR gegenüber dem SBR aus heutiger Sicht ziemlich gering ist.

Für die langfristigen Abfallprobleme ist von Interesse, daß im HTR die spaltbaren Plutoniumisotope sehr schnell ausgebrannt würden, da kein U-238 vorhanden ist, aus dem sich, wie bei wiederholter Rückführung in den LWR (vgl. Anhang 2 Tab. A 2.1) der spaltbare Anteil durch neu gebildetes Pu-239 regeneriert. Im HTR würde rasch "wertloses" Plutonium mit einem geringen Gehalt an spaltbaren Isotopen entstehen, das in den Abbrandpartikeln nur ein weiteres Mal zum Einsatz gelangen könnte, wobei sich dann ähnlich wie beim U-235 die Frage stellt, ob es mit LWR- oder SBR-Plutonium gemischt werden kann, oder ob die Abbrandpartikel ohne Wiederaufarbeitung als hochaktiver Festabfall endgelagert werden sollen.

3.3.4 SBR mit Thorium-Brutmantel

Die Hochtemperaturreaktoren eignen sich wegen der hohen Austrittstemperaturen des Kühlgases (ca. 950 - 1100°C) in hervorragender Weise zur Prozeßwärmeerzeugung. Man kann deshalb erwarten, daß die Nutzung der Kernenergie zur Prozeßwärmeerzeugung in den 90-er Jahren ähnlich steil ansteigt, wie die Entwicklung im Elektrizitätsbereich in diesem Jahrzehnt /M1/.

Unter der Voraussetzung, daß schnelle Brutreaktoren nur in dem Maße zugebaut werden, wie die Leichtwasserreaktoren den gesamten Plutoniumbedarf für das Erstcore bereitstellen können, ist es nicht mehr nötig, daß der Brutgewinn des SBR zum Brüten von eigenem Bedarf, d.h. zur Verdoppelung der Brüter, herangezogen wird /S7/. Der Brutgewinn könnte in diesem Fall zum Brüten von U-233 für den HTR herangezogen werden. Für eine Konversionsrate von 0.8 des HTR mit reinem U-233/Th-Reaktorkern würde dies eine Brutrate eines gleich-

großen SBR von ca. 1,23 erfordern.

Dies kann mit einem SBR mit einem Plutonium/U-238-Core mit U-238-axialen Blanket und einem radialen Brutmantel aus Thorium erreicht werden. Das Pu/U-238-Core produzierte so viel Plutonium, wie für die Selbstversorgung des SBR notwendig ist, der Brutgewinn erzeugt im radialen Blanket U-233 /F3, W2/. Damit kann der Vorteil einer hohen Konversionsrate des U-233 im HTR voll ausgenutzt werden.

Da dieses Brennstoffzykluskonzept kaum vor dem Jahr 2000 zum Tragen kommen dürfte, sei es hier nur erwähnt. Für den Anfall an radioaktivem Abfall entfällt bei einem reinen U-233 Core das U-236/U-235 Abfall-Urangemisch aus den abgebrannten U-235 Abbrandteilchen, andererseits werden weniger Transurane gebildet.

3.4 Gesamtmengen von Spaltprodukten und Actiniden im hochradioaktiven Abfall in der BRD und Westeuropa

Nach der Übersicht über die Erzeugung von Spaltprodukten und Actiniden durch verschiedene Reaktortypen und Brennstoffvarianten, dargestellt in den vorangegangenen Abschnitten, wurde anschließend die Gesamtproduktion von Actiniden gemäß der Reaktorstrategie von Kapitel 2 berechnet.

Für die Rechnungen wurde konservativ angenommen, daß nach dem gegenwärtigen Brennstoffaufarbeitungskonzept

- nur die Elemente Uran und Plutonium bzw. Thorium und Uran wiedergewonnen werden;
- die gasförmigen Spaltprodukte (Kr, Xe, H-3) sowie 99,9% Jod abgetrennt und als separater Abfall behandelt werden;
- die nicht gasförmigen Spaltprodukte sowie die Actiniden Neptunium, Americium, Curium und Transcuriumelemente sowie Protactinium und alle Zerfallsprodukte quantitativ in den hochaktiven Abfall gehen;
- die Verluste von Uran und Plutonium bzw. Thorium in den hochaktiven Abfallstrom 0,5 % bzw. bei Aufbereitungsverfahren, die sich noch in der Entwicklung befinden (HTR und SBR-Brennstoff) 1 % betragen;
- im Falle des HTR-Brennstoffs auch das Plutonium in den Waste geht.

In den folgenden Diagrammen sind die Ergebnisse für die mittlere und maximale Schätzung für die BRD und Westeuropa dargestellt.

Fig. 3.12 gibt die Gesamtproduktion an Spaltprodukten pro Jahr wieder.

Die jährliche Produktion von Neptunium, Gesamtplutonium, Abfallplutonium (0,5 % aus LWR- und SBR-, 100 % aus HTR-Brennstoff), Americium und Curium ist in Fig. 3.13 bis 3.17 aufgetragen.

Hierbei zeigt ein Vergleich der beiden Brennstoffzyklen, daß durch den HTR nur relativ kleine Plutoniummengen erzeugt werden, aber wenn diese quantitativ dem hochaktiven Abfall zugeschlagen werden, eine größere Plutoniummenge in die hochaktiven Abfälle gelangt, als die Verluste (0,5 %) bei der Wiederaufarbeitung von LWR-Brennstoff in die hochaktiven Abfälle ausmachen.

Eine Zusammenfassung der jährlichen Produktion von Actiniden im hochaktiven Abfall des Uran-Plutonium-Zyklus sowie des Thorium-Uran-Zyklus schließt sich in Fig. 3.18 bis 3.20 an.

Schließlich folgen in Fig. 3.21 die akkumulierten Gesamtmengen von Transuranen im hochaktiven Abfall.

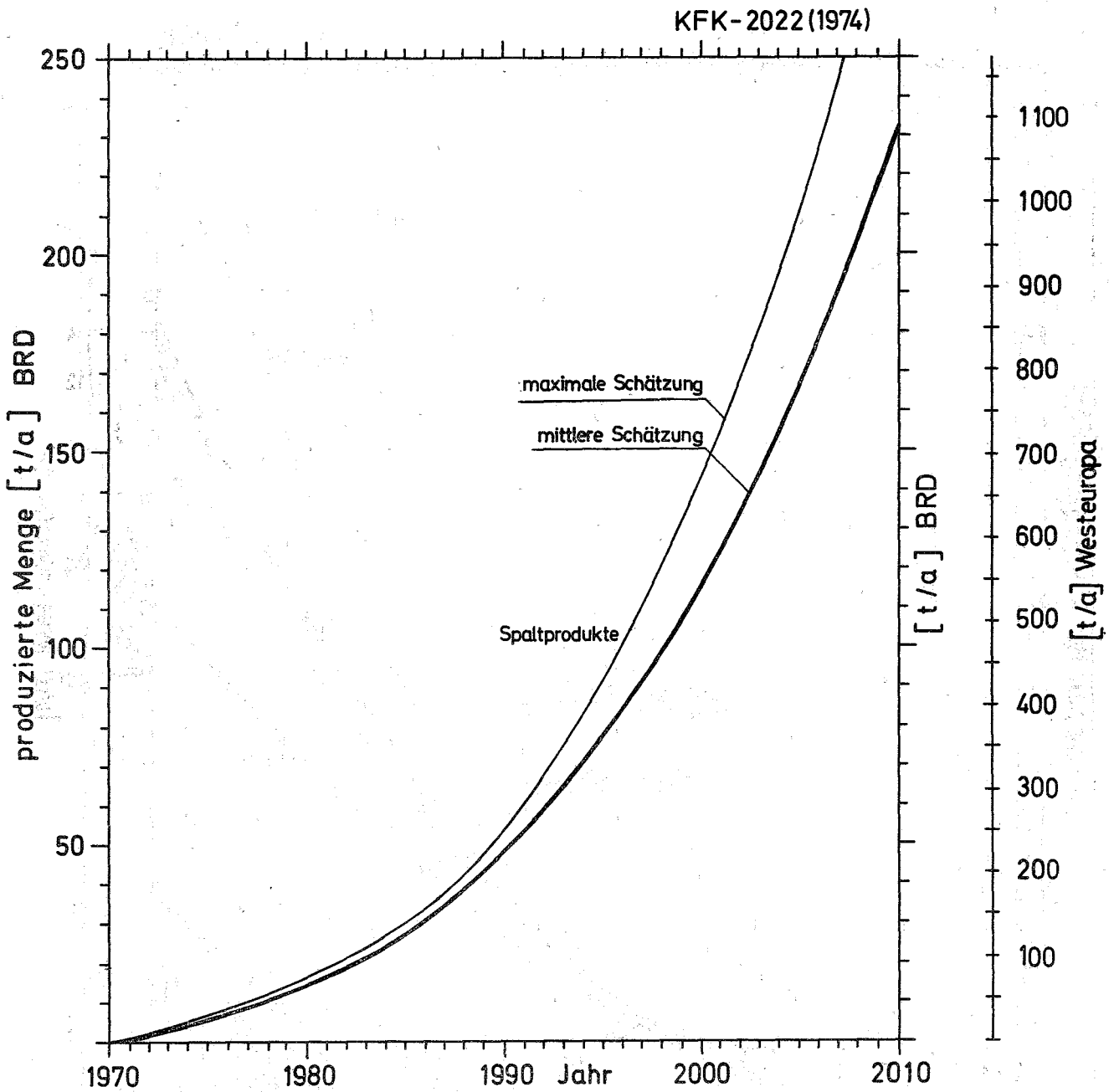


Fig. 3.12 Jährliche Produktion an nicht-gasförmigen Spaltprodukten bei mittlerer und maximaler Schätzung für die BRD und Westeuropa

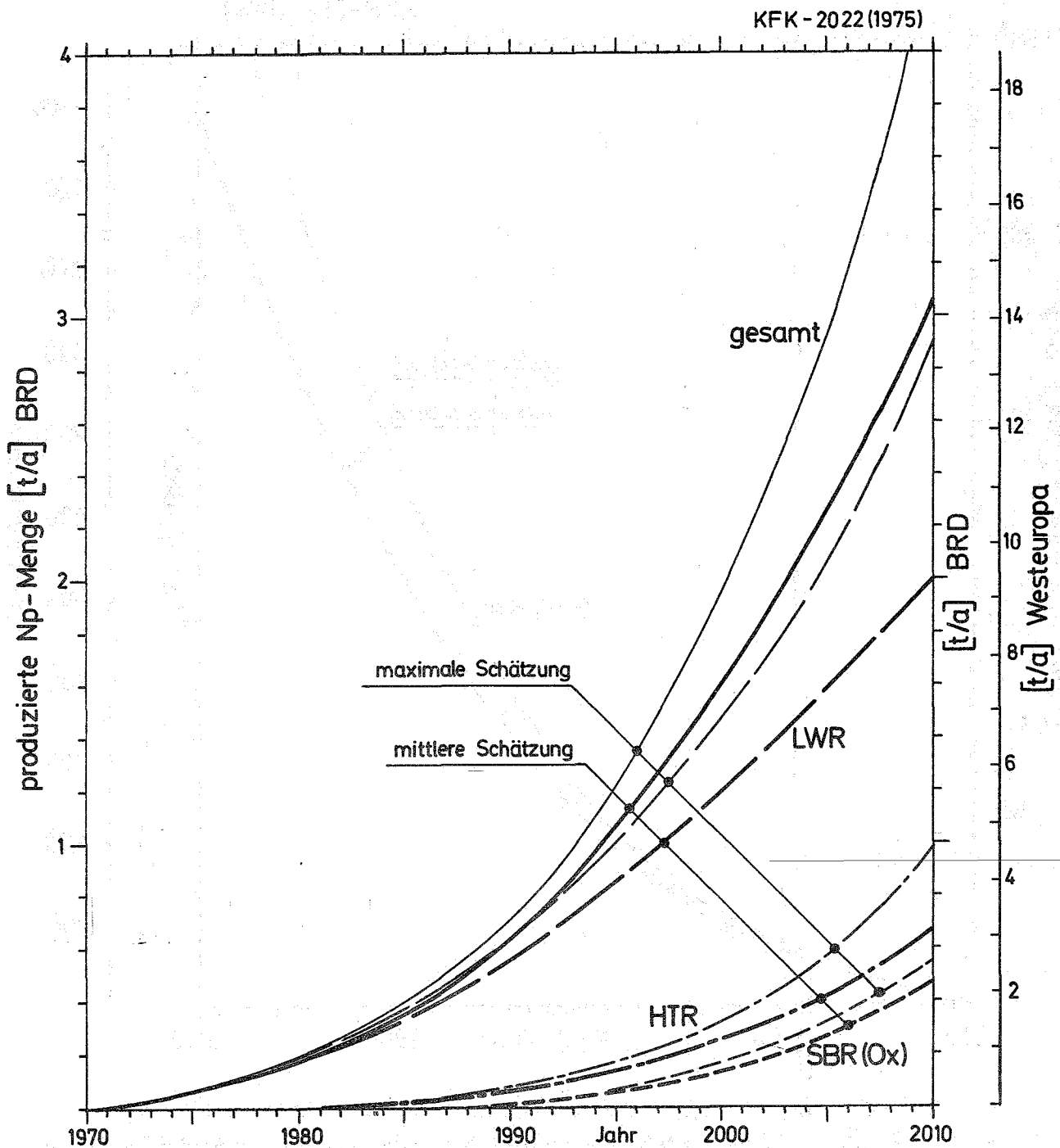


Fig. 3.13 Neptuniumproduktion pro Jahr bei mittlerer und maximaler Schätzung für die BRD und Westeuropa

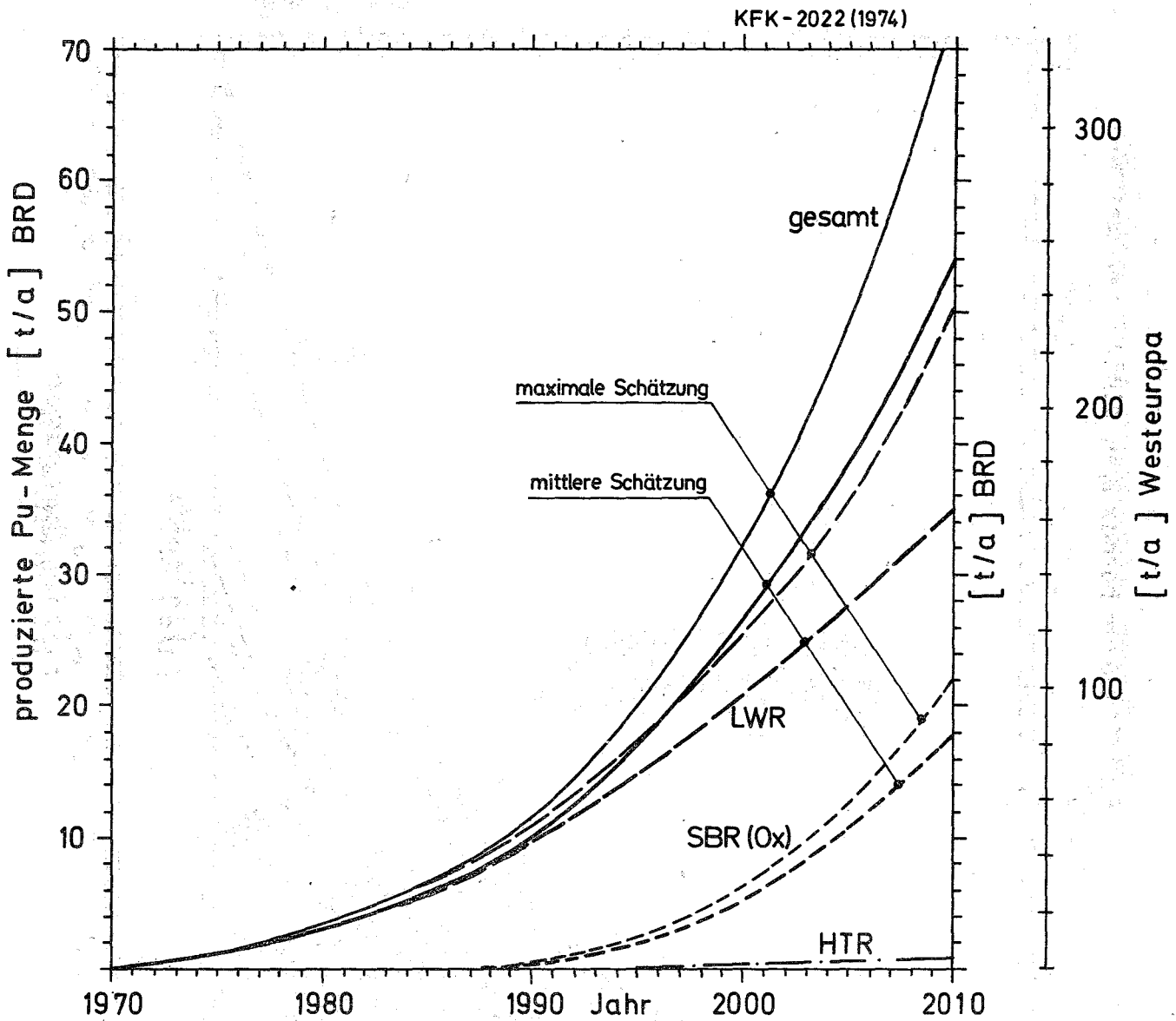


Fig. 3.14 Jährliche Plutoniumproduktion bei mittlerer und maximaler Schätzung für die BRD und Westeuropa

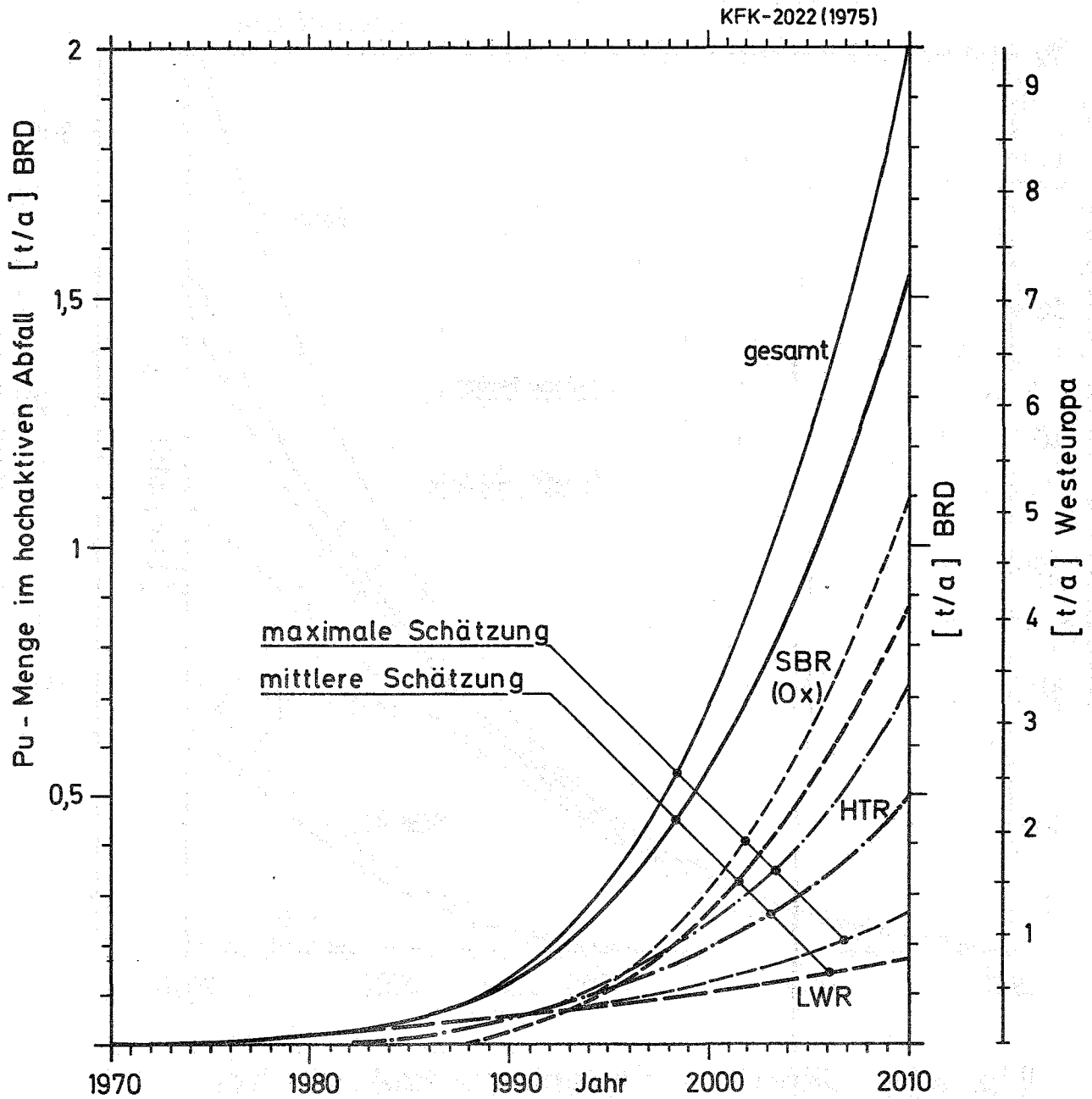


Fig. 3.15 Jährliche Menge Plutonium im hochaktiven Abfall bei mittlerer und maximaler Schätzung für die BRD und Westeuropa
Im Uran-Plutonium-Zyklus 0,5% Pu Verlust, im Thorium - Uran-Zyklus 100% Pu im Waste

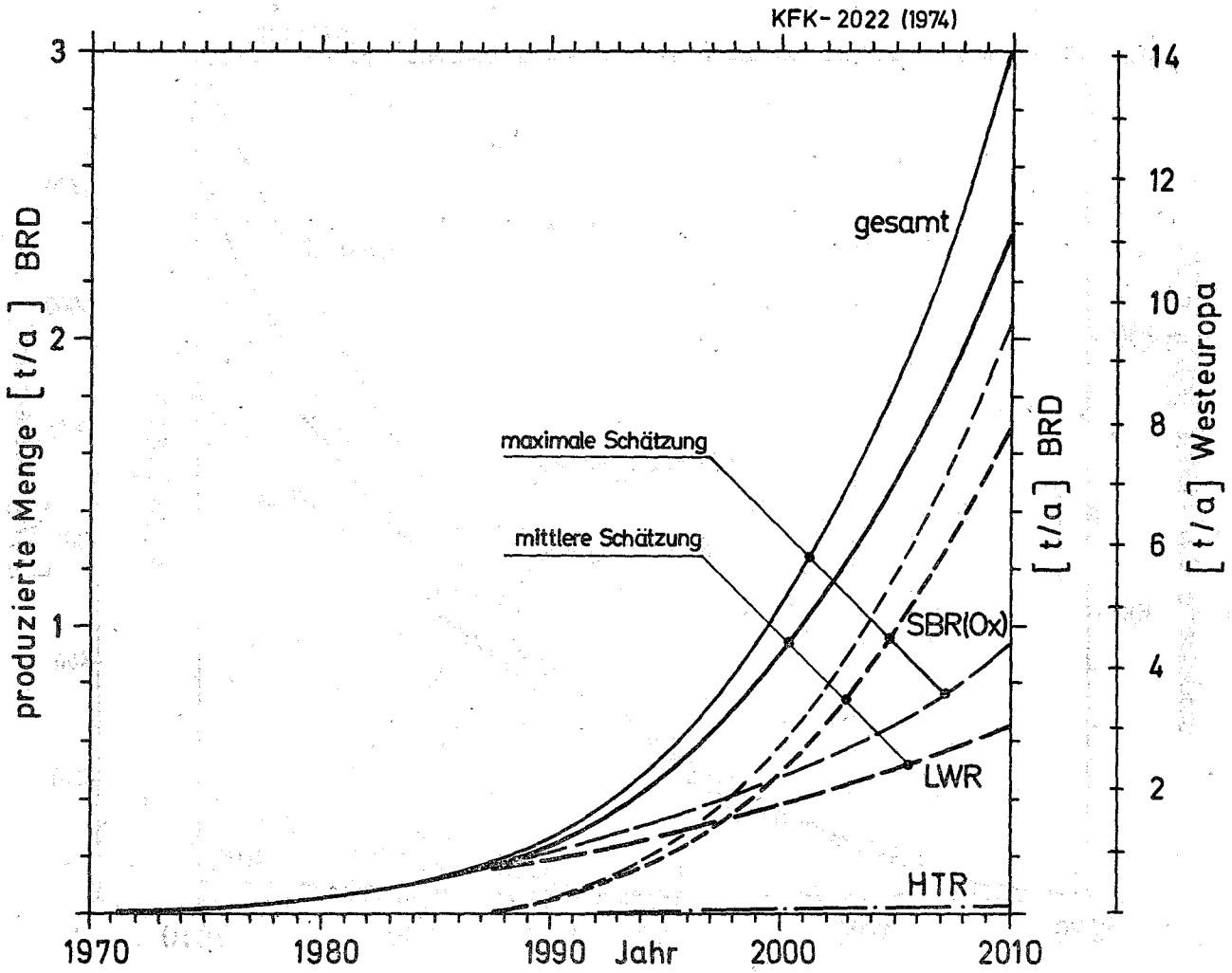


Fig. 3.16 Jährliche Produktion an Americium bei mittlerer und maximaler Schätzung für die BRD und Westeuropa

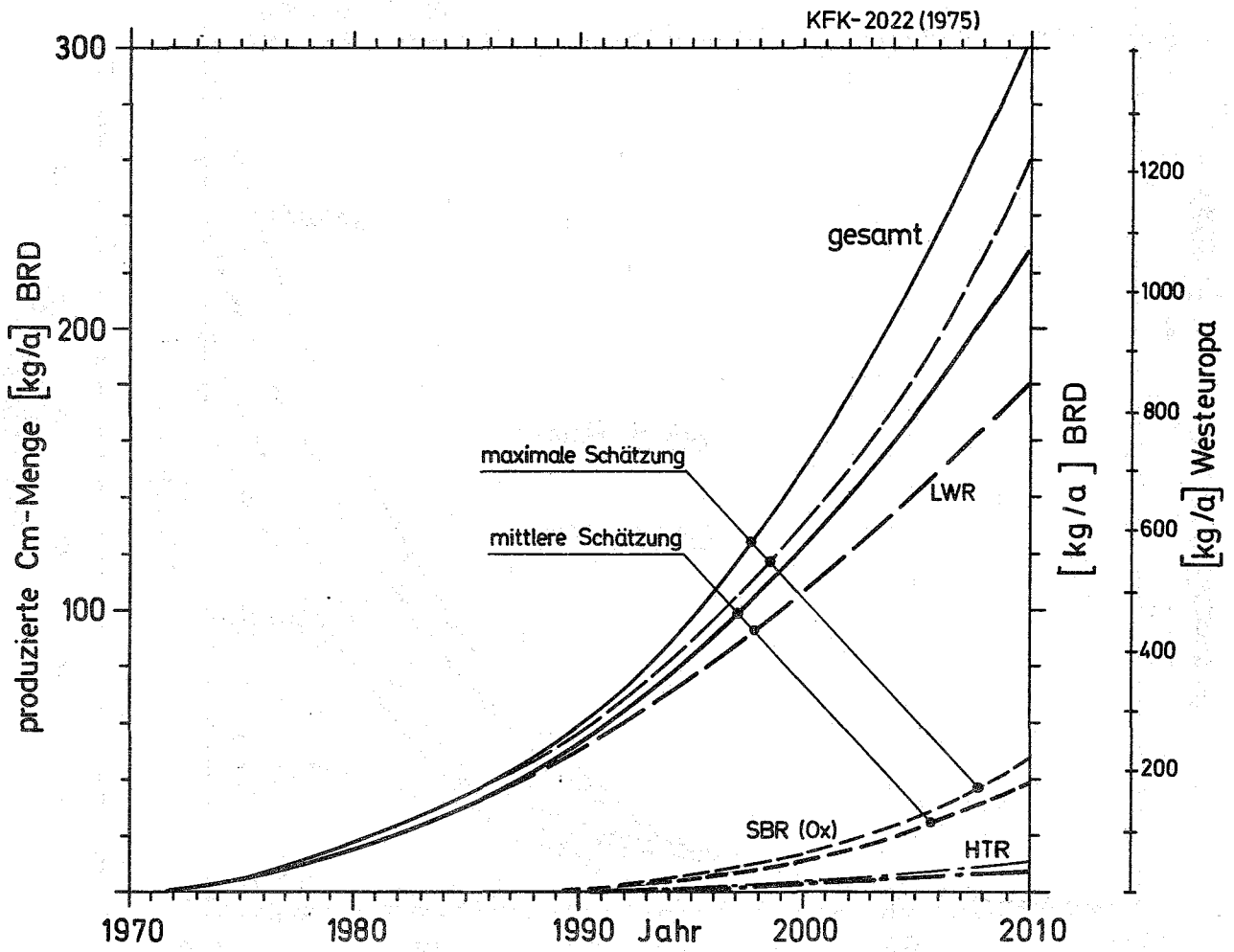


Fig. 3.17 Jährliche Produktion an Curium bei mittlerer und maximaler Schätzung für die BRD und Westeuropa

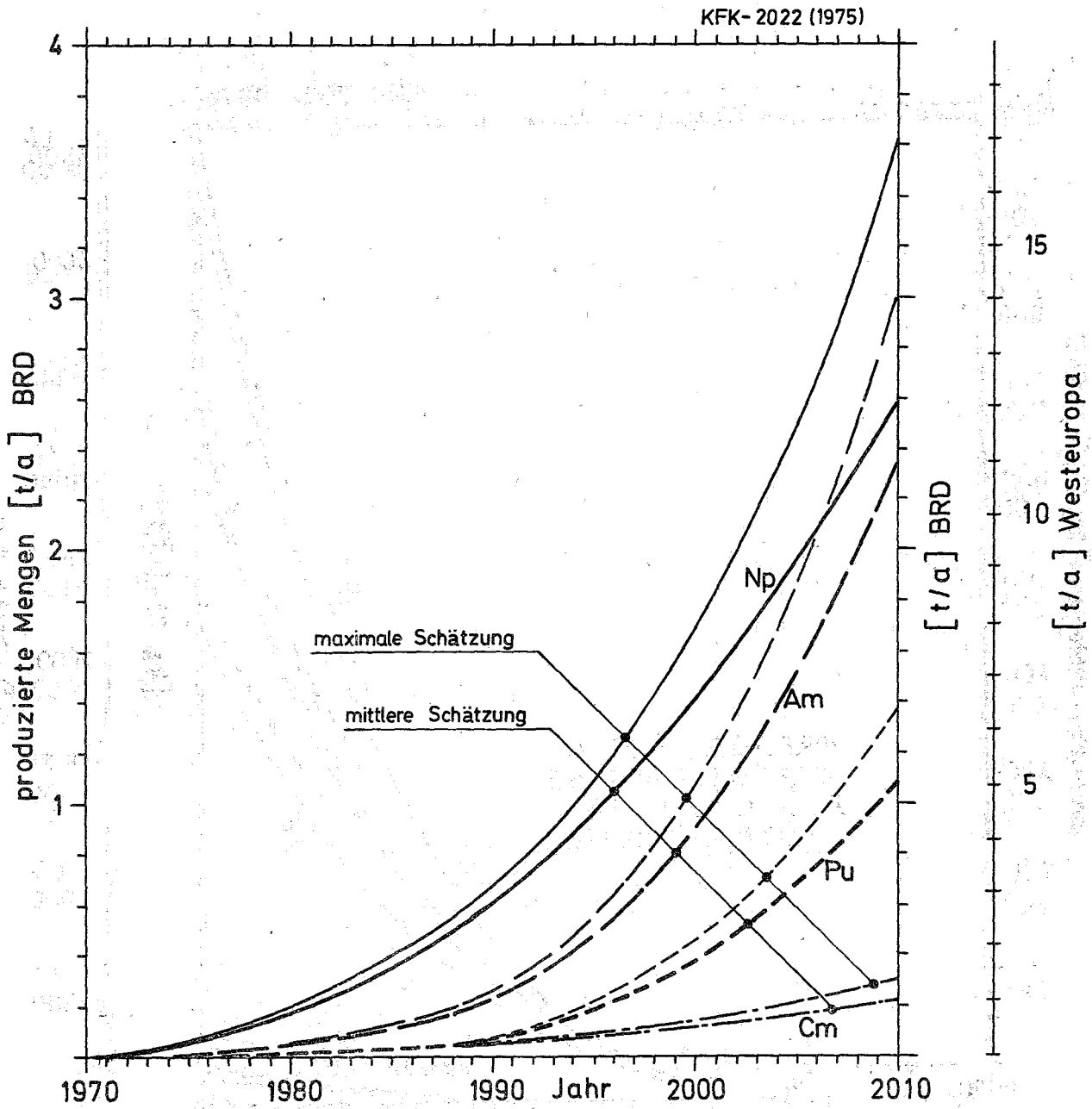


Fig. 3.18 Jährliche Mengen an Neptunium, Plutonium, Americium und Curium im hochaktiven Abfall des Uran-Plutonium-Zyklus bei mittlerer und maximaler Schätzung für die BRD und Westeuropa

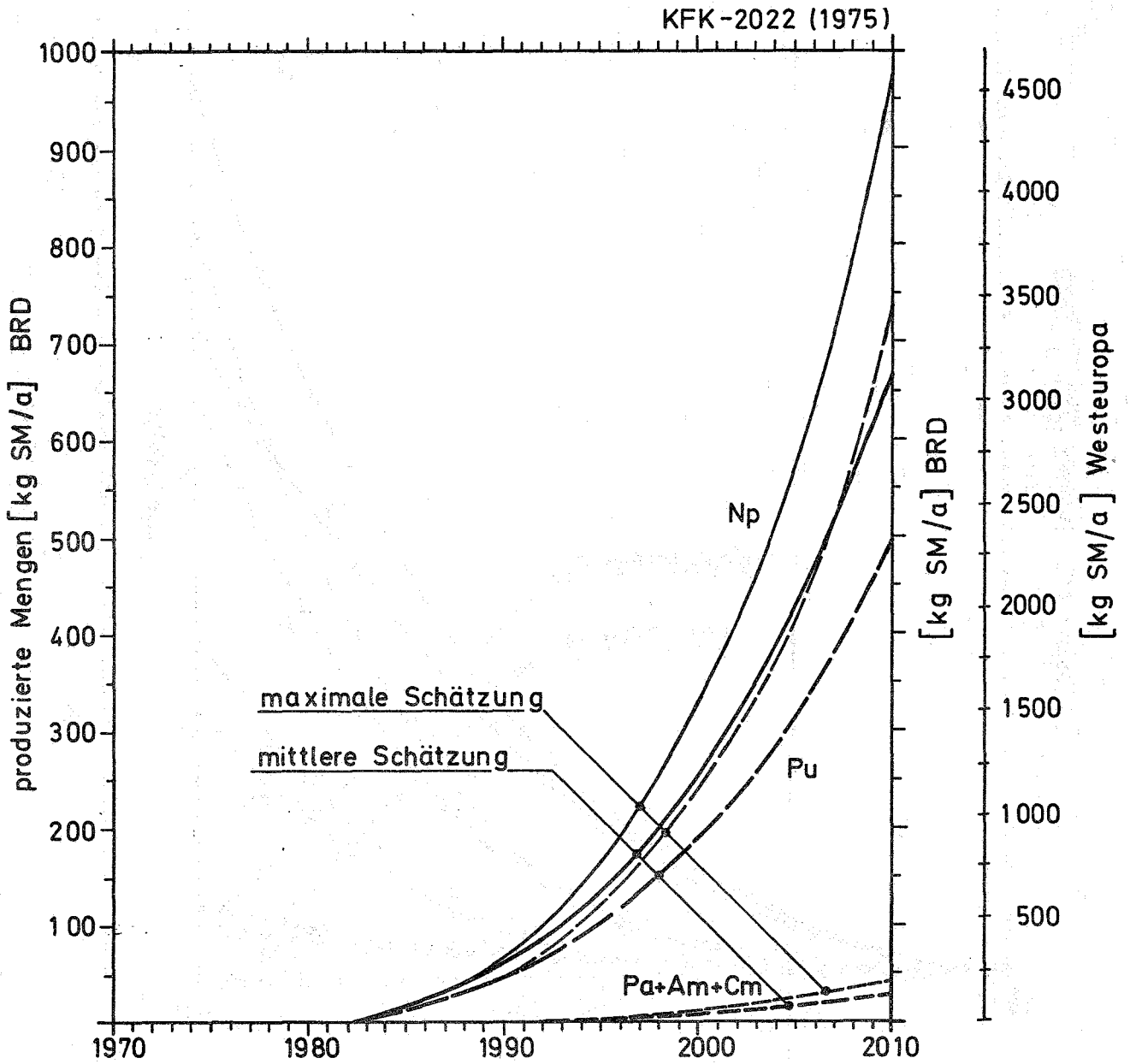


Fig. 3.19 Jährlich produzierte Abfallmengen an Neptunium, Plutonium, Americium, Curium und Protactinium im Thorium-Uran-Zyklus bei mittlerer und maximaler Schätzung

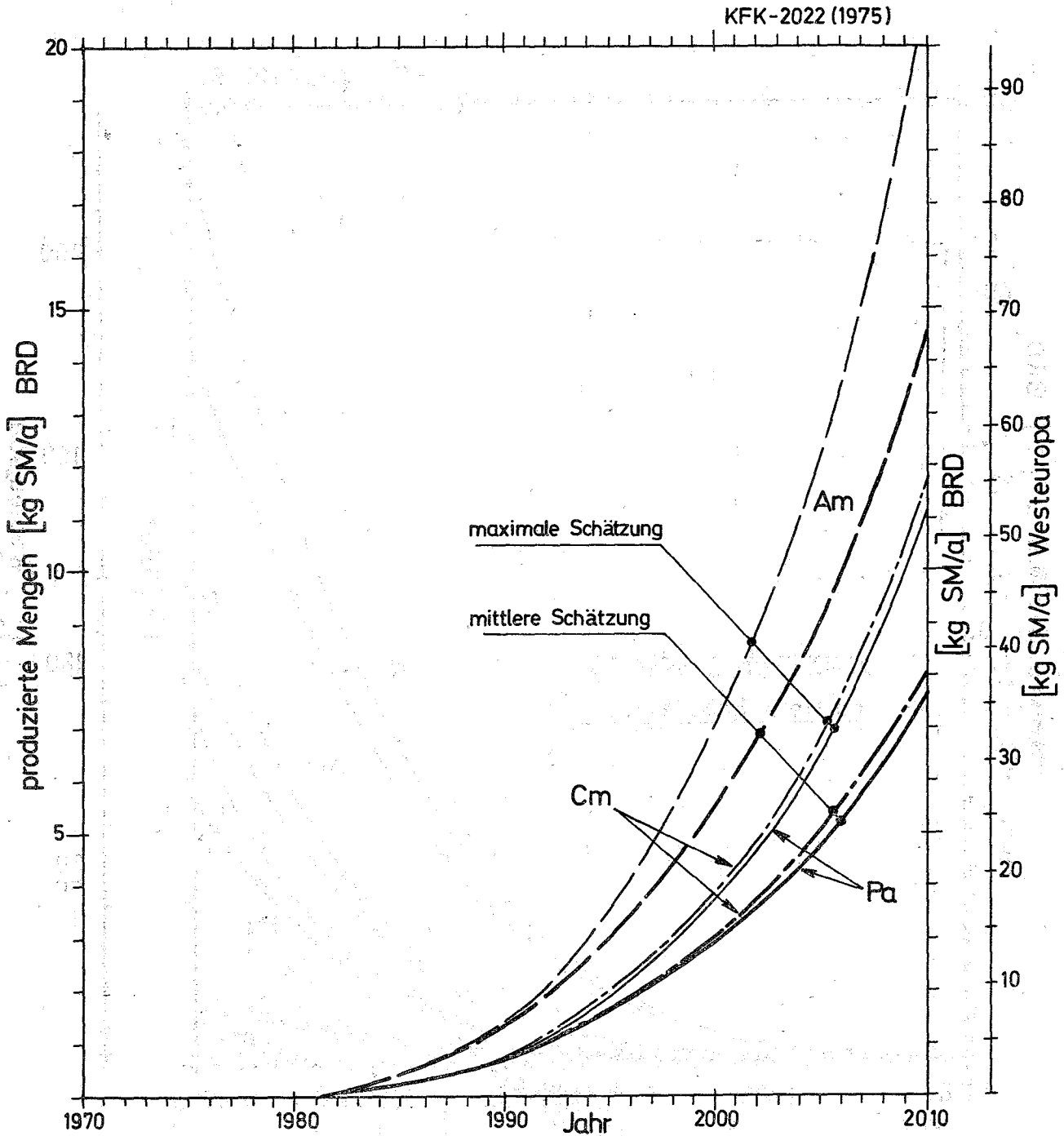


Fig. 3.20 Jährliche Produktion an Protactinium, Americium und Curium im Thorium-Uran-Zyklus bei mittlerer und maximaler Schätzung für die BRD und Westeuropa

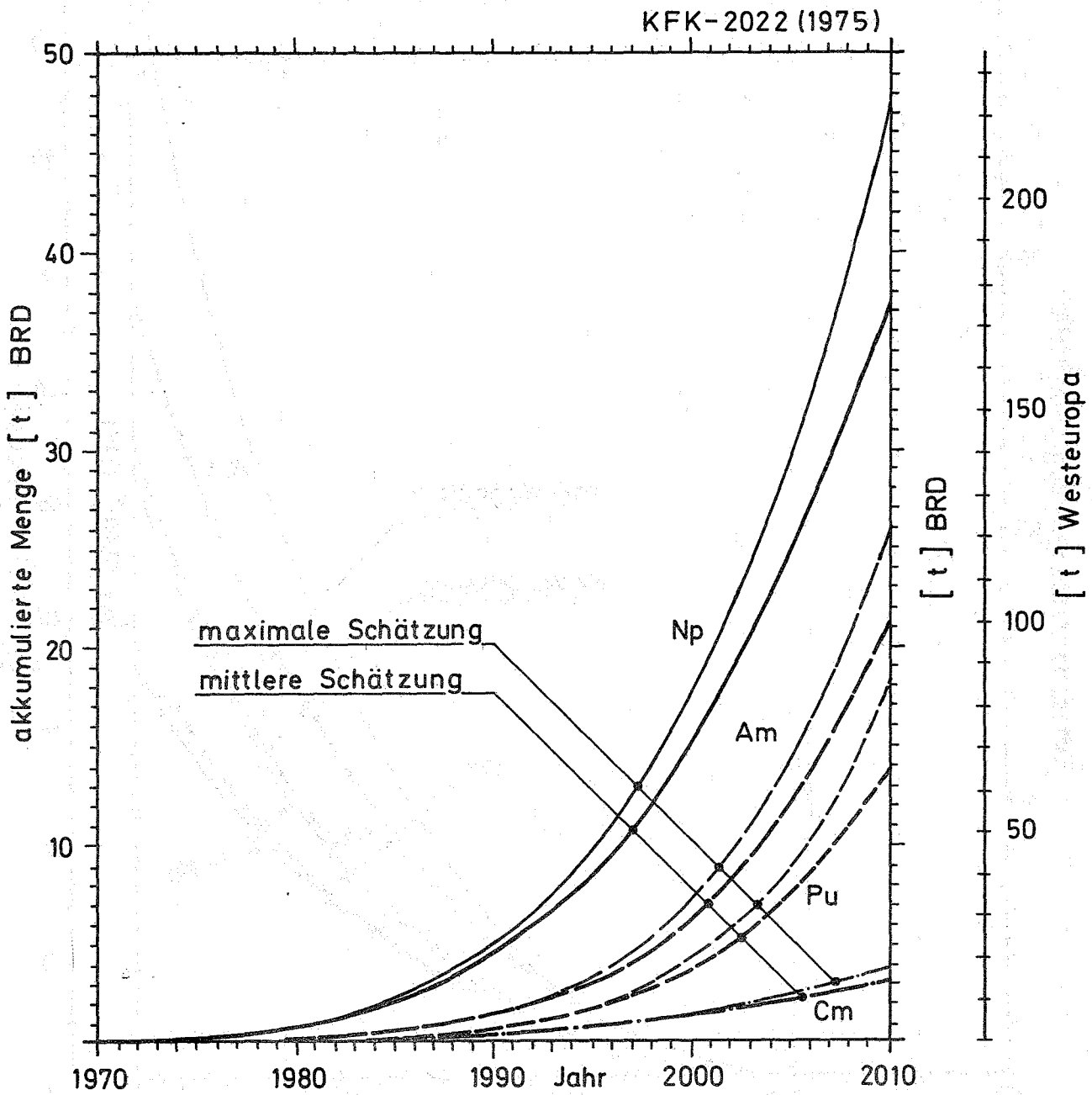


Fig. 3.21 Akkumulierte Mengen Neptunium, Plutonium, Americium und Curium im hochaktivem Abfall bei mittlerer und maximaler Schätzung für die BRD und Westeuropa

3.5 Mittelaktive und α -aktive Abfälle der Brennstoffzyklen

Radioaktive Abfälle entstehen bei allen Stufen der Kernbrennstoffzyklen in stark unterschiedlicher chemischer und physikalischer Form und Aktivitätskonzentration. Von ihren Eigenschaften her werden die radioaktiven Abfälle nachfolgend in einige wichtige Typen unterteilt, wobei zur Vereinfachung ein weitverbreiteter Sprachgebrauch beibehalten werden soll:

- hochaktive Abfälle
- $\alpha\beta\gamma$ -Abfälle
 - Hüll- und Strukturmaterial,
 - sonstige mittelaktive $\alpha\beta\gamma$ -Abfälle
- α -Abfälle
- mittel- und schwachaktive $\beta\gamma$ -Abfälle

In den nachfolgenden Abschnitten werden die Abfalltypen näher spezifiziert und es wird versucht, die in den einzelnen Anlagen der Brennstoffzyklen entstehenden Abfallmengen abzuschätzen.

3.5.1 Klassifizierung der radioaktiven Abfälle

Die verwendeten Bezeichnungen werden so festgelegt, daß die Aktivitätsbereiche mit den von der IAEA in Wien /I1/ vorgeschlagenen Kategorien für flüssige und feste Abfälle möglichst übereinstimmen (Tabelle 3.3 und 3.4).

- Hochaktive Abfälle

Als "hochaktive flüssige Abfälle" werden nur die konzentrierten Raffinatlösungen (HAWC) des ersten Extraktionszyklus der Wiederaufarbeitung bezeichnet. Sie sind dadurch charakterisiert, daß sie

Tabelle 3.3: Klassifikation schwach-, mittel- und hochaktiver flüssiger Abfälle gemäß IAEA-Vorschlag /I1/

Bezeichnung	Kategorie ^{x)}	Aktivität [Ci/m ³]	Abschirmung	Bemerkung
-	1	<10 ⁻⁶	-	
schwachaktiv	2	10 ⁻⁶ bis 10 ⁻³	-	
mittelaktiv	3	10 ⁻³ bis 10 ⁻¹	(+)	
	4	10 ⁻¹ bis 10 ⁴	+	
hochaktiv	5	>10 ⁴	++	Kühlung notwendig

^{x)} Einteilung der flüssigen Abfälle erfolgt nach der Aktivität

Tabelle 3.4: Klassifikation von festen Abfällen (IAEA-Kategorien /I1/ und eigene Ergänzung)

Bezeichnung	Kategorie ^{x)}	Dosisleistung [R/h]	Abschirmung	Bemerkung
schwachaktiv	1	<0.2	-	keine bedeutende α-Aktivität
mittelaktiv (βγ-Abfälle)	2	0.2 bis 2	+	
	3	>2	+	
α-aktiv	4	α-aktiv	(+)	α-Aktivität [Ci/m ³]
mittelaktiv (αβγ-Abfälle)	-	[>0.2 α-aktiv]	++	BE-Hüllmaterial
hochaktiv	-	>20	++	[Abbrandpartikel von HTR-Brennstoff

^{x)} Einteilung der festen Abfälle erfolgt zur meßtechnischen Vereinfachung nach der Dosisleistung an der Oberfläche der Abfallbehälter (Fässer).

- die höchste Aktivität aller radioaktiven Abfälle in einem relativ geringen Volumen besitzen,
- > 99 % der nicht gasförmigen Spaltprodukte sowie bedeutende Mengen Actinidenisotope enthalten,
- auf Grund der starken durchdringenden Strahlung dicke Abschirmung erfordern,
- selbsterhitzend sind und ihre Behälter gekühlt werden müssen.

Die flüssigen hochaktiven Abfälle entsprechen der IAEA-Kategorie 5. Ihre Verfestigungsprodukte werden hier als "verfestigte hochaktive Abfälle" (abgekürzt HLW) bezeichnet.

Als "hochaktive feste Abfälle" werden (analog zur Definition der hochaktiven flüssigen Abfälle) die abgebrannten Feedpartikel des HTR-Brennstoffs eingestuft.

- Mittelaktive $\alpha\beta\gamma$ -Abfälle

Diese unterscheiden sich von den hochaktiven Abfällen durch geringere Wärmeentwicklung, und sie erfordern geringere Abschirmung. Für solche Abfälle, die sowohl bedeutende Mengen α -Aktivität als auch $\beta\gamma$ -Aktivität enthalten, ist nach den IAEA-Vorschlägen keine eigene Kategorie vorgesehen.

◦ Hüll- und Strukturmaterial

bleibt als Rückstand bei der Wiederaufarbeitung nach dem Zersägen und Zerhacken der Brennelemente und Herauslösen des Brennstoffs. Es enthält Neutronenaktivierungsprodukte (von denen langfristig Ni-59 und Ni-63 von Interesse sind) mit relativ hoher Aktivität und kann bis 0,3 % Plutonium enthalten. Hüll- und Strukturmaterialabfälle entwickeln Wärme und erfordern Abschirmung.

o Sonstige mittelaktive $\alpha\beta\gamma$ -Abfälle

entstehen bei der Wiederaufarbeitung (und in geringerem Maße beim Reaktorbetrieb /B11/). Sie enthalten Spaltprodukte in Konzentrationen, daß Fernbedienung und Abschirmung nötig ist.

- α -Abfälle

sind flüssige oder feste Abfälle, die mit langlebigen, sehr toxischen α -Strahlern, insbesondere Plutonium und in geringerem Maße auch mit anderen Actiniden (Np, Am-241, U-233) kontaminiert sind. α -Abfälle entwickeln nur geringe Wärme und benötigen nach geeigneter Verpackung keine Abschirmung.

Feste α -Abfälle bestehen aus einer Vielfalt verschiedener Materialien wie Papier, Stoffe, Holz, Kunststoffe, Gummi, Glas, Keramik, Metalle etc. und enthalten einen hohen brennbaren Anteil (1/2 bis 2/3 des Volumens).

Große Volumina α -Abfälle entstehen bei der Brennstoffpräparation und -refabrikation sowie bei der Wiederaufarbeitung.

Nach dem IAEA-Vorschlag /I1/ werden feste α -Abfälle von vorneherein der Kategorie 4 zugeordnet. Als untere Grenze wird nach amerikanischer Empfehlung /B11,U7/ eine α -Aktivität von 10 nCi/g vorgeschlagen. Diese α -Aktivität entspricht dem oberen Bereich natürlicher Radiumkonzentrationen in der Erde.

- Mittel- und schwachaktive $\beta\gamma$ -Abfälle

werden hier die verschiedensten flüssigen und festen Abfälle bezeichnet, die weniger als 10 μ Ci/kg langlebige α -Strahler enthalten, und beim Betrieb von Reaktoren und anderen Anlagen der Brennstoffkreisläufe sowie beim sonstigen Umgang mit radioaktiven Isotopen entstehen.

Zu den mittel- und schwachaktiven $\beta\gamma$ -Abfällen gehören

- die Konzentrate, Schlämme etc., die bei der Dekontamination von Prozeßströmen (beispielsweise in Kernkraftwerken oder Wiederaufarbeitungsanlagen) als Waste entstehen;
- Tritium (Halbwertszeit 12,3 Jahre), das in Form von sehr verdünntem tritiiertem Wasser beim Betrieb von LWR und in erheblich größerer Menge bei der Wiederaufarbeitung anfällt;
- das Edelgas Krypton-85 (Halbwertszeit 10,8 Jahre), das in geringer Menge beim Betrieb von Reaktoren aus defekten Brennelementen, in der Hauptsache jedoch beim Zerhacken der Brennelemente und Auflösen des Brennstoffs in der Wiederaufarbeitungsanlage freigesetzt wird;
- Kohlenstoff-14 (Halbwertszeit 5736 Jahre), der in geringer Menge als Aktivierungsprodukt in der Graphitmatrix der gasgekühlten Hochtemperaturreaktoren gebildet wird und in sehr verdünnter Aktivitätskonzentration als $^{14}\text{CO}_2$ beim Abbrennen des Graphits im Head-end der Wiederaufarbeitungsanlagen (des Thorium-Uran-Zyklus) anfällt;
- Jod-129 (Halbwertszeit $16 \cdot 10^6$ Jahre), das als Spaltprodukt durch Verflüchtigung entweder beim Auflösen des Brennstoffs aus dem Abgas oder spätestens bei der Verfestigung der flüssigen hochaktiven Abfälle und Einschmelzen in Gläser oder Keramik abgetrennt wird;
- sonstige feste Abfälle, die in großen Volumina in allen Anlagen der Brennstoffzyklen entstehen und für Handhabung und Transport keine Abschirmung benötigen.

Die $\beta\gamma$ -Abfälle, mit Ausnahme des Jod-129, deren bestimmende Radionuklide nur relativ kurze bis mittlere Halbwertszeiten von < 30 Jahren besitzen, erfordern eine sichere Lagerung für einige Jahrhunderte bis zum Zerfall der radioaktiven Isotope. Sie sind deshalb nur teilweise Gegenstand der vorliegenden Arbeit.

3.5.2 Abfälle der Brennelementfertigung

Bei der Brennelementherstellung entstehen flüssige und feste Abfälle, die mit angereichertem Uran, mit Plutonium und Americium oder mit U-233 kontaminiert sind.

In dieser Arbeit interessieren besonders die α -Abfälle aus der Herstellung von Pu- oder U-233-haltigem Brennstoff. Bei den bisherigen relativ kleinen Durchsätzen lagen die Plutoniumverluste nach Schätzungen des Autors in der Größenordnung von einigen Prozent und es wird erwartet, daß sie mit steigenden Durchsätzen zurückgehen und sich bei 1 % einpendeln.

Die Angaben von van TUYL et al. /T1/, nach denen ein linearer Rückgang der Plutoniumverluste bis auf 0,25 % im Jahre 1990 angenommen wird, erscheinen zu optimistisch. In einem neueren Bericht rechnen BLOMEKE, KEE und NICHOLS /B8/ für große zukünftige Anlagen mit einem Pu-Verlust von 0,75 % für Brennstoffpräparation und -fabrikation.

Die in den α -Abfällen der Brennelementrefabrikation zu erwartenden Plutoniumverluste sind in Fig. 3.22 eingetragen, wobei für die Berechnung linear fallende Pu-Verluste von 3 % 1970 auf 1 % 1990 zugrunde gelegt wurden.

Bei der Brennelementfertigung wurde ein Anfall von nicht kompaktierten α -Abfällen von ca. 750 - 850 m³ pro Tonne Pu (oder U-233) geschätzt /B8,T1/. Das wären umgerechnet für LWR-Brennstoff mit 10 kg Pu/t SM etwa

7 - 9 m³ α -Abfälle/t SM.

Nach Angaben der USAEC /U6/ ist mit folgenden Mengen zu rechnen:

LWR mit Pu-Rezyklierung	11,6 m ³	α-Abfälle/t SM
SBR	9,6 m ³	α-Abfälle/t SM

Americium-241

LWR-Plutonium enthält 11,5 bis 14 % Pu-241, das mit einer Halbwertszeit von 14,9 Jahren in Americium-241 zerfällt /N1/. Wird ein Gehalt von 2000 ppm Americium überschritten /K8/, so sind für die Bearbeitung des Plutoniums zusätzliche Abschirmungen der γ -Strahlung des Am-241 oder eine chemische Abtrennung des Americiums nötig. Bei 12 % Pu-241 ist diese Americiumkonzentration nach ca. 4 Monaten nachgebildet. Eine kleinere Menge des abgetrennten (isotopenreinen) Am-241 kann einer Nutzung zugeführt, die Hauptmenge muß als Abfall angesehen werden.

3.5.3 Abfälle von Reaktoren

Während des Betriebs eines Kernkraftwerks entstehen gasförmige, flüssige und feste radioaktive Abfälle. Gasförmige Abfälle werden nach einer gewissen Verzögerungszeit (Abklingzeit) in hoher Verdünnung an die Umgebung abgegeben /H14/.

Aus flüssigen, schwachaktiven (und mittelaktiven) $\beta\gamma$ -Abfällen werden die radioaktiven Stoffe durch Ionenaustausch oder Verdampfung konzentriert und die Konzentrate entwässert und verfestigt. Hinzu kommen getrocknete Schlammkonzentrate aus Filtern, verbrauchte Ionenaustauscher etc.. Sie werden ebenso wie die überwiegend kompaktierten festen $\beta\gamma$ -Abfälle (z.B. Filter, kontaminierte Teile, sowie allgemeine feste Abfälle aus dem Betrieb) in 200 l Fässern mit Zement, Bitumen oder Kunstharz verfestigt.

Der jährliche Anfall an $\beta\gamma$ -Abfällen aus dem Betrieb von 1000 MW_e Siedewasser- und Druckwasser-Kernkraftwerken wird nachfolgend auf Literaturangaben /U6,B8,H14/ bezogen. Für schnelle Brutreaktoren und Hochtemperaturreaktoren liegen nur Schätzungen vor /B8,U6/:

	m ³ $\beta\gamma$ -Abfälle	Anzahl 200 l Fässer
SWR	120 - 240	600 - 1200
DWR	80 - 160	400 - 800
SBR	28 - 56	135 - 270
HTR	112	(560)

Über den Gehalt an α -Strahlern (Plutonium), die aus defekten Brennelementen über das Reinigungssystem des Primärkreislaufs in diese Abfälle gelangen könnten, liegen dem Autor keine Angaben vor. Er dürfte jedoch bei LWR in Anbetracht der großen Abfallvolumina unter 10 μ Ci/kg liegen und damit vernachlässigbar sein.

3.5.4 Abfälle der Wiederaufarbeitung

Da im ersten Extraktionszyklus der Wiederaufarbeitung bei der Abtrennung der Spaltprodukte von Uran und Plutonium gleichzeitig die übrigen Actiniden in den hochaktiven Abfall laufen, reduziert sich für die mittel- und α -aktiven Abfälle das Transuranproblem auf

- die Verluste von Plutonium,
- das Americium-241, das sich aus dem Zerfall des Pu-241-Anteils nachbildet,
- einen Teil des Neptuniums, das eventuell je nach dem chemischen Verfahrensschema zusammen mit dem Uran und Plutonium extrahiert wurde.

Eine Abschätzung der Pu-Verluste in einer großen kommerziellen Wiederaufarbeitungsanlage stößt auf die Schwierigkeit, daß die Prototyp - Anlagen, die bisher in Betrieb waren, noch relativ große Gesamtverluste aufwiesen, die im Bereich mehrerer Prozent des Durchsatzes lagen. Für zukünftige Großanlagen kann jedoch eine verbesserte Technologie vorausgesetzt werden (siehe Abschnitt 4.1.3.2).

In Tabelle 3.5 werden daher für den Zeitraum nach 1990 die Gesamtverluste der Wiederaufarbeitung auf 1 % Plutonium geschätzt. Für den Zeitraum von 1970 bis 1990 wurde für die Kurven in Fig. 3.22 ein linearer Rückgang der Pu-Verluste in den mittelaktiven Abfällen von 2 % auf 0,4 % postuliert.

In Einklang mit den Rechnungen zum hochaktiven Abfall wurde auch für den mittelaktiven Abfall angenommen, daß das Neptunium durch Rückführung der Raffinatströme (Verdampferkonzentrate) praktisch vollständig in den hochaktiven Abfallstrom gelenkt wird, bzw. die Mengen im mittelaktiven Abfall gegenüber dem Plutoniumgehalt unbedeutend sind.

In Tabelle 3.5 sind die verschiedenen radioaktiven Abfälle der Wiederaufarbeitung von LWR-Brennstoff nach Art der Entstehung oder der Behandlung und die Höhe der Plutoniumverluste in diesen Abfällen zusammengefaßt /T1/. Die "wahrscheinlichen Mittelwerte" sind als Schätzungen für nahezu volle Auslastung größerer Anlagen zu verstehen.

Tabelle 3.5: Geschätzte Plutoniumverluste in den wichtigsten Abfallströmen der Wiederaufarbeitung (Zielvorstellung für ≥ 1990)

Abfallart	% vom Plutoniumdurchsatz	
	Bereich	wahrscheinl. Mittelwert
hochaktiver Abfall	0.2 - 1.0	0.5
Hüll- und Strukturmaterial einschl. Klärrückstände	0.02 - 0.2	0.1
salzarme $\alpha\beta\gamma$ -Abfälle	0.03 - 0.3	0.1
salzhaltige $\alpha\beta\gamma$ -Abfälle	0.01 - 0.3	0.2
allgemeine feste α -Abfälle	0.001- 0.3	0.1
Apparate und Teile		0.01
schwachaktiver Abfall	Spuren	Spuren

3.5.5 Zusammenfassung

In Tabelle 3.6 wurden Schätzungen nach Literaturangaben über die anfallenden Mengen radioaktiver Abfälle beim Durchlaufen der äußeren Brennstoffzyklusanlagen bezogen auf den jährlichen Betrieb von 1000 MW_e Kernkraftwerken zusammengestellt. Die Literaturdaten weichen zum Teil stark voneinander ab und es finden sich nur selten Angaben, wie die Werte zustande kamen.

Um wenigstens die langfristigen Wasteprobleme für den Brennstoffzyklus der LWR grob abschätzen zu können, wurden die in den vorangegangenen Abschnitten angenommenen Plutoniumverluste in die $\alpha\beta\gamma$ - und α -Abfallströme entsprechend der Reaktorstrategierechnung behandelt und in Fig. 3.22 dargestellt.

Tabelle 3.6: Mengen fester radioaktiver Abfälle im Brennstoffkreislauf von 1000 MW_e Reaktoren (nach Literaturangaben)

KFK-2022 (1975)

	LWR	SBR	HTR	ref.
REAKTOR				
1. mittel- und schwachaktive $\beta\gamma$ -Abfälle	56 - 112	28 - 56		} /U6/ /B8/
[Fässer/a]	270 - 540	135 - 270		
[m ³ /a]	112	56	112	
WIEDERAUFARBEITUNG				
2. verfestigte hochaktive Abfälle	2,5	2,0		/U6/
[m ³ Glas/a]	1,7 - 2,4	2,0	1,3	/d.A./
3. Hüll- und Strukturmaterial	1,7 ^{a)}	5,5 ^{a)}		} /U6/ /B17/ /d.A./
[t/a]	7,6	30		
[m ³ /a]	5,7	64 - 72		
[t/a]	7,4	23 - 26		
[t/a]	10,8	16,2		
4. Sonstige $\alpha\beta\gamma$ -Abfälle	123 ^{b)}	410 - 540	61 ^{b)}	/B8/
5. α -Abfälle	50 ^{b)}	190	25 ^{b)}	/B8/
6. $\beta\gamma$ -Abfälle	200	700	100	/B8/
Typen 4 + 5 + 6 zusammen	17 - 112 ^{b)}	56 - 336		} /U6/
[Fässer/a]	80 - 540	270 - 1600		
BRENNELEMENT-REFABRIKATION				
7. α -Abfälle	336 ^{b)}	224		} /U6/ /B8/
[Fässer/a]	1500	1000		
[m ³ /a]	370 ^{b)}	1400	184 ^{b)}	
8. $\beta\gamma$ -Abfälle	(?) 1480 ^{c)}	(?) 4700 - 5580 ^{c)}	(?) 743 ^{c)}	/B8/

a) kompaktiert (auf 70 % theoretische Dichte)

b) Pu bzw. U-233 Rezyklierung angenommen

c) ohne Kompaktierung und ohne Veraschung des brennbaren Anteils

/d.A./ = diese Arbeit

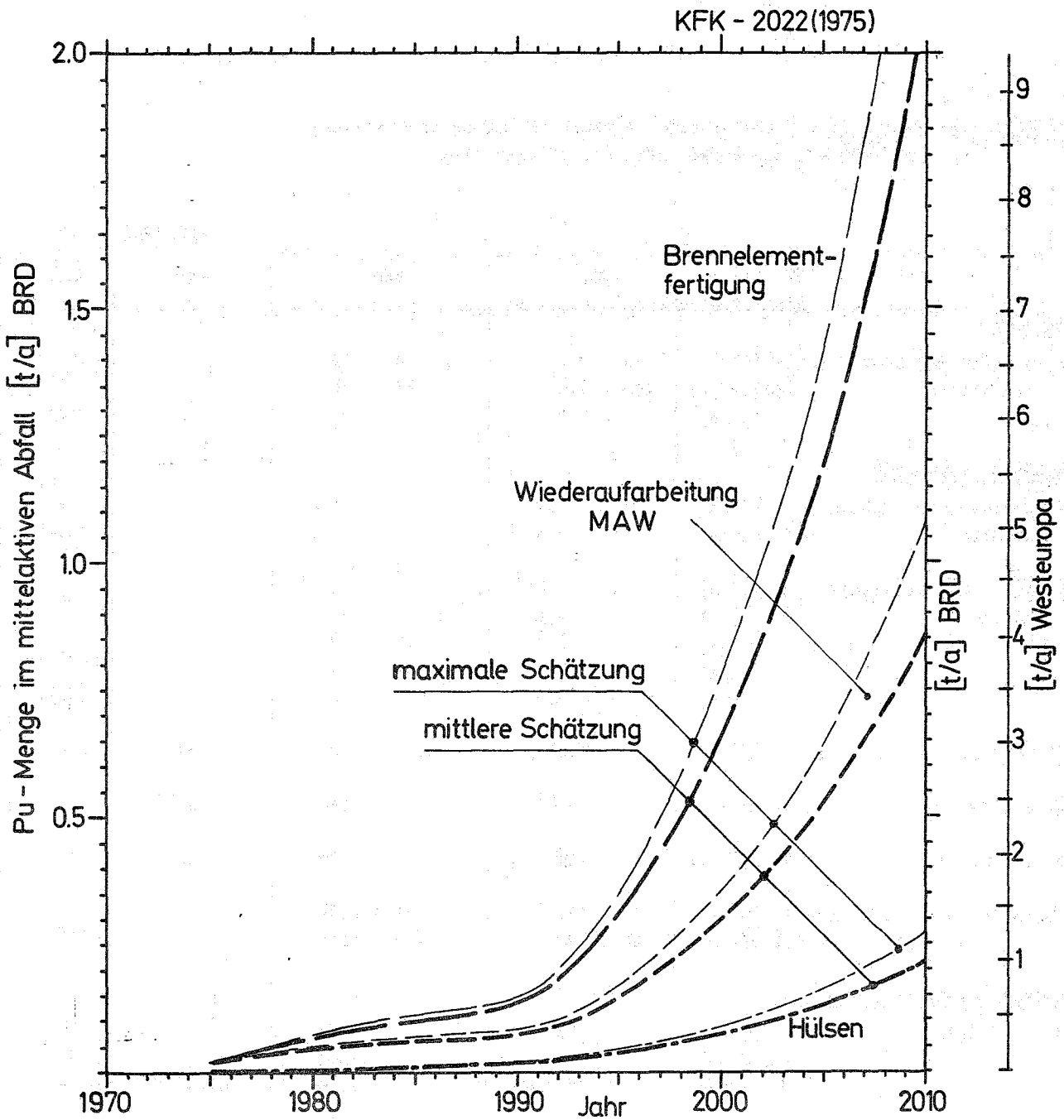


Fig. 3.22 Jährliche Menge Plutonium im mittelaktiven Abfall bei mittlerer und maximaler Schätzung für die BRD und Westeuropa
Brennelement-Refabrikation : 1.0% Pu-Verlust \geq 1990 (3% 1970)
Wiederaufarbeitung MAW 0.4% Pu-Verlust \geq 1990 (2% 1970)
Hülsenabschnitte 0.1% Pu-Verlust

4. Langlebige Spaltprodukte und Actiniden in den Abfallströmen der Wiederaufarbeitung von Kernbrennstoffen

Ziel der Wiederaufarbeitung abgebrannter Brennelemente ist

- die Abtrennung der Spaltprodukte (und einiger Actiniden) und ihre nachfolgende Überführung in ein verfestigtes Produkt, das für eine sichere Endlagerung über einen Zeitraum $>10^6$ Jahre geeignet ist;
- die Rückgewinnung von unverbrauchtem Uran (bzw. Thorium) und im Reaktor erzeugten Plutoniums (bzw. Uran-233).

Die Bemühungen gehen dahin, Prozeß- und Abfallströme weitgehend frei von inaktiven Chemikalien zu halten, um die Konzentrate möglichst salzfrei zu erhalten. Damit soll einerseits eine Rückführung plutoniumhaltiger Ströme ermöglicht, andererseits ein minimales Volumen mittel- und schwachaktiver Abfälle erreicht werden.

4.1 Wiederaufarbeitung für LWR-Brennstoff

Nach dem Auflösen des bestrahlten Brennstoffs findet im wesentlichen eine Auftrennung in 3 Prozeßströme statt: Spaltprodukte, Uran und Plutonium.

Radioaktive Abfälle fallen hierbei bei allen Prozeßschritten an, im wesentlichen

- radioaktive Abgase sowie feste Abfälle beim Zerlegen und Zerhacken der Brennelemente als Rückstand nach dem Auflösen des Brennstoffs;

- Rückstände beim Klären der Brennstofflösung durch Filter oder Zentrifuge;
- eine hochradioaktive Spaltproduktlösung als wäßriges Raffinat des 1. Extraktionszyklus;
- Abfälle bei den nachfolgenden Extraktionszyklen zur weiteren Reinigung des Uran- und Plutoniumstromes;
- Abfälle bei den Lösungsmittelwäschen;
- verbrauchtes organisches Lösungs- und Verdünnungsmittel;
- flüssige Abfälle aus Dekontaminations-, Instandhaltungs- und Reparaturarbeiten;
- feste brennbare und nicht brennbare radioaktive Abfälle (einschließlich unbrauchbarer Apparateile) aus der gesamten Anlage.

4.1.1 Brennelementempfang

Die bestrahlten Brennelemente, die von den Reaktoren angeliefert werden, entwickeln eine hohe Nachwärmeleistung und starke Strahlung und werden deshalb beim Brennelementeingang der Wiederaufbereitungsanlage in ein Wasserbecken gestellt. Bei der Dekontamination, d.h. beim Spülen der Transportbehälter entsteht schwach radioaktives Wasser. Im Wasser der Lagerbecken finden sich ebenfalls kleinere Mengen Spaltprodukte und radioaktive Korrosionsprodukte. Das Wasser wird durch Filtration und Ionenaustausch gereinigt.

Das Ionenaustauscherharz wird mehrmals im Jahr regeneriert und die dabei anfallenden Regenerierlösungen den mittelaktiven Abfalllösungen zugeschlagen. Die jährlich anfallenden Mengen Regenerierlösungen liegen bei der Wiederaufbereitungsanlage

Karlsruhe (WAK) bei 30 - 40 m³/a und werden vom Verfasser für eine große Wiederaufarbeitungsanlage auf 600 bis 1200 m³ pro Jahr geschätzt. Die hier an den mittelaktiven Abfall abgegebene Menge Transuranelemente ist unbekannt, wahrscheinlich sehr klein.

Das Ionenaustauscherharz muß von Zeit zu Zeit ausgewechselt werden /T1/, wobei für die jährlich anfallende Menge bis zu 5,6 m³ im Falle großer Wasserbecken angegeben wurde. Der Plutoniumgehalt ist unbekannt und wird als vernachlässigbar angesehen /T1/.

4.1.2 Chop-leach head-end

Dem Wiederaufarbeitungsprozeß muß zum Aufschluß des Hüllmaterials ein chemisches oder mechanisches Aufschlußverfahren vorangestellt werden.

Ein selektives Auflösen der Brennelementhüllen ("chemical decladding", das z.B. bei der EUROCHEMIC praktiziert wurde) führt zu großen Mengen flüssiger $\alpha\beta\gamma$ -Abfälle von hohem Salzgehalt, die einen entsprechenden Aufwand für die flüssige Lagerung und spätere Verfestigung erfordern. Zusätzlich zeigte die Betriebserfahrung der EUROCHEMIC, daß beim Lösen der Hüllen ca. 1 - 2 % des Brennstoffs gelöst wurden und somit auch 1 - 2 % der Actiniden in diesen Abfall gingen.

Daher soll hier nur das für eine große Wiederaufarbeitungsanlage infrage kommende chop-leach-Verfahren diskutiert werden. Dabei werden Strukturteile wie Endstücke der Brennelementbündel abgesägt und die Brennstäbe in 3 - 5 cm lange Stücke zerhackt (chopping). Der Kernbrennstoff wird mit Salpetersäure ausgelaugt und die Hüllmaterialabschnitte fallen als ungelöster Rückstand in fester Form an.

Sowohl beim Zerhacken der Brennstäbe als auch beim Auslaugen der Hülsevenabschnitte im Auflöser werden gasförmige und leichtflüchtige Spaltprodukte (Tritium, Kr-85, J-129/131) und Aerosole von an sich nicht flüchtigen Spaltprodukten und Actiniden ins Abgas freigesetzt. Ihre Rückhaltung erfolgt im Abgasreinigungssystem.

Von den verschiedenen nicht flüchtigen radioaktiven Abfällen, die im Head-end entstehen, seien hier insbesondere diejenigen diskutiert, die Transurane, ^{129}J oder $^{59/63}\text{Ni}$ enthalten, wie

- Hülsen und Strukturmaterial
- Schlamm mit Metallspänen
- Absorptionsmittel, wie Zeolithe u.ä.
- Absolutfilter.

Wegen des Gehaltes an $\beta\gamma$ -strahlenden Aktivierungsprodukten wird zur Zeit das Strukturmaterial ebenso wie die Hülsevenabschnitte als mittelaktiver Festabfall behandelt und einbetoniert in 200 l Fässern gelagert.

Der Anfall an nicht kompaktierten Hülseven beläuft sich auf

0,34 bis 0,56 m³/t SM /T1/

271 kg = 0,21 m³ Zircaloy/t SM bei LWR
(1370 kg = 0,86 m³ Edelstahl/t SM bei SBR) } /B17/

414 kg Zircaloy/t SM bei LWR
(640 kg Edelstahl/t SM bei SBR) } diese Arbeit

Der Anfall von Hüll- und Strukturmaterial bei einer großen Wiederaufarbeitungsanlage für 1500 t LWR-Brennstoff pro Jahr dürfte somit angenähert bei 450 bis 750 m³/a mit einem Plutoniumgehalt von ca. 15 kg Pu/a liegen.

Die ausgelaugten Hülzen enthalten neben den Aktivierungsprodukten noch kleine Mengen Spaltprodukte und Actiniden in Form von ungelöstem Brennstoff. Der Gehalt an Transuranen (Plutonium) in den Hülzen von LWR-Brennstoff wird zwischen 0.02 und 0.2 Gewichtsprozent pro Tonne Schwermetall geschätzt /T1/, entsprechend ca. 4 bis 40 g Plutonium pro m³ Hülzenabschnitte. Bei den ersten Wiederaufarbeitungskampagnen der Nuclear Fuel Services, Inc., West Valley (N.Y.) wurden Hülzenabschnitte auf ungelösten Brennstoff analysiert /U4, U5/. Im Mittel ergaben sich Uran- und Plutoniumverluste mit den Hülzen von je 0,1 % /A5/.

Der Schlamm, der beim mechanischen Zersägen und Zerlegen der Brennelementbündel entsteht, wird in 200 l Fässern verfestigt, einbetoniert und dem allgemeinen festen Abfall zugerechnet. Der Gehalt an Plutonium ist unbekannt, dürfte wahrscheinlich jedoch vernachlässigbar sein /T1/.

Die Abgase aus dem Auflöser werden zur Rückgewinnung der Salpetersäure gewaschen und das im Abgas enthaltene Jod durch Absorptionskolonnen entfernt. Die Spaltedelgase (Krypton-85) und das freigesetzte Tritium wurden bisher bei kleineren Anlagen über den Kamin abgelassen. Bei zukünftigen großen Wiederaufarbeitungsanlagen in Europa ist zwecks Verhinderung lokaler Belastungen mit einer Weiterbehandlung der Abgase zur Abtrennung von Tritium und Spaltedelgasen zu rechnen, auf die hier nicht weiter eingegangen werden soll.

Die produzierte Menge des langlebigen Jod-129 beträgt für LWR-Brennstoff mit 34.000 MWd/t SM Abbrand 236 g J-129/t SM

(die gesamte Jodmenge 277 g/t SM gemäß Tabelle 3.2). Pro 1000 MW_e·a werden also ca. 7,2 kg Jod (davon 6,2 kg J-129) gebildet. Für die Absorption von Jod-129 aus dem Abgas kommen verschiedene Verfahren mit Waschkolonnen und Festbettabsorption (wie die am Kernforschungszentrum Karlsruhe entwickelten silber-imprägnierten anorganischen Sorptionsmaterialien /K14,W9/ oder Silber-Zeolithe) zur Anwendung. Der Verbrauch von Silber-Zeolithen wurde im Mittel mit 0.002 m³/t SM angegeben /T1/. Bei einer großen Wiederaufarbeitungsanlage von 1500 jato würden jährlich ca. 415 kg Jod (davon 355 kg J-129) anfallen, die mit etwa 450 bis 550 kg Silber auf der 10- bis 20-fachen Menge Trägermaterial fixiert würden. Diese Menge würde beim Einbetonieren in 200 l Fässer ca. 200 bis 400 Fässer pro Jahr ergeben.

Der Plutoniumgehalt der Silber-Zeolithe ist unbekannt und sicherlich vernachlässigbar, da das Abgas vor der Jodabsorption noch andere Absorptionskolonnen passiert.

Von Interesse im Hinblick auf Pu sind Filter (z.B. Filterkerzen) im Zerhacker- und Auflöser-Abgas und die Absolutfilter in der Abluft der Head-end-Zelle. Das Volumen der regelmäßig ausgetauschten Filter ist je nach Anlage verschieden groß und scheint eher anlagenspezifisch als vom Durchsatz abhängig zu sein. Die Größenordnung wurde mit 0.015 bis 0.1 m³/t SM angegeben /T1/. Aufgrund der βγ-Spaltproduktaktivität werden die Filter als mittelaktiver fester αβγ-Abfall behandelt. Die Filter enthalten sicherlich Plutonium, jedoch liegen über den Pu-Gehalt keine Messungen und Schätzungen vor.

4.1.3 Extraktionsprozeß und Tail-end

Die Abtrennung der Spaltprodukte und die Trennung des Urans und Plutoniums erfolgt in den technischen Aufarbeitungsanlagen

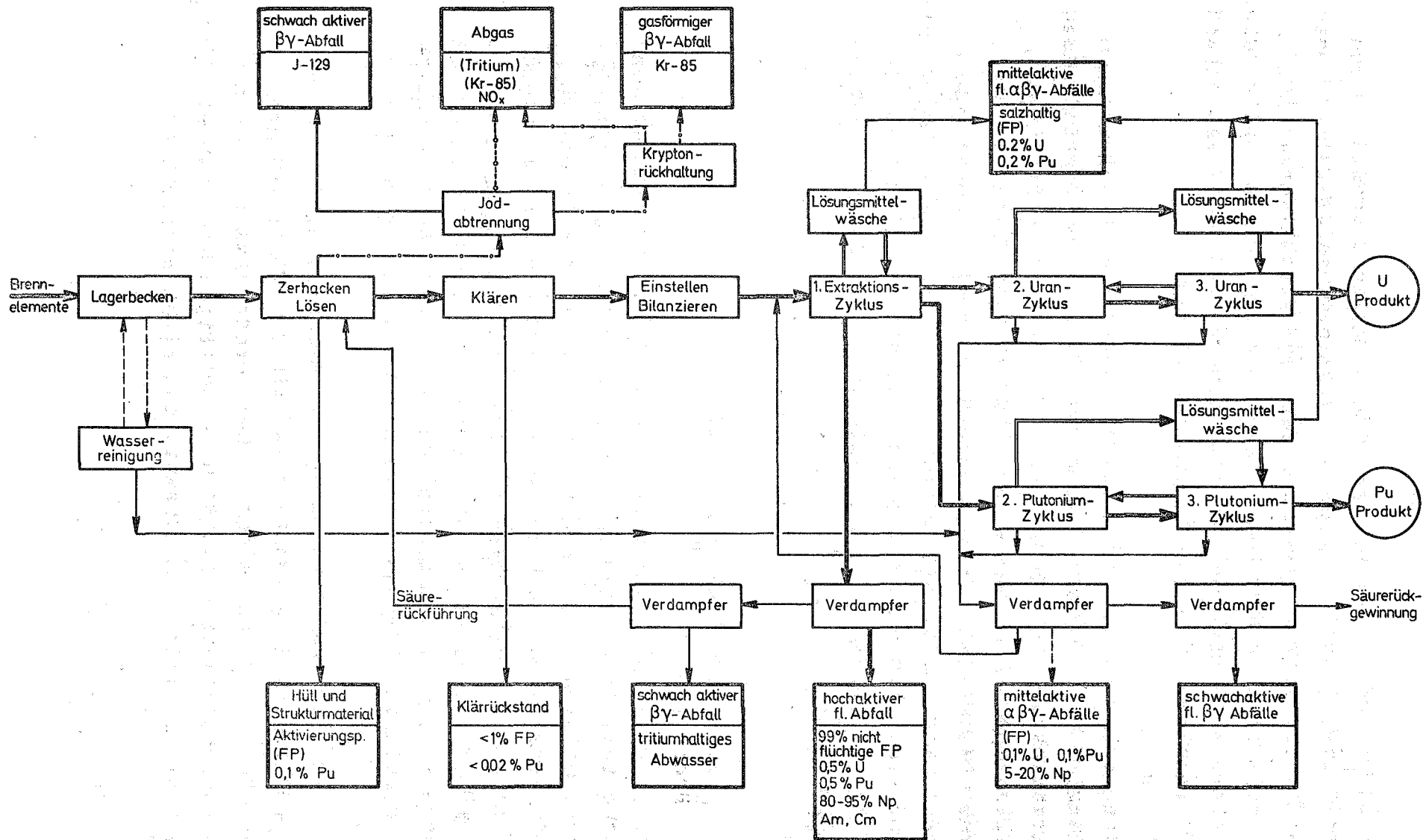


Fig. 4.1 Schematisches Fließbild des PUREX- Prozesses für LWR-Brennstoff-Aufarbeitung

KFK-2022 (1974)

gegenwärtig und - nach dem derzeitigen Entwicklungsstand auch in absehbarer Zukunft - durch ein Flüssig-Flüssig-Extraktionsverfahren mit Tributylphosphat (TBP) als Extraktionsmittel, dem sogenannten Purex-Prozeß (oder einer seiner Varianten) /B2/. Die wichtigsten Abfallströme des Purex-Prozesses sollen anhand des Fließschemas Fig. 4.1 besprochen werden.

Im ersten Extraktionszyklus werden zuerst Uran und Plutonium mit einer 20 bis 30%igen Lösung von TBP in einem hochsiedenden Kohlenwasserstoff (n-Dodekan, Kerosin o.ä.) in mehrstufigen Extraktionsapparaten extrahiert. Das wäßrige Raffinat (HAW), das fast die gesamten nicht gasförmigen Spaltprodukte sowie einige Transuranelemente enthält, wird in einem Verdampfer aufkonzentriert. Das hochaktive Abfallkonzentrat (HAWC) muß in gekühlten Tanks bis zu einer späteren Verfestigung zwischengelagert werden.

4.1.3.1 Hochaktive flüssige Abfälle

Der hochaktive Abfallstrom des PUREX-Verfahrens enthält mehr als 99 % der nicht gasförmigen Spaltprodukte und stellt somit den radioaktiven Abfall mit der höchsten Aktivität des gesamten Brennstoffzyklus bei verhältnismäßig geringem Volumen dar. Das hochaktive Abfallkonzentrat besteht aus Nitraten von Spaltprodukten, Actiniden, Korrosionsprodukten und im Prozeß zugesetzter inaktiver Chemikalien (z.B. lösliche Neutronengifte Gadolinium oder Bor) in 4 bis 6 molarer Salpetersäure.

Der Bereich der Zusammensetzung der Chemikalien, die keine Spaltprodukte sind, schwankt etwas mit den Varianten des Prozeßschemas. Es kann jedoch - ohne große Fehler zu machen - davon ausgegangen werden, daß in zukünftigen Wiederaufarbeitungsanlagen weitgehend auf den Zusatz von nicht zerstörbaren

Chemikalien (Metallsalzen) im ersten Extraktionszyklus verzichtet wird, um die nachfolgende Abfallbehandlung nicht zusätzlich zu erschweren. So kann insbesondere der Gehalt an Natrium- und Sulfationen in den Abfallströmen vermieden werden, wenn anstelle von Natriumnitrit und Eisensulfamat Stickstoffoxid, Uran(IV)nitrat, Hydroxylaminnitrat oder elektrolytische Reduktion bzw. Oxidation eingesetzt werden. Bei großen Anlagen ist allerdings aus Kritikalitätsgründen mit dem Zusatz größerer Mengen löslicher Neutronengifte wie Gadolinium zu rechnen.

Die Zusammensetzung des resultierenden "clean waste" wurde in Tabelle 4.1 angegeben /P3, B8/ (ein Beispiel ist auch der als Kategorie PW-4m im US-Programm "Waste Solidification Engineering Prototypes" (WSEP) bezeichnete Waste /Ref. S1, Spalte 4 in Tabelle 2/ bzw. PW-7 mit Gadolinium als löslichem Neutronengift /M10/). Die Mengen einzelner Spaltprodukte können aus Tabelle 3.2 entnommen werden.

Die Konzentrierung der hochaktiven Abfalllösungen ist nach oben hin einerseits durch den Feststoffgehalt (Niederschlagsbildung) und andererseits durch die Selbsterhitzung aufgrund der Zerfallswärme begrenzt.

Ungelöste Rückstände aus dem Auflöser, die Ru, Nb, Zr und kleine Mengen U und Pu enthalten, oder unlösliche Niederschläge /S2/ in Form von Zirkonphosphaten, -molybdaten u.a. sind in den hochaktiven Abfallkonzentraten stets vorhanden /B18/. Ausfällungen entstehen bei Salzgehalten über 90 g/l /D3/, so daß die erreichbare Konzentrierung vom Spaltproduktgehalt, d.h. vom Abbrand des Brennstoffs, und vom eingesetzten Prozeßschema des Aufarbeitungsverfahrens abhängig ist.

Tabelle 4.1 Zusammensetzung hochaktiver Abfallkonzentrate
(1250 l/t SM) von LWR- und SBR-Brennstoff
/S1, P3, B8/ (Spaltprodukte und Actiniden nach
eigenen Rechnungen)

KFK-2022 (1975)

	Konzentration [g/t SM]	
	LWR	SBR ^{a)}
Prozeßchemikalien Korrosionsprodukte		
Eisen	800 - 1100	2620 - 26200
Nickel	100 - 180	240 - 2400
Chrom	100 - 240	690 - 6900
	1000 - 1520	3550 - 35500
Salpetersäure	78750 - 236250	78750 - 236250
Nitrat	40000 - 50000	163500 - 165250
Phosphat	110 - 900	
	118900 - 287200	242300 - 401500
Lösliche Neutronengifte		
Gadolinium Borat	13000 - 19000	98000
Spaltprodukte	29640	30530
Transurane		
Neptunium	500 - 376 ^{b)}	263
Americium	153 - 544	960
Curium	43 - 317	22
	696 - 1237	1245
Verluste (0.5 %)		
Uran	4800	4300
Plutonium	50	510
	4850	4810
Metallionen gesamt	49200 - 56250	40140 - 72100
Metalloxide	58950 - 67200	49280 - 94800

a) SBR linke Spalte: 1 % Hüllmaterial gelöst
SBR rechte Spalte: 10 % Hüllmaterial gelöst

b) LWR linke Spalte: 3,3 % U-235 Gleichgewichtszyklus, 34000 MWd/t
LWR rechte Spalte: Pu-Rezyklierung; 34000 MWd/t

Die Literaturangaben über die Volumina des hochaktiven Wastekonzentrats von LWR-Brennstoff erstrecken sich über einen weiten Bereich von 200 l pro t U /F4/, über 378 l /S1, S11/ und 600 l /M5/ bis 1250 l pro t SM /O1, B8/.

Der letzte Wert erscheint für hochabgebrannte LWR-Brennstoffe (ca. 33000 MWd/t) und relativ kurze Kühlzeiten (ca. 150 bis 180 Tage) im Hinblick auf die nötige Wärmeabfuhr (ca. 20 KW_{th}/t SM) realistisch. Nach mehrjähriger Tanklagerung wäre eine Volumenreduzierung auf ca. 400 l/t SM möglich. Wenn die hochaktiven Abfallösungen nicht stark sauer, sondern neutral oder alkalisch gelagert werden, erhöht sich das Volumen um einen Faktor 3 bis 4 /O1/.

Die Lagerung von salzarmen hochaktiven PUREX-Spaltproduktkonzentraten erfolgt in stark saurer Lösung (2 - 5 M HNO₃) in gekühlten Edeltanks. Der selbsterhitzende Abfall wird bei einer Temperatur von ca. 60°C gelagert, um die Korrosionsrate gering zu halten.

Bei einer Begrenzung der Konzentration durch die Zerfallswärme wurde bei der EUROCHEMIC und der WAK von einer Kühlleistung von 7 - 9 Watt/l in den Lagerbehältern ausgegangen. Für zukünftige gekühlte Lagertanks kann durchaus mit 12 bis 16 W/l gerechnet werden, d.h. mit einer Anfangsaktivität von ca. 3200 bis 3500 Ci/l, je nach Geschwindigkeit der Tankfüllung. In Tabelle 4.2 sind die Grenzvolumina bei verschiedenen Kühlzeiten aufgeführt. Für die vorliegende Arbeit wird als Mittelwert 600 l pro Tonne aufgearbeitetem Schwermetall (nach ca. 1 Jahr Tanklagerung) angenommen.

Tabelle 4.2: Volumen des hochaktiven Abfallkonzentrats (HAWC) von LWR-Brennstoff bei einer maximalen Wärmeleistung von 16,0 W/l.

	Zeit nach Reaktorentladung				
	150 d	270 d	1 a	2 a	3 a
<u>Abbrand 34 000 MWd/t SM</u>					
Aktivität [MCi/t SM]	4,4	2,8	2,3	1,2	0,81
Wärmeleistung [kW/t SM]	20,8	13,8	11,0	5,8	3,7
HAWC-Volumen [l/t SM]	1300	860	690	360	(230)
<u>Abbrand 45 000 MWd/t SM</u>					
Aktivität [MCi/t SM]	5,4	3,5	2,8	1,6	1,06
Wärmeleistung [kW/t SM]	25,9	17,4	13,9	7,4	5,0
HAWC-Volumen [l/t SM]	1620	1080	870	460	(310)

4.1.3.2 Mittelaktive flüssige Abfälle

Nach der Trennung von Uran und Plutonium im ersten Extraktionszyklus folgt je ein zweiter Extraktionszyklus für den Uran- und Plutoniumstrom zur weiteren Dekontamination von Spaltprodukten, insbesondere Zirkon und Ruthen. Die Endreinigung der Produktlösungen erfolgt entweder über Festbettsäulen (Ionenaustauscher oder Adsorptionsmittel) oder über einen weiteren Extraktionszyklus. Die wäßrigen Raffinatlösungen werden in Verdampfern aufkonzentriert, die Konzentrate mit der rückgewonnen Salpetersäure in den Auflöser rezykliert oder den mittelaktiven Abfällen zugeleitet.

Wäßrige $\alpha\beta\gamma$ -Abfallströme mit geringem Salzgehalt entstehen

- als Raffinate des 2. und 3. Extraktionszyklus zur Reinigung des Uran- und Plutoniumstroms;
- bei der Feinreinigung von Uran und Plutonium.

Je nach Fließschema einer bestimmten Wiederaufarbeitungsanlage wird ein Teil der Raffinatströme rezykliert.

Wäßrige $\alpha\beta\gamma$ -Abfallströme mit hohem Salzgehalt entstehen

- bei den Lösungsmittelwäschen
- als Konzentrate der Dekontaminationslösungen.

Durch die Strahlenbelastung des Lösungsmittels, insbesondere im 1. Extraktionszyklus, entstehen verschiedene Zersetzungs- (Radiolyse-)produkte des TBP, die für die Extraktion der Produkte und die Dekontamination von den Spaltprodukten nachteilig sind und erhöhte Plutoniumverluste bewirken. Sie müssen ständig aus dem im Kreislauf geführten Lösungsmittel beseitigt werden. Dies erfolgt durch eine Lösungsmittelwäsche mit Natriumkarbonatlösung und Salpetersäure. Die wäßrigen Lösungen aus den Lösungsmittelwäschen werden ebenfalls aufkonzentriert und liefern einen mittelaktiven flüssigen Abfall mit hohem Salzgehalt.

In einer neuen Abschätzung der Erzeugung radioaktiver Abfälle bei der industriellen Kernenergiegewinnung in den USA haben BLOMEKE, KEE und NICHOLS /B8/ für die Wiederaufarbeitung nur sehr kleine Plutoniumverluste angesetzt. Bei Prototypanlagen, wie WAK und EUROCHEMIC, lagen die Plutonium- und Uranverluste jedoch zum Teil im Bereich einiger Prozente vom Durchsatz. Vom Betrieb der NFS-Anlage /A5/ wurden Plutoniumverluste von 1,42 % (Yankee Fuel) und 2,96 % (Dresden 1 Fuel) berichtet. Für zukünftige Großanlagen kann jedoch von einer verbesserten Technologie ausgegangen werden, wie beispielsweise

- weitgehende Rückführung der Raffinatströme,
- verbesserte Lösungsmittelwäsche,
- Nachreinigung (d.h. Pu-Abtrennung) von plutonium-kontaminierten wässrigen Abfallströmen vor deren Verfestigung in der Abfallbehandlungsanlage,
- Naßverbrennung mit Pu-Rückgewinnung oder Verbrennung der Pu-kontaminierten brennbaren Festabfälle und spätere Aufarbeitung der zwischengelagerten plutoniumhaltigen Asche.

Die Zusammensetzung der mittelaktiven Abfälle wurde daher unter der Annahme geschätzt, daß wenigstens ein Teil solcher Entwicklungstendenzen technisch realisierbar wird, und soweit die Abfälle Plutonium enthalten, in Tabelle 4.3 zusammengestellt.

Die Plutoniumverluste durch die flüssigen $\alpha\beta\gamma$ -Abfälle werden für den Zeitraum nach 1990 wie folgt geschätzt:

	diese Arbeit	ref. /B8/
Pu und U in den konzentrierten Raffinaten, die nicht rezykliert werden	0,1 %	0,1 %
Pu und U in den konzentrierten Waschlösungen der Lösungsmittelreinigung	0,15 %	0,01%
Pu in den Konzentraten der Dekontaminationslösungen, die nicht rückgeführt werden.	0,05 %	-

Für die Gesamtmenge mittelaktiver Abfallkonzentrate wird die Verfestigung durch Bituminieren (Salzgehalt 50 %) in Betracht gezogen und die anfallenden Mengen $\alpha\beta\gamma$ -Abfälle auf 1,2 bis 1,6 m³/t SM, entsprechend 6 bis 8 Fässer/t SM geschätzt. Für

Tabelle 4.3: Mengen und mittlere Zusammensetzung mittelaktiver flüssiger $\alpha\beta\gamma$ -Abfälle bei der Wiederaufarbeitung von LWR-Brennstoff (unter Berücksichtigung von /B8/)

	flüssige Abfallkonzentrate		
	nicht rezyklierte Verdampfer- konzentrate	Lösungsmittel- wäschen	Dekolösungen
Salzgehalt	niedrig	hoch	hoch
Anfallende Menge [l/t SM]	100 - 200	500 - 1000	500 - 2000
Konzentrationen [g/t SM]			
Natrium		75700	40000 - 80000
Korrosionsprodukte (Fe, Ni, Cr)	28		
Spaltprodukte	Spuren	Spuren	
Uran	960	1440	480
Plutonium	10	15	5
Transurane	Spuren	Spuren	
Salpetersäure	7560		
Nitrat		186000	110000 - 215000
Carbonat		8700	
Phosphat		Spuren (?)	

eine 1500 jato Wiederaufarbeitungsanlage für LWR-Brennstoff würden sich auf dieser Basis 1800 bis 2400 m³ bituminierte mittelaktive Abfälle, d.h. 9000 bis 12.000 Abfallfässer pro Jahr ergeben.

4.1.3.3 Mittelaktive feste Abfälle

Mittelaktive feste Abfälle fallen im Extraktionsteil und im Tailend einer Aufarbeitungsanlage in sehr unterschiedlicher Art an, wie Ionenaustauscher, Silicagel, Abluft- und Boxenfilter, Apparateile, allgemeine brennbare und nicht brennbare Abfälle. Nicht brennbare Abfälle werden paketiirt (Volumenreduktion ca. 4 - 8 /U8, R3/, brennbare Abfälle (deren Anteil auf ca. 50 bis 70 % geschätzt wird /T1/) könnten einer Volumenreduktion durch nasse /C5,R3/ oder trockene Verbrennung /L6, Z2,S16/ zugeführt werden.

Ein Teil der festen Abfälle ist mit Plutonium kontaminierter α -Abfall, vor allem solcher aus dem Plutonium-Tailend. Eine Plutoniumrückgewinnung aus den Verbrennungsrückständen brennbarer α -Abfälle erscheint interessant, da der Pu-Gehalt in den Rückständen relativ hoch, das Volumen verhältnismäßig klein ist. Eine Pu-Rückgewinnung, insbesondere aus der Asche bei trockener Verbrennung, ist ein noch nicht gelöstes chemisches Problem /S16/.

Der Verlust an Plutonium wird vom Autor ohne Pu-Rückgewinnung auf 0,3 bis 0,5 % vom Durchsatz geschätzt und sollte bei Pu-Rückgewinnung (in Großanlagen) auf 0,1 % reduzierbar sein. Die Gesamtmenge betonierter, fester α -Abfälle wird auf ca. 100 bis 300 m³/Jahr entsprechend 500 bis 1500 Fässer für eine große Wiederaufarbeitungsanlage für LWR-Brennstoff geschätzt.

4.2 Wiederaufarbeitung von Thorium-Uran-Brennelementen

Um eine Vermischung von U-235 und U-233 weitgehend zu vermeiden, sind für die Aufarbeitung von HTR-Brennstoff zwei Teilprozesse vorgesehen. Beim Abbrennen des Graphits wird auch die freiliegende Pyrokohlenstoffschicht der U-233 und Th-Brutstoffpartikel abgebrannt, nicht aber die Siliciumcarbidschicht der U-235-Abbrandkerne. Die Abtrennung erfolgt entweder mechanisch, z.B. durch Sieben, wie in Fig. 4.2 angedeutet, oder auch durch selektives Auflösen der freigelegten Brutstoffkerne, wobei die noch mit Siliciumcarbid beschichteten Abbrandkerne als unlöslicher Rückstand zurückbleiben.

Der Brutstoff $\text{ThO}_2 - {}^{233}\text{UO}_2$ muß mit dem sog. THOREX-Reagenz (einer Mischung von konzentrierter Salpetersäure, Fluorwasserstoffsäure und Aluminiumnitrat) gelöst werden. Nach der Klärung der Lösung geschieht in einem mehrstufigen Extraktionsprozeß mit Tributylphosphat als Lösungsmittel eine Abtrennung der Spaltprodukte im ersten Extraktionszyklus durch gemeinsame Extraktion von Uran und Thorium (Kodekontamination) /B6; K5/. Im folgenden Extraktionszyklus erfolgt die Trennung des Urans vom Thorium durch selektive Extraktion des Urans.

Die relativ kleinen Mengen Plutonium können entweder

- als Pu(IV) mit extrahiert und abgetrennt werden, wobei sich das Plutonium zu ca. 90 % auf den Thoriumstrom und zu ca. 10 % auf den Uranstrom verteilt /W1/, oder
- durch Zusatz von Reduktionsmittel (zum Scrubstrom) im ersten Extraktionszyklus und Reduktion zu Pu(III) zum hochaktiven Spaltproduktabfall gelenkt werden /B6/.

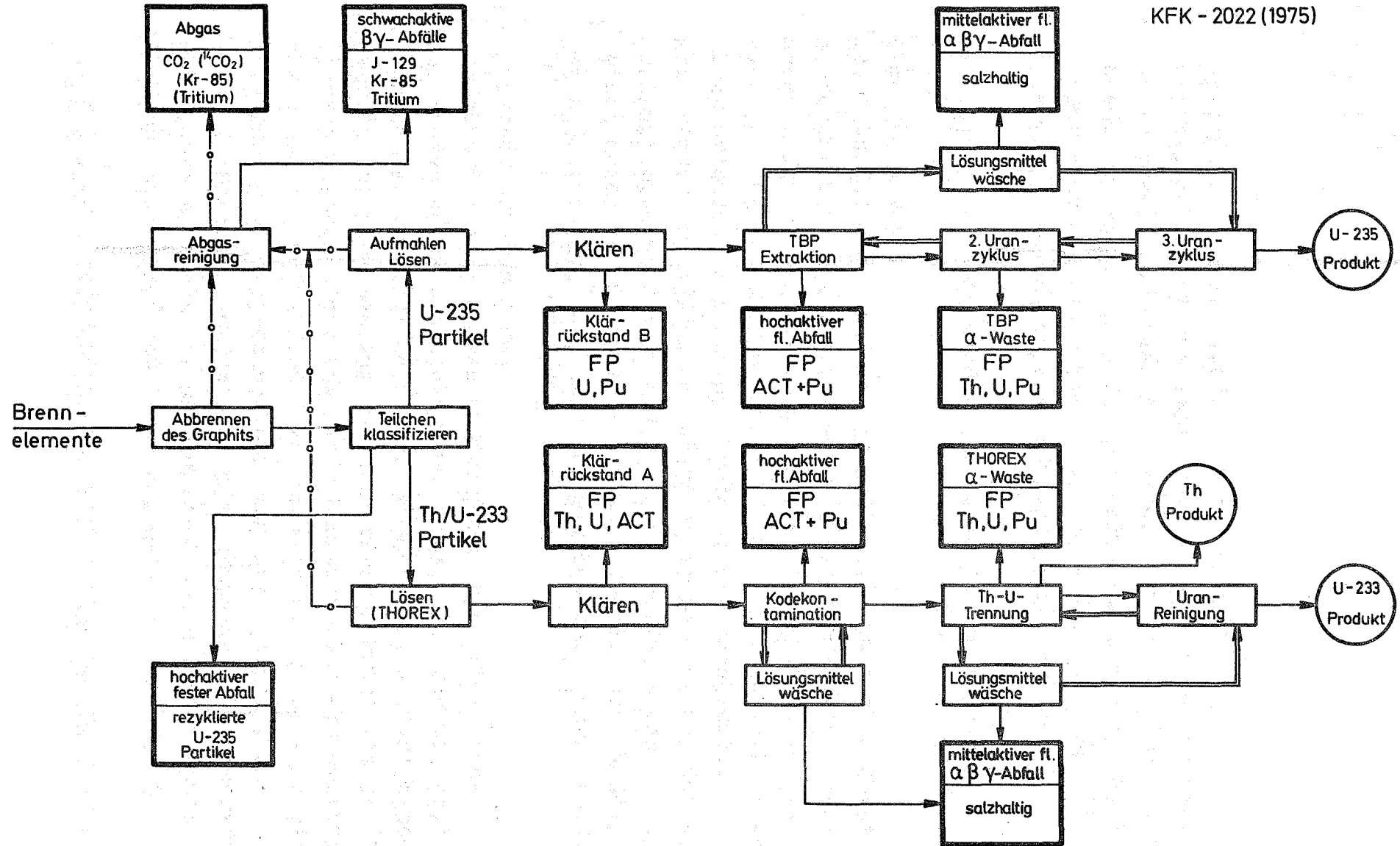


Fig. 4.2 Schematisches Fließbild der Wiederaufarbeitung von HTR - Brennstoff

Die abgetrennten Abbrandkerne können nach dem Aufmahlen der Siliciumcarbidhüllen und Abbrennen des verbliebenen Pyrokohlenstoffs gelöst werden. Nach dem Auftrennen des unlöslichen Rückstands erfolgt eine Rückgewinnung und Reinigung des U-235 durch einen separaten TBP-Extraktionsprozeß.

Das wiedergewonnene U-235 kann ein weiteres Mal im Reaktor eingesetzt /S6/ und soll dabei auf wenige Brennelemente konzentriert werden. Die rezyklierten, ebenfalls mit SiC beschichteten U-235-Partikel sollen nach 8 Jahren Bestrahlungszeit nicht wieder aufgearbeitet und deshalb nach dem Abbrennen des Graphits als hochaktiver fester Abfall abgetrennt werden.

Eine Zusammenstellung der verschiedenen radioaktiven Abfälle bei der Thorium-Brennstoffaufarbeitung erfolgte in Tabelle 4.4, wobei das Fließschemamodell von Fig. 4.2 zugrundegelegt wurde /B8/.

Danach entstehen beim Feed-Breed-Konzept feste und flüssige hochaktive Abfälle

- in Form der abgebrannten, nicht wiederaufgearbeiteten U-235-Partikel und
- in Form der flüssigen hochaktiven Abfallkonzentrate aus den beiden Extraktionsprozessen.

Tabelle 4.4 enthält auch eine erste Abschätzung der mittelaktiven Abfälle bei der Thorium-Brennstoffaufarbeitung /B8/.

Tabelle 4.4 Mengen und Zusammensetzung der radioaktiven Abfälle bei der Wiederaufarbeitung von HTR-Brennstoff, U-233 Rezyklierung /BB/ Spaltprodukte und Actiniden nach eigenen Rechnungen (Abbrand 95.000 MWd/t SM; 270 d Kühlzeit)

KFK-2022 (1975)

	Feste Abfälle [g/t SM]		Flüssige Abfallkonzentrate [g/t SM]		
	rezyklierte U-235 Partikel	vereinigte Klär-Rückstände	vereinigte Thorex+TBP Spaltprodukte 3785 l/t	vereinigte Thorex+TBP α-Abfälle 95 l/t	Lösungsmittelwäsche 95 l/t
Salzgehalt			niedrig	hoch	hoch
Prozesschemikalien + Korrosionsprodukte					
Eisen			1510		
Nickel			410		
Chrom			260		
Lithium			150		
Bor			980		
Aluminium			6360		
Natrium			<u>9670</u>	5590	11720
Salpetersäure			240000		
Nitrat			120000	2930	28820
Schwefelsäure			1060	23380	
Fluorid			1850		
Carbonat					1430
Phosphat				2260	
Silikat			510		
Spaltprodukte	3300	6000	72930	Spuren	Spuren
Actiniden					
Thorium		500	(0,5%) 4200	830	1800
Protactinium			20		
Uran	6400	40	(0,5%) 250	220	80
Neptunium	830		1480		
Plutonium	720	2	950	100	2
Americium	22	Spuren	24	Spuren	Spuren
Curium	<u>11</u>	<u>542</u>	<u>12</u>	<u>1150</u>	<u>1882</u>
	7983		6936		
Hüllmaterial					
Kohlenstoff	15000	2300			
Siliciumcarbid	18000	27300			
Metallionen gesamt	11290	6540	89540	6740	13600
Metalloxide	13380	7950	114000		

5. Relativer Toxizitätsindex von radioaktivem Abfall

Eine Diskussion der Behandlung und Beseitigung radioaktiver Abfälle setzt eine genaue Kenntnis der charakteristischen Eigenschaften der radioaktiven Stoffe, die relative Bedeutung der einzelnen Bestandteile und die zeitliche Änderung der Eigenschaften durch radioaktiven Zerfall voraus.

Radioaktive Stoffe werden physikalisch durch die Anzahl der Zerfälle pro Zeiteinheit (Curie), die Art und Energie der Strahlung charakterisiert. Ähnlich könnten auch die Eigenschaften radioaktiver Abfälle durch die Aktivitätskonzentration (in Curie pro Mengeneinheit) als Funktion der Zeit beginnend mit dem Zeitpunkt der Entstehung der Abfälle (in der Regel eine chemische Abtrennung) beschrieben werden.

Die charakteristische Radioaktivität der Isotope und die biochemischen Prozesse des Organismus, die für die betreffenden Elemente oder ihrer Verbindungen relevant sind, bestimmen die Radiotoxizität dieser Stoffe. Wichtige Faktoren neben Art und Energie der Strahlung sind die Aufnahmefähigkeit und biologische Halbwertszeit im menschlichen Organismus, die Konzentrierung und Ablagerung in kritischen Organen. Aufgrund des biologischen Verhaltens und der maximal zulässigen Dosen für kritische Organe hat die International Commission on Radiological Protection (ICPR) Werte für die maximal zulässige Konzentration der Radionuklide in Trinkwasser (MPC_w) und Atemluft (MPC_a) sowie die maximal zulässige Körperbelastung (MPBB) vorgeschlagen /12/. Hierauf basierend sind die maximal zulässigen

Konzentrationen in Wasser und Luft in der 1. Strahlenschutzverordnung für die BRD verbindlich festgelegt worden (In einer neuen Fassung der Strahlenschutzverordnung soll anstelle der maximal zulässigen Konzentrationen in Wasser und Luft die maximal zulässige Aktivitätszufuhr aufgenommen werden) /S3/.

Für die α -emittierenden Actiniden im Waste, die hohe Radiotoxizität und vielfach Halbwertszeiten über 10^3 Jahre besitzen, kann ein Vergleich mit dem natürlichen Zerfallsprodukt Radium-226, das als α -Strahler mit 1620 Jahren Halbwertszeit den niedrigsten MZK-Wert für Wasser aufweist, auf drei Ebenen erfolgen:

- Die derzeit gültigen MZK_w -Werte für Transurane basieren auf einem Vergleich mit der Radiotoxizität des Ra-226 /I2/. Ihnen liegt die höchst zulässige Dosis für Ra-226 zugrunde, wobei das Skelett als kritisches Organ betrachtet wird.
- Die Actiniden, die in einer schwerlöslichen Matrix verfestigter radioaktiver Abfälle enthalten sind, lassen sich mit natürlichen radioaktiven Stoffen wie Uran- oder Thoriumminerale oder -erze vergleichen, deren Radiotoxizität in der Hauptsache von der Toxizität des im Gleichgewicht befindlichen Radiums bestimmt wird.
- Schließlich bedeutet in erster Näherung das gesamte Feld eines Endlagers, bei dem die verfestigten hochaktiven Abfälle in Form von Abfallzylindern in räumlich getrennten Bohrlöchern im Salzgestein stehen (vgl. Kapitel 6), daß der Waste in kleinen Einheiten über eine große Salzschieht verteilt ist. Hier

erfolgte der Vergleich des Lagerfeldes (Abfallzylinder plus umgebendes Salz) mit einem gleichgroßen Uranerzlager von geringem Urangehalt. Der Vergleich beruht wiederum darauf, daß die Radiotoxizität des Actinideninventars des Waste nach 10^3 Jahren mit der Radiotoxizität des Nuklidinventars des Erzes verglichen wird.

5.1 Risikoanalyse und hazard index

Zur genaueren Ermittlung des Gefahrenpotentials langlebiger Radionuklide nach Beseitigung und Endlagerung radioaktiver Abfälle sind detaillierte Risikoanalysen erforderlich, bei denen die Mechanismen, die zu einer Freisetzung der radioaktiven Stoffe führen könnten, deren Wahrscheinlichkeit und die Konsequenzen einer Freisetzung für den Menschen zu untersuchen wären. Am Anfang einer solchen Risikoanalyse steht eine Beschreibung und Definition des Abfallbeseitigungssystems und die Charakterisierung des Nuklidinventars der radioaktiven Abfälle.

Für einen vereinfachten und allgemeineren Vergleich der Eigenschaften und der Radiotoxizität des Nuklidinventars wurden in der Literatur einige einfache Parameter vorgeschlagen und verwendet. Sie gehen davon aus, daß für eine Rückkehr von radioaktivem Material, das in geologische Schichten des tiefen Untergrundes eingelagert wurde, in den Biozyklus des Menschen in erster Linie Wasser als Transportmedium nötig ist. Daher wurde von BELL und DILLON /B1/ als ingestion hazard für ein Gemisch unterschiedlicher Radionuklide diejenige Menge Wasser

definiert, die nötig ist, eine gegebene Menge eines Radioisotops auf die maximal zulässige Trinkwasserkonzentration (MZK_w) zu verdünnen. Je mehr Wasser theoretisch benötigt würde, desto höher wäre die Toxizität. Zur Bestimmung des "hazard measure" /B1, C1/ oder des äquivalenten "radiotoxic hazard measure" /H13/ für ein Nuklidgemisch werden die für die einzelnen Nuklide erforderlichen Wassermengen aufsummiert:

$$HM = \sum_i \frac{Q_i}{MZK_{w,i}} \quad [m^3] \quad (1)$$

wobei HM das hazard measure für Ingestion

Q_i die Aktivität des Nuklids i , und

$MZK_{w,i}$ die maximal zulässige Konzentration des Nuklids i in Wasser bedeutet.

Als Beispiele seien die Werte für je 1 g natürliches Uran und Thorium im Gleichgewicht mit seinen Töchtern /B1/ angeführt.

	Aktivität		hazard measure [m ³]
	$\alpha + \beta$ [μCi]	[μCi]	
Uran (1 g)	4,81	2,76	15,1
Thorium (1 g)	1,09	0,65	3,78

Ein dem hazard measure ähnlicher Parameter stellt der "hazard index" /B11, Appendix III ref. C1/ dar, der sich nach CLAIBORNE/C4/ besser für einen in situ Vergleich mit Uran- und Thoriumerzen eignet. Der hazard index HI (dimensionslose Größe) ist definiert als hazard measure pro Volumeneinheit des verfestigten Radionuklidgemisches

$$HI = \frac{HM}{\text{Volumen}} \quad (2)$$

Als Beispiele seien hier der hazard index von Pechblende /C4/, die hauptsächlich das Mineral Uraninit (Dichte 8 bis $10 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$) enthält, und das Uranerz Carnotit /C4/ mit 0,2 % Uran (Dichte $3 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$) angeführt.

	hazard index
Pechblende, 70 % Uran	10^8
Carnotiterz, 0,2 % Uran	10^5

Der hazard index erlaubt einen guten relativen Vergleich der Toxizität unterschiedlicher Radionuklide in radioaktiven Abfällen, deren Zeitabhängigkeit und in begrenztem Maße auch den positiven und negativen Einfluß verschiedener Verfahren der Abfallbehandlung, Zwischen- und Endlagerung. Der hazard index stellt kein Maß für das Risiko im Sinne einer Risikoanalyse dar. Risiko ist definiert als das Produkt aus Wahrscheinlichkeit (erwartete Häufigkeit einer Freisetzung) und Konsequenzen (Größe der Freisetzung oder radiologische Belastung des Menschen). Der hazard index für radioaktive Abfälle berücksichtigt nicht die Wahrscheinlichkeit und die Ereignisabläufe einer möglichen Freisetzung der Radionuklide, Unterschiede von löslichen und unlöslichen Verbindungen, Mechanismen der Verteilung, Konzentrierung, Fixierung und Wanderung von Radionukliden in der Umwelt, die Aufnahmefähigkeit durch Organismen, Konzentrierung in menschlichen Nahrungsketten (critical pathways) etc.

Eine Berücksichtigung solcher Faktoren kann nicht auf einfache Weise durch Korrektur mit einem Wahrscheinlichkeitsfaktor, wie er von GERA und JAKOBS /G2, G6/ vorgeschlagen wurde, oder durch Wichtung von ingestion hazard und inhalation hazard erfolgen, da über die Größen, die in die Korrekturfaktoren /G6,M8/

eingehen würden, zu wenig bekannt ist. Es ist vielmehr eine detaillierte Risikoanalyse für das gesamte Abfallbeseitigungssystem, den Standort und die Randbedingungen eines bestimmten Endlagers erforderlich. Ansätze hierzu wurden von den Battelle Pacific Northwest Laboratories /S10, S15/ sowie von McGRATH /M8/ ausgearbeitet.

5.2 Relativer Toxizitätsindex

Trotz der Bedenken und Einwände gegen die Verwendung des ingestion hazards oder hazard index muß nicht völlig auf eine einfache Vergleichsgröße für die Radiotoxizität des Nuklidinventars radioaktiver Abfälle und deren Änderung durch radioaktiven Zerfall verzichtet werden.

Radioaktive Stoffe waren in Form von Uran- und Thoriumvorkommen in der Erdkruste und an der Erdoberfläche schon immer - d.h. während der gesamten Entwicklung des Lebens - vorhanden. Die Radioaktivität und die Radiotoxizität von Uranerzen können daher als ein akzeptables Risiko angesehen werden.

Es wird folglich ein "relativer Toxizitätsindex" vorgeschlagen, der auf einem Vergleich mit natürlichem radioaktivem Material, nämlich einem Uranerz mit niedrigem Urangehalt, beruht. Als Bezugspunkt wurde ein Uranerz mit 2000 ppm (= 0,20 Gewichtsprozent) Uran gewählt, wie es für natürliche Vorkommen an der Erdoberfläche, z.B. im Colorado Plateau, typisch ist.

Als relativer Toxizitätsindex RTI wird das Verhältnis des Wasservolumens definiert, das durch das Radionuklidinventar einer gegebenen Menge verfestigten Wastes bis auf MZK_w

kontaminiert werden kann, zu dem Volumen Wasser, das durch das Radionuklidinventar einer gleich großen Menge Uranerz (mit 0,2 w/o U) bis MZK_w kontaminiert werden kann:

$$RTI = \frac{HM_{Waste}}{HM_{Uranerz}} = \frac{\left(\sum_i \frac{Q_i}{MZK_{w,i}} \right)_{Waste}}{\left(\sum_j \frac{Q_j}{MZK_{w,j}} \right)_{Uranerz}} \quad (3)$$

Die Radiotoxizität des natürlich vorkommenden Urans wird hauptsächlich durch die hohe Toxizität der Ra-226 Tochter verursacht. Ein in situ Vergleich erscheint auch deshalb möglich, weil die Radiotoxizität der Actiniden im Waste auf sehr lange Sicht ($> 10^4$ Jahre) ebenfalls überwiegend durch das Zerfallsprodukt Radium bestimmt wird. In den Uranerzen ist das Radium in praktisch unlöslicher Form enthalten; ähnliche Verhältnisse liegen bei der Endlagerung actinidenhaltiger Abfälle in geologischen Formationen vor, da hier eine Fixierung der Abfälle in einer schwer löslichen Matrix (Glas, Keramik o.ä.) vorgesehen ist.

Für die hochaktiven Abfälle der Wiederaufarbeitung wird eine Konzentration von 25 Gewichtsprozent Abfalloxide im Verfestigungsprodukt (z.B. Glas) angenommen. Daraus ergeben sich die in Abschnitt 6.1 errechneten Mengen Verfestigungsprodukt pro Tonne aufgearbeitetem Brennstoff (LWR 180 kg/t SM; SBR 220 kg/t SM; HTR 475 kg/t SM), die den Berechnungen des relativen Toxizitätsindex zugrunde gelegt wurden. Der relative Toxizitätsindex ist unabhängig von der Wastemenge.

Ähnlich dem in dieser Arbeit verwendeten relativen Toxizitätsindex definierten auch KUBO und ROSE /K3/ eine Vergleichsgröße "relative toxicity", die jedoch auf einer Konzentration des Uranerzes von 1,4 w/o U_3O_8 (entsprechend 1,18 % U) beruht.

Bemerkenswerterweise verwendete auch CLAIBORNE in einer neuen Arbeit /C4/ als Vergleichsgröße für hochaktive Abfälle einen Parameter mit direktem Bezug auf ein Uranerz. Als "hazard criterion" P wird der hazard index von hochaktivem Abfall mit dem hazard index von Pechblende mit hohem Urangehalt (70 w/o U) verglichen und in Prozent für Zeiten beginnend bei 10^3 Jahren nach der Wiederaufarbeitung angegeben:

$$P = \frac{100 \cdot HI_{\text{waste}}}{HI_{\text{Pechblende (70 \% U)}}} \quad [\%] \quad (4)$$

5.3 Berechnungsmethode

Die relativen Toxizitätsindices wurden mit dem Rechenprogramm ORIGEN /B3/ für die hochaktiven Abfälle von drei Reaktortypen und mehreren Brennstoffvarianten (vgl. Kapitel 3) für einen Zeitraum bis 10^6 Jahre nach der Aufarbeitung gerechnet. Für die Brennstoffe des Uran-Plutonium-Kreislaufes wurde eine Kühlzeit von 150 Tagen vor der Wiederaufarbeitung zugrundegelegt, im Thorium-Uran-Zyklus von 270 Tagen. Die weiteren Annahmen zum Brennstoffaufarbeitungskonzept waren die gleichen wie in Abschnitt 3.4.

Die verwendeten maximal zulässigen Konzentrationen in Wasser waren die in der Bibliothek des Rechenprogrammes ORIGEN /B3/ enthaltenen Werte des US Radiation Concentration Guide (RCG)

(10 CFR 20), soweit sie dort aufgelistet sind. Die verwendeten RCG-Werte stimmen weitgehend (ausgenommen Sr-90, J-129 und Ra-226) mit den MZK_w [$\mu\text{Ci/ml}$] der 1. Strahlenschutzverordnung /S3/ überein:

Nuklid	RCG und ORIGEN	ICRP /I2/	1.SSVO /S3/
Sr-90	$3 \cdot 10^{-7}$	$4 \cdot 10^{-7}$	$1 \cdot 10^{-7}$
J-129	$6 \cdot 10^{-8}$	$4 \cdot 10^{-7}$	$2 \cdot 10^{-7}$
Ra-226	$3 \cdot 10^{-8}$	$1 \cdot 10^{-8}$	$1 \cdot 10^{-8}$

Für die im RCG nicht aufgelisteten Werte wurden im ORIGEN-Programm die von LaVERNE /appendix I in ref. C1/ berechneten Werte verwendet. Diese ergeben nach CLAIBORNE /C1/ gegenüber den nach den Regeln des RCG für nicht aufgeführte Nuklide zu verwendenden Werte weit realistischere Ergebnisse. Dies macht sich insbesondere in der Neptuniumszerfallsreihe bemerkbar.

HAMSTRA, der in einer Tabelle von den wichtigsten Nukliden der Actinidenzerfallsreihen die MZK-Werte von RCG, ICRP, /I2/, ref. /B1/ ref. /C1/ u.a. vergleicht /H13/, weist (ähnlich CLAIBORNE /C1/) auf die Notwendigkeit hin, daß für die Berechnungen zur Endlagerung von radioaktiven Abfällen eine offizielle Liste von Standard-MZK-Werten so bald wie möglich erstellt werden sollte.

5.4 Relativer Toxizitätsindex von hochaktivem Abfall verschiedener Brennstoffvarianten

Die Ergebnisse der Berechnungen des relativen Toxizitätsindex verschiedener Brennstoffe oder einzelner Komponenten wurden in den Diagrammen Fig. 5.1 bis 5.13 dargestellt.

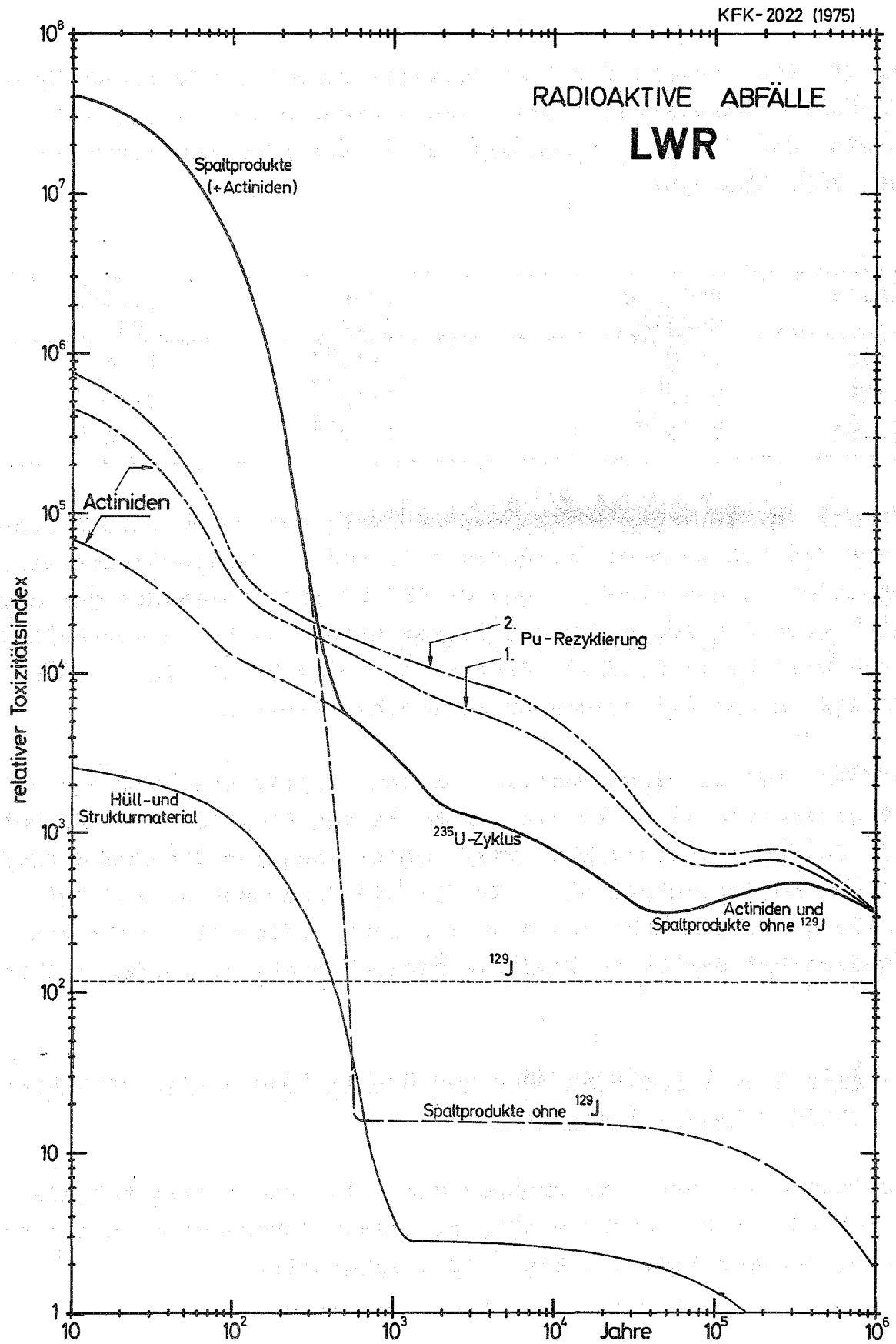


Fig. 5.1 Relativer Toxizitätsindex der hochaktiven Abfälle von LWR-Brennstoff (U-235 Zyklus und Pu-Rezyklierung), Abbrand 34 000 MWd/t SM; Wiederaufarbeitung nach 150 Tagen Kühlzeit; Verluste 0.5% U und 0.5% Pu.

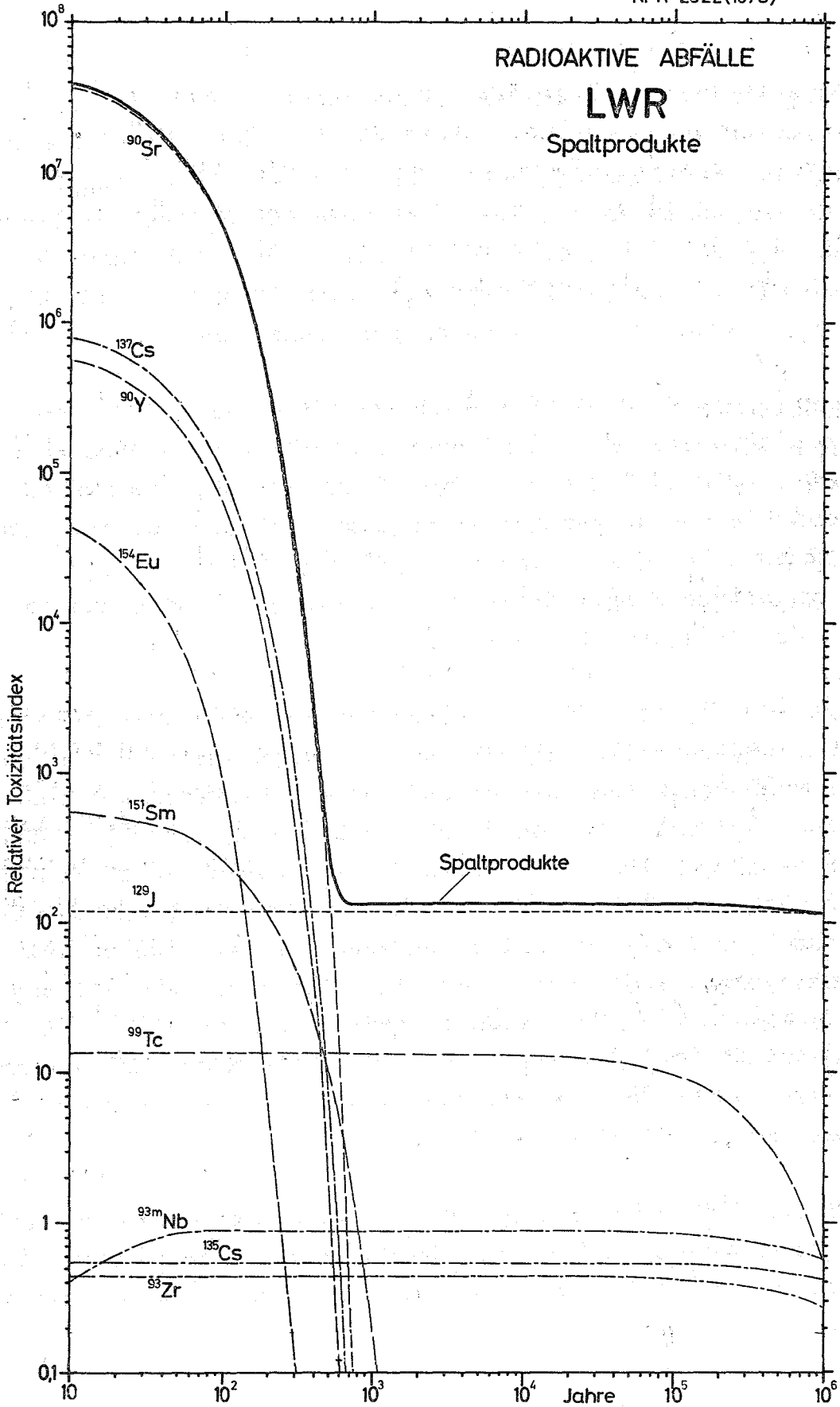


Fig. 5.2 Relativer Toxizitätsindex einzelner Spaltprodukte im radioaktiven Abfall von LWR-Brennstoff; Abbrand 34 000 MWd/t SM, Wiederaufarbeitung nach 150 Tagen Kühlzeit.

Der relative Toxizitätsindex des hochaktiven Abfalls der Wiederaufarbeitung (vgl. z.B. Fig. 5.1) fällt in den ersten 400 Jahren um mehrere Größenordnungen ab, danach erfolgt nur noch ein äußerst langsamer Abfall über Zeiträume von einigen Millionen Jahren. Bis 400 Jahre wird der relative Toxizitätsindex überwiegend von den Spaltprodukten Strontium-90 und Cäsium-137 bestimmt, danach von den langlebigen Transuränen.

Betrachtet man nur die Spaltprodukte (siehe Fig. 5.2), so lassen sich deutlich zwei Gruppen radioaktiver Isotope unterscheiden: solche, wie Sr-90, Cs-137 und Sm-151, die praktisch nach 600 bis 700 Jahren zerfallen sind, und eine Gruppe langlebiger Nuklide, wie J-129, Zr-93/Nb-93m, Tc-99 und Cs-135, deren relativer Toxizitätsindex über einige hunderttausend Jahre fast unverändert bleibt.

Jod-129 (mit $1,6 \cdot 10^7$ Jahren Halbwertszeit) wird nach der derzeitigen Verfahrensentwicklung bereits beim Auflösen des Brennstoffs abgetrennt oder spätestens bei der Verfestigung des flüssigen hochradioaktiven Abfalls und Einschmelzen in Gläser oder Keramik verflüchtigt. Wegen der Abtrennung durch Verflüchtigung wurde das Jod-129 in die Diagramme separat eingezeichnet, zumal es - erst einmal abgetrennt - einer eigenen getrennten Endlagerung zugeführt werden muß. Bei einer Endlagerung im Salzgestein wäre die Frage zu prüfen, bis zu welchem Grade die Toxizität des J-129 bei einem hypothetischen Auflösen des Salzlagers durch Isotopenverdünnung mit dem inaktiven Jod des Salzlagers reduziert würde.

Anders die Gruppe der Actiniden: die Kurve der Actiniden und ihrer Folgeprodukte schneidet die Spaltproduktkurve nach ca. 400 Jahren und bleibt dann für den relativen Toxizitätsindex

dominierend. Bei allen Brennstoffvarianten fällt der relative Toxizitätsindex der Actiniden zunächst langsam ab, um nach über 10^5 Jahren erneut auf ein Maximum anzusteigen. Dieses Maximum beruht auf der Aktivität von Radiumisotopen in den Zerfallsreihen der Actiniden, insbesondere Ra-226.

Um aufzuzeigen, welche Actiniden maßgeblich zum relativen Toxizitätsindex nach mehr als 500 Jahren beitragen, wurde in jeweils einem weiteren Diagramm zu jeder Brennstoffvariante der Anteil der einzelnen Actinidenelemente und ihrer Folgeprodukte dargestellt.

Beim Uran-Plutonium-Zyklus wird der relative Toxizitätsindex bis einige 10^4 Jahre im wesentlichen durch Americium und Curium (und deren Folgeprodukte) bestimmt (vgl. z.B. Fig. 5.3), bei noch längeren Zerfallszeiten gewinnt das langlebige Neptunium-237 und seine Töchter an Bedeutung. Der Anteil der übrigen Actiniden (Es, Cf, Bk, Pa, Ac) ist vernachlässigbar klein.

Beim Thorium-Uran-Zyklus wird langfristig der relative Toxizitätsindex durch das Plutonium und seine Folgeprodukte dominiert. Nur wenn neben dem Thorium und Uran auch das Plutonium wiedergewonnen wird, würde der relative Toxizitätsindex des hochaktiven Abfalls zwischen 10^3 und 10^4 Jahren durch Protactinium, später durch Uran und Neptunium bzw. deren Folgeprodukte bestimmt.

In Fig. 5.4 wurde der Einfluß einer Wiedergewinnung des Urans und Plutoniums von 98,5 %; 99,0 %; 99,5% und 99,8 %, d.h. einem Dekontaminationsfaktor von 50, 100, 200 und 500 eingetragen.

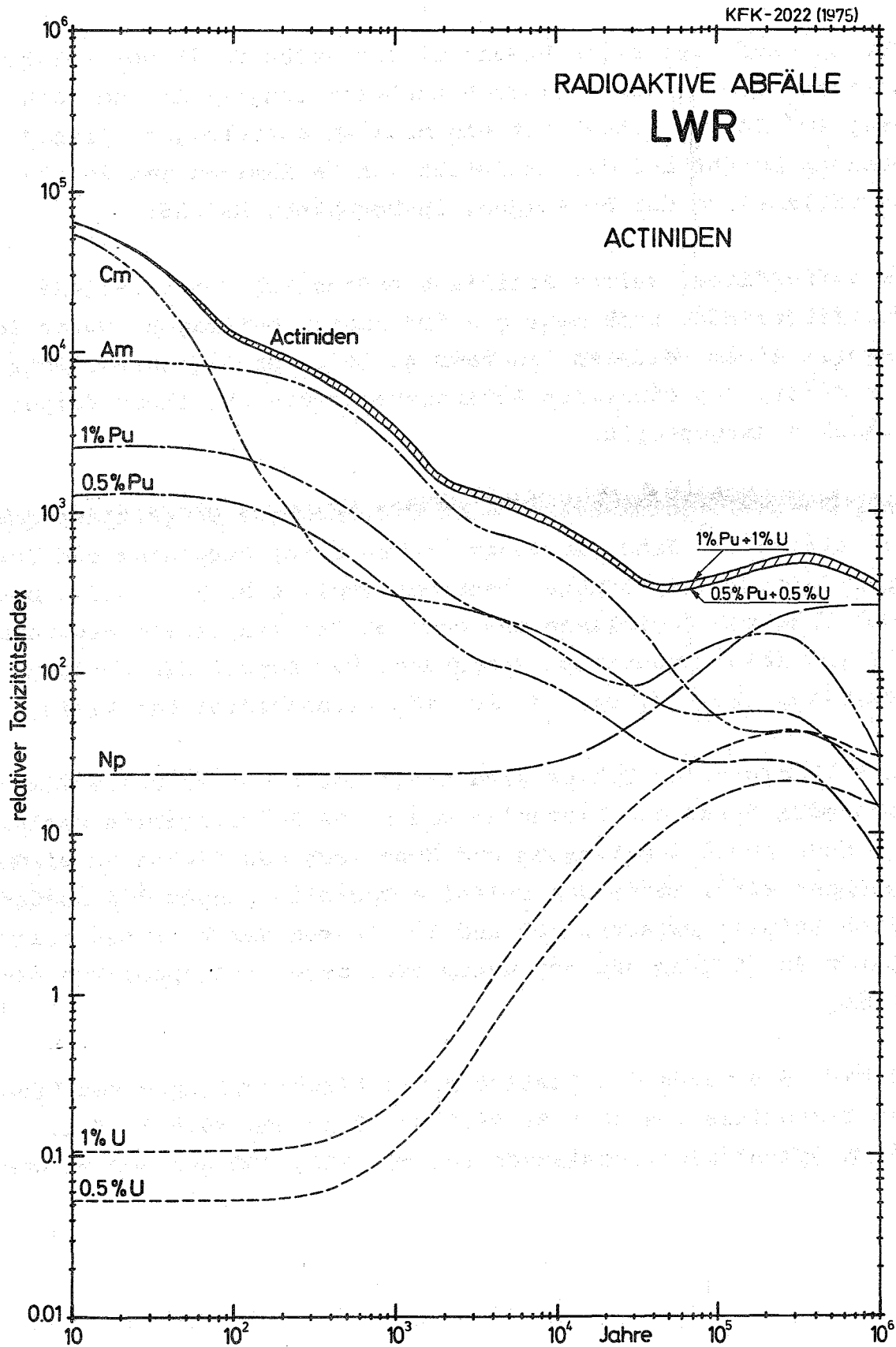


Fig. 5.3 Relativer Toxizitätsindex einzelner Actiniden im hochaktiven Abfall von LWR-Brennstoff (U-235 Zyklus), Abbrand 34 000 MWd/t SM; Wiederaufarbeitung nach 150 Tagen Kühlzeit; Verluste 1% U und 1% Pu bzw. 0.5% U und 0,5 % Pu

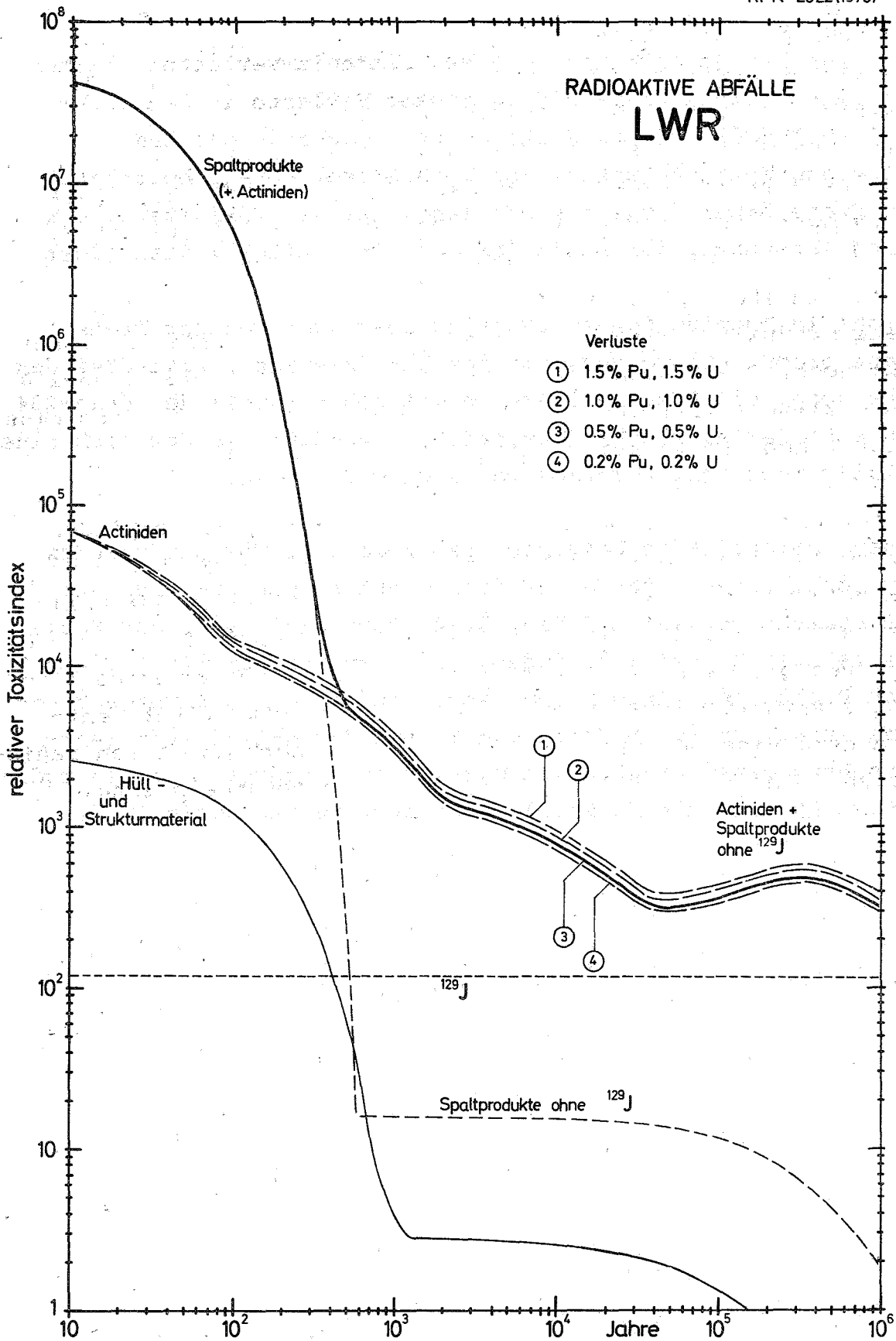


Fig.5.4 Relativer Toxizitätsindex bei hochaktiven Abfällen von LWR-Brennstoff bei verschiedenen Uran- und Plutoniumverlusten. Abbrand 34.000 MWd/t SM; Wiederaufarbeitung nach 150 Tagen Kühlzeit.

Man kann leicht erkennen, daß bei Plutoniumverlusten kleiner 1 % eine weitere Erniedrigung dieser Verluste in den hochaktiven Abfall nur unwesentlich zur Reduktion des langfristigen Toxizitätsindex von hochaktivem Abfall beiträgt. Die Frage einer Reduktion des langfristigen Toxizitätsindex durch Abtrennung der Actiniden wird in Kapitel 7 diskutiert.

Obwohl im Thoriumbrennstoffzyklus insgesamt weniger Transurane produziert werden, ist der langfristige Toxizitätsindex sehr hoch. Die Ursache liegt in dem hohen Anteil der Uran-234 ($4n + 2$)-Zerfallsreihe (Mutternuklid Pu-238), in der sich eine relativ hohe Konzentration von Radium-226 bildet.

Einen unmittelbaren Vergleich des relativen Toxizitätsindex der hochaktiven Abfälle der drei Reaktortypen LWR, SBR und HTR erlaubt schließlich Fig. 5.14. Dort sind außer der Basis des relativen Toxizitätsindex, d.h. dem Uranerz mit 0,2 w/o U, auch Pechblende eingetragen, sowie der in den USA vorgeschlagene Grenzwert für α -Waste von 10 $\mu\text{Ci}/\text{kg}$ α -Aktivität (entsprechend einem Uranerz mit 0,36 w/o U), oberhalb dessen radioaktive Abfälle als α -Abfälle gesondert zu behandeln sind.

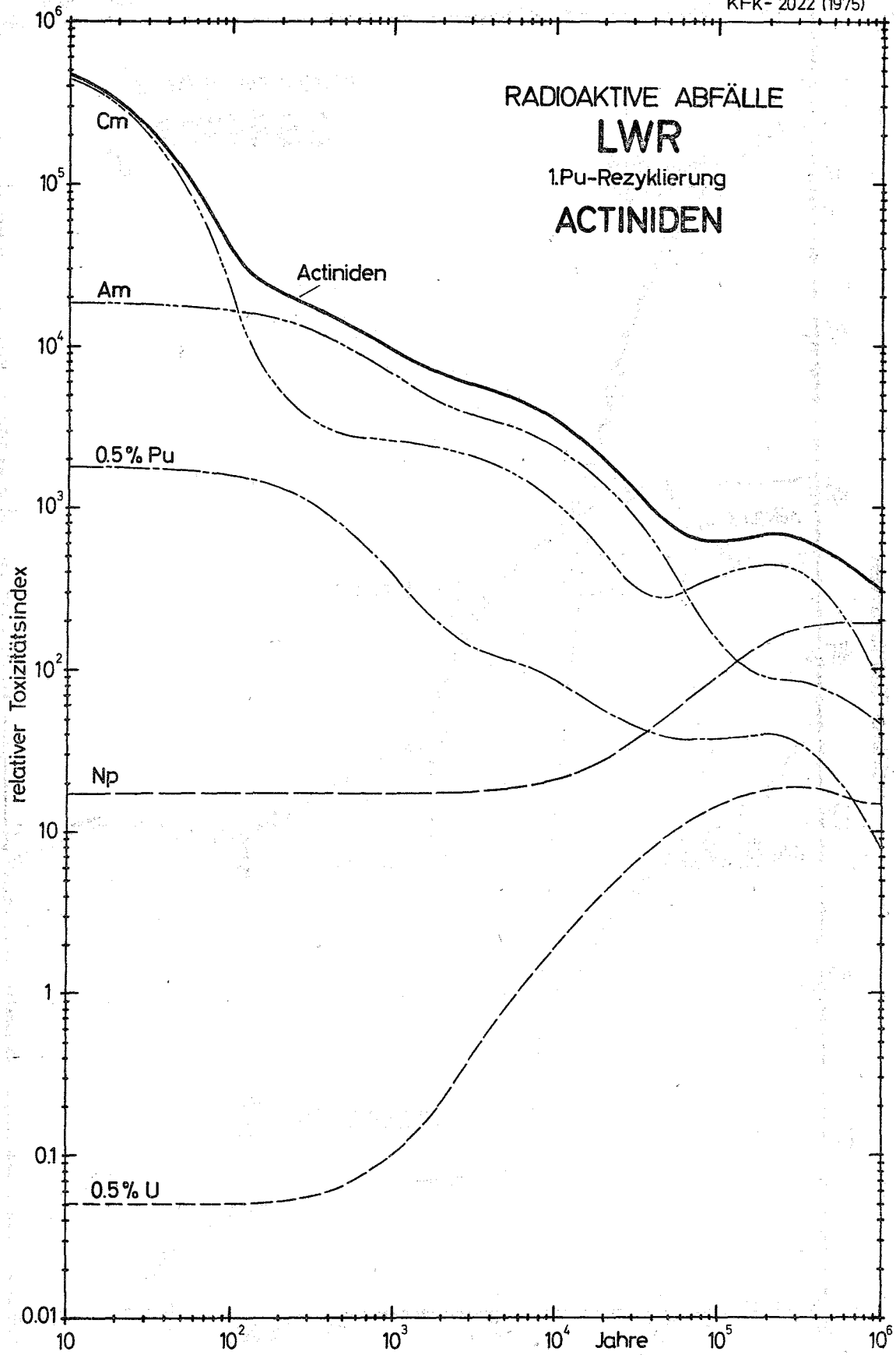


Fig. 5.5 Relativer Toxizitätsindex einzelner Actiniden im hochaktiven Abfall von LWR-Brennstoff bei 1.Pu-Rezyklierung. Abbrand 34 000 MWd/t SM, Wiederaufarbeitung nach 150 Tagen Kühlzeit, Verluste: 0.5%U und 0.5% Pu

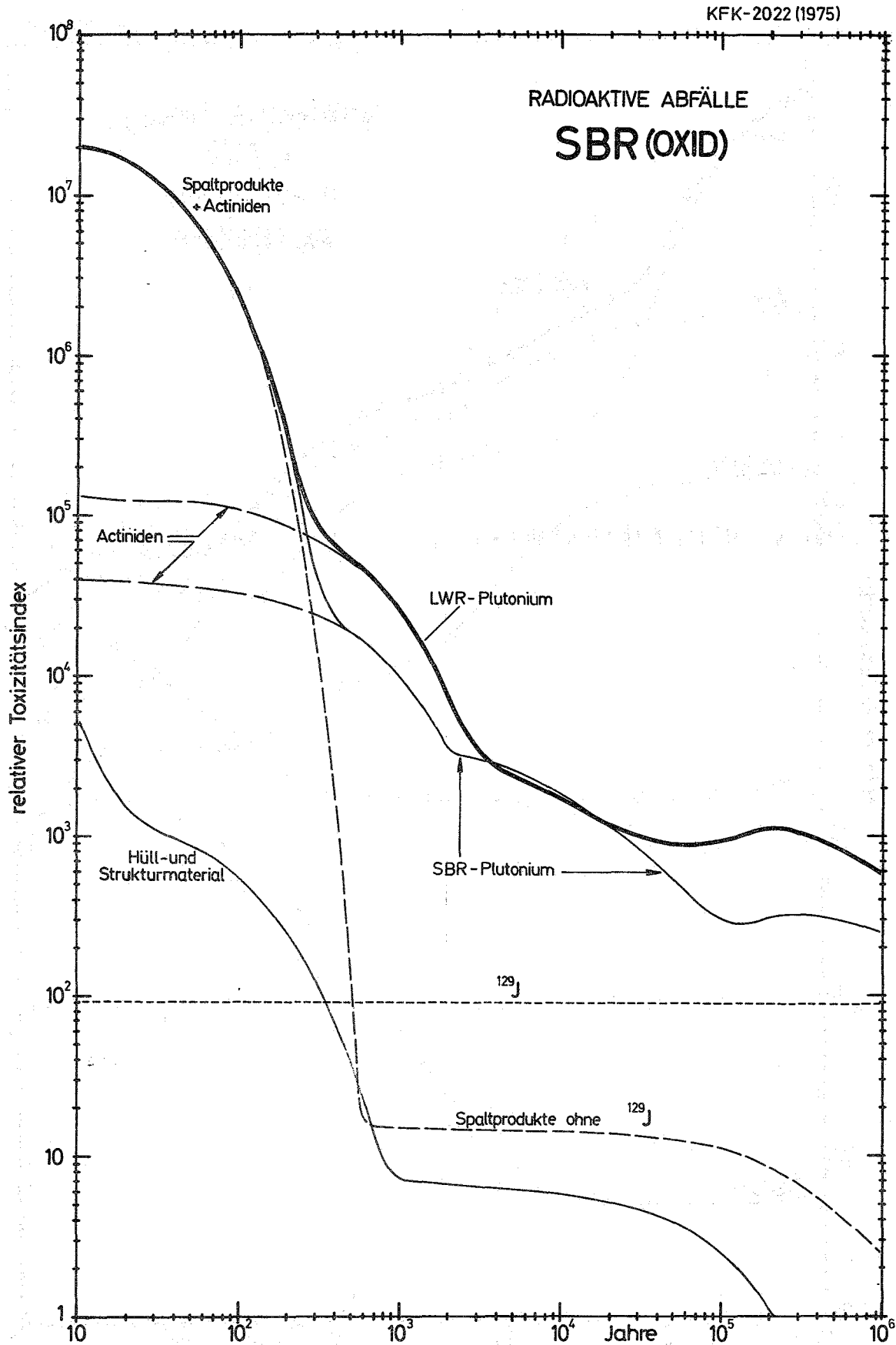


Fig. 5.6 Relativer Toxizitätsindex der hochaktiven Abfälle von SBR-Brennstoff mit LWR- und SBR-Plutonium. Abbrand Core+Blanket 34 000 MWd/t SM, Wiederaufarbeitung nach 150 Tagen Kühlzeit. Verluste 1% U und 1% Pu

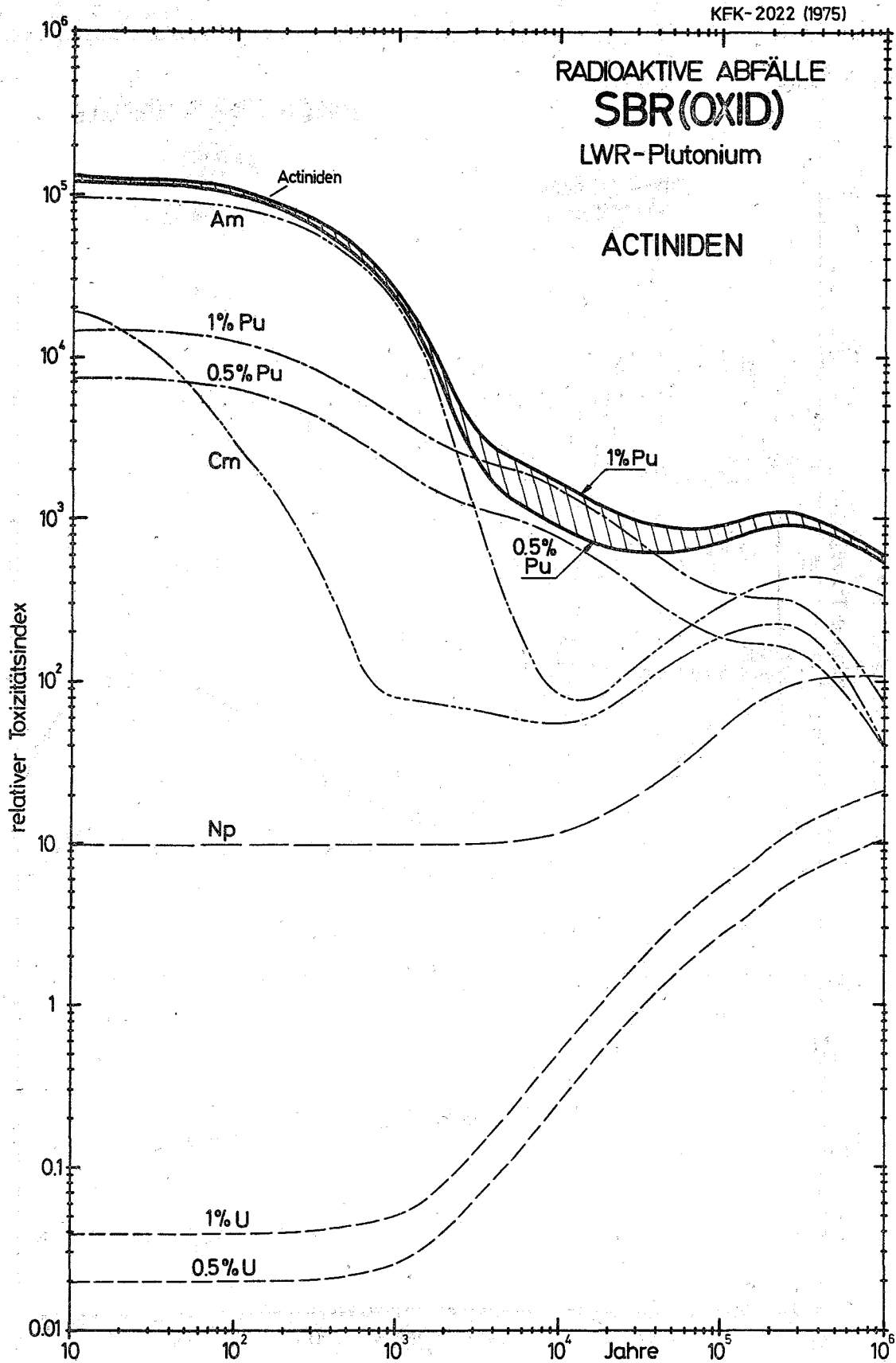


Fig. 5.7 Relativer Toxizitätsindex einzelner Actiniden im hochaktiven Abfall von SBR-Brennstoff mit LWR-Plutonium. Abbrand Core+Blanket 34 000 MWd/t SM, Wiederaufarbeitung nach 150 Tagen Kühlzeit, Verluste: 1% U und 1% Pu bzw. 0.5% U und 0.5% Pu.

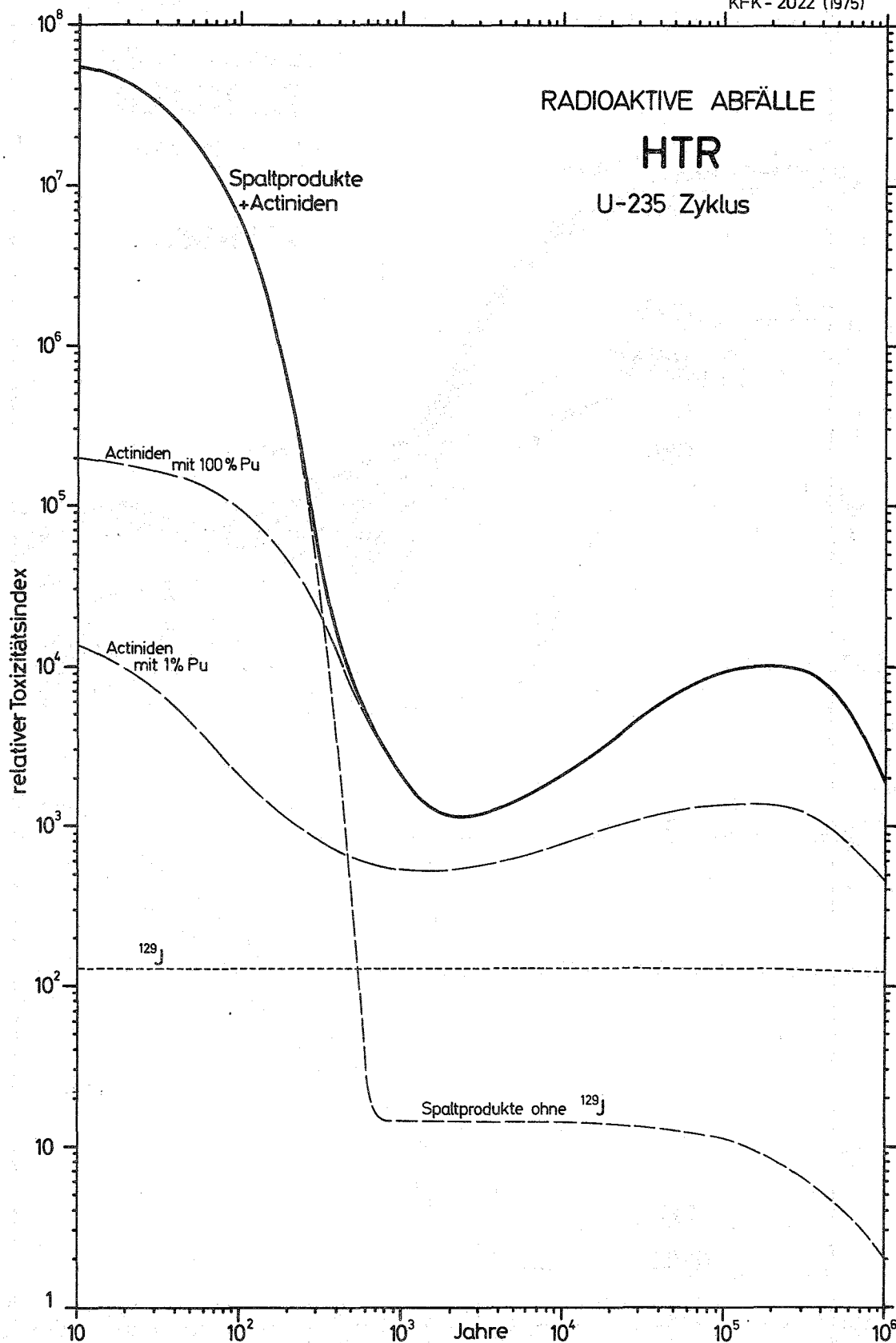


Fig. 5.8 Relativer Toxizitätsindex der hochaktiven Abfälle von HTR-Brennstoff (93% U-235), Abbrand 95000 MWd/t SM, Wiederaufarbeitung nach 270 Tagen Kühlzeit, Verluste: 1% Th und 1% U; 1% Pu oder 100% Pu im Abfall.

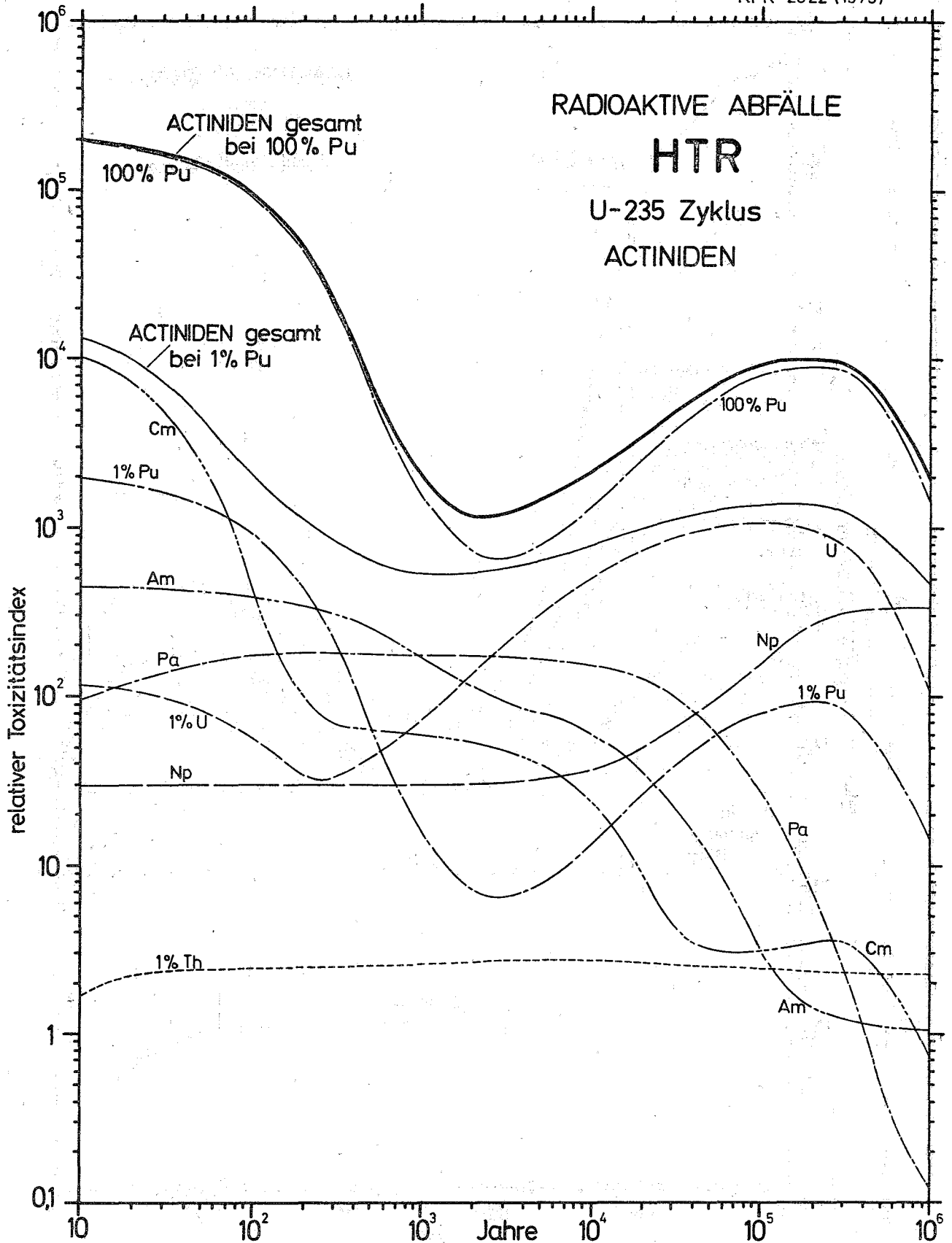


Fig: 5.9 Beitrag einzelner Actiniden zum relativen Toxizitätsindex der hochaktiven Abfälle von HTR-Brennstoff (93% U-235). Abbrand 95 000 MWd/t SM; Wiederaufarbeitung nach 270 Tagen Kühlzeit; Verluste: 1% Th und 1% U; 1% Pu oder 100% Pu im Abfall.

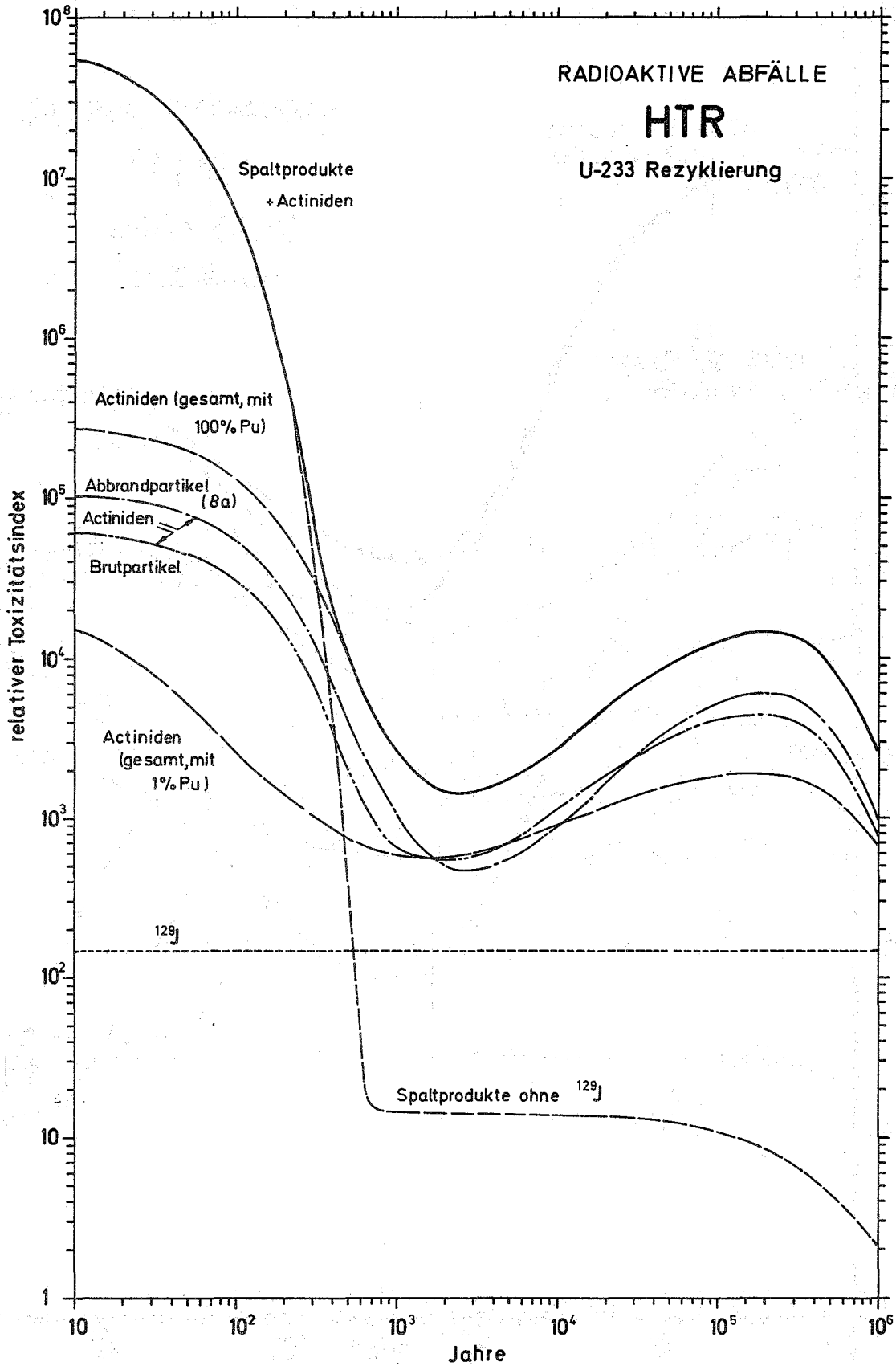


Fig.: 5.10 Relativer Toxizitätsindex der hochaktiven Abfälle von HTR-Brennstoff mit U-233 Rezyklierung. Abbrand 95000 MW d/t SM. Wiederaufarbeitung nach 270 Tagen Kühlzeit Verluste 1% Th und 1% U ; 100% Pu (oder 1% Pu) im Abfall.

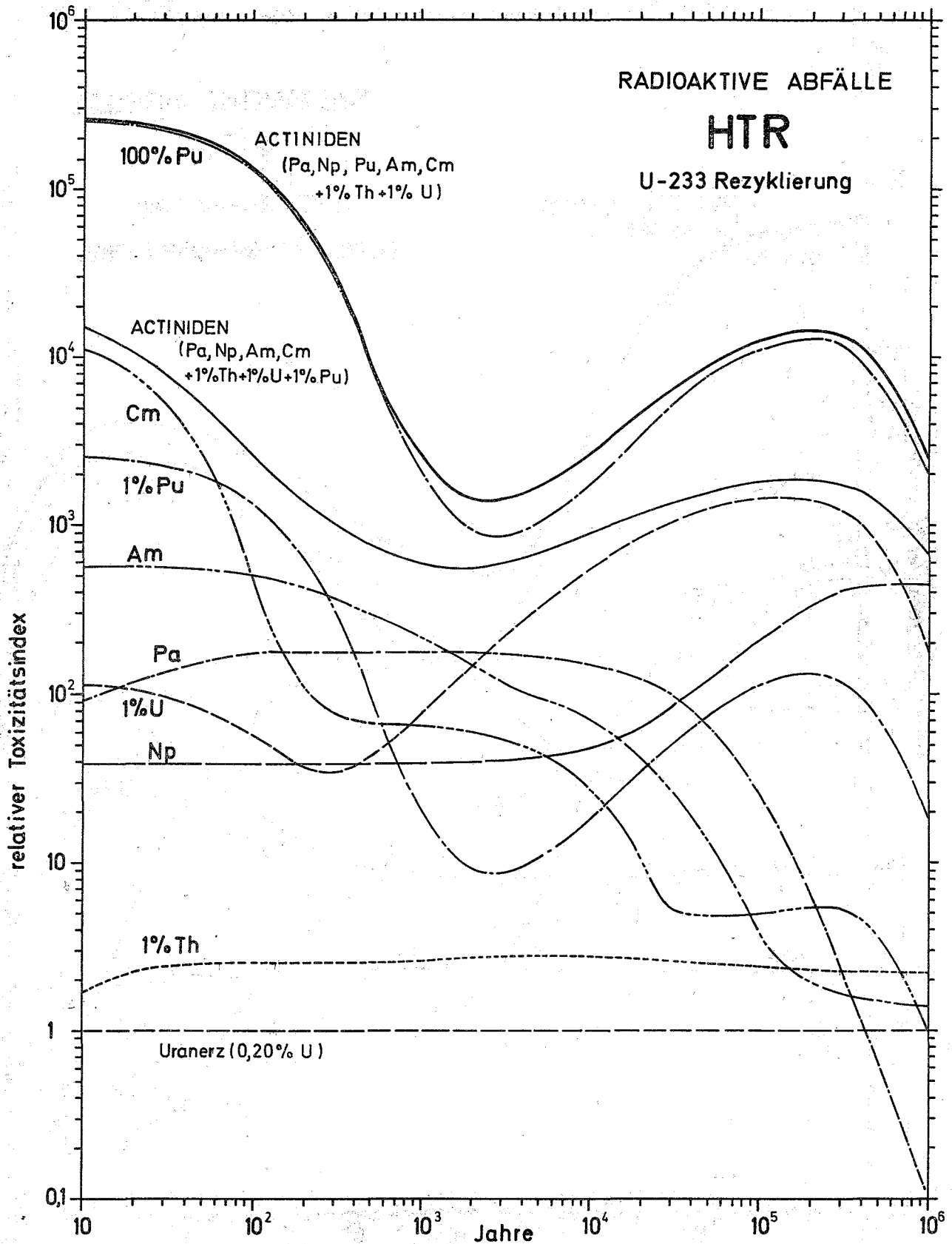


Fig.: 5.11

Relativer Toxizitätsindex einzelner Actiniden im hochaktiven Abfall von HTR-Brennstoff mit U-233 Rezyklierung. Abbrand 95000 MW d/t SM. Wiederaufarbeitung nach 270 Tagen Kühlzeit Verluste 1% Th und 1% U; 100% Pu (oder 1% Pu) im Abfall.

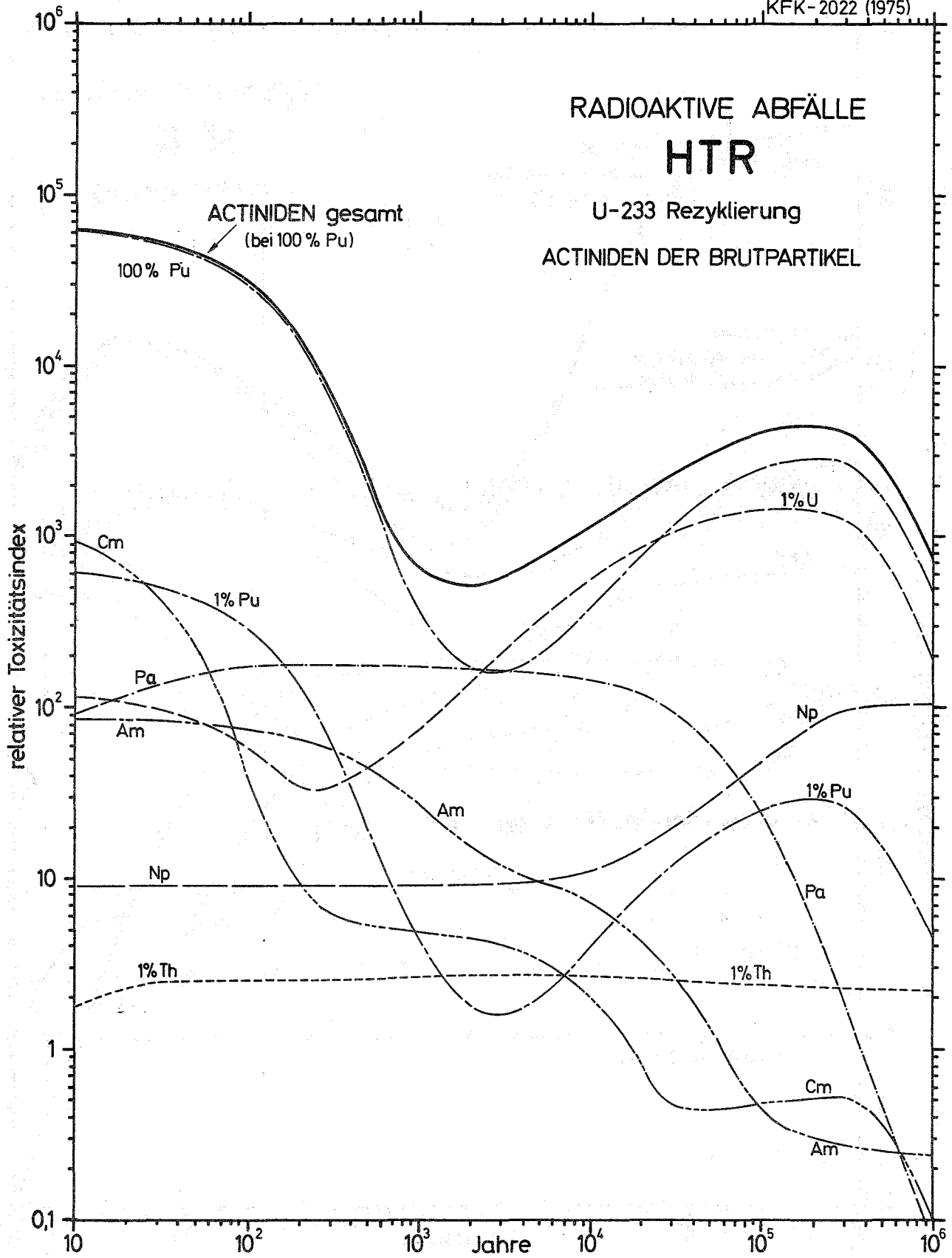


Fig. 5.12 Relativer Toxizitätsindex einzelner Actiniden in den Brutpartikeln von HTR-Brennstoff mit U-233 Rezyklierung. Abbrand 95 000 MWd / t SM; Wiederaufarbeitung nach 270 Tagen Kühlzeit; Verluste: 1% Th und 1% U; 1% Pu oder 100% Pu im Abfall.

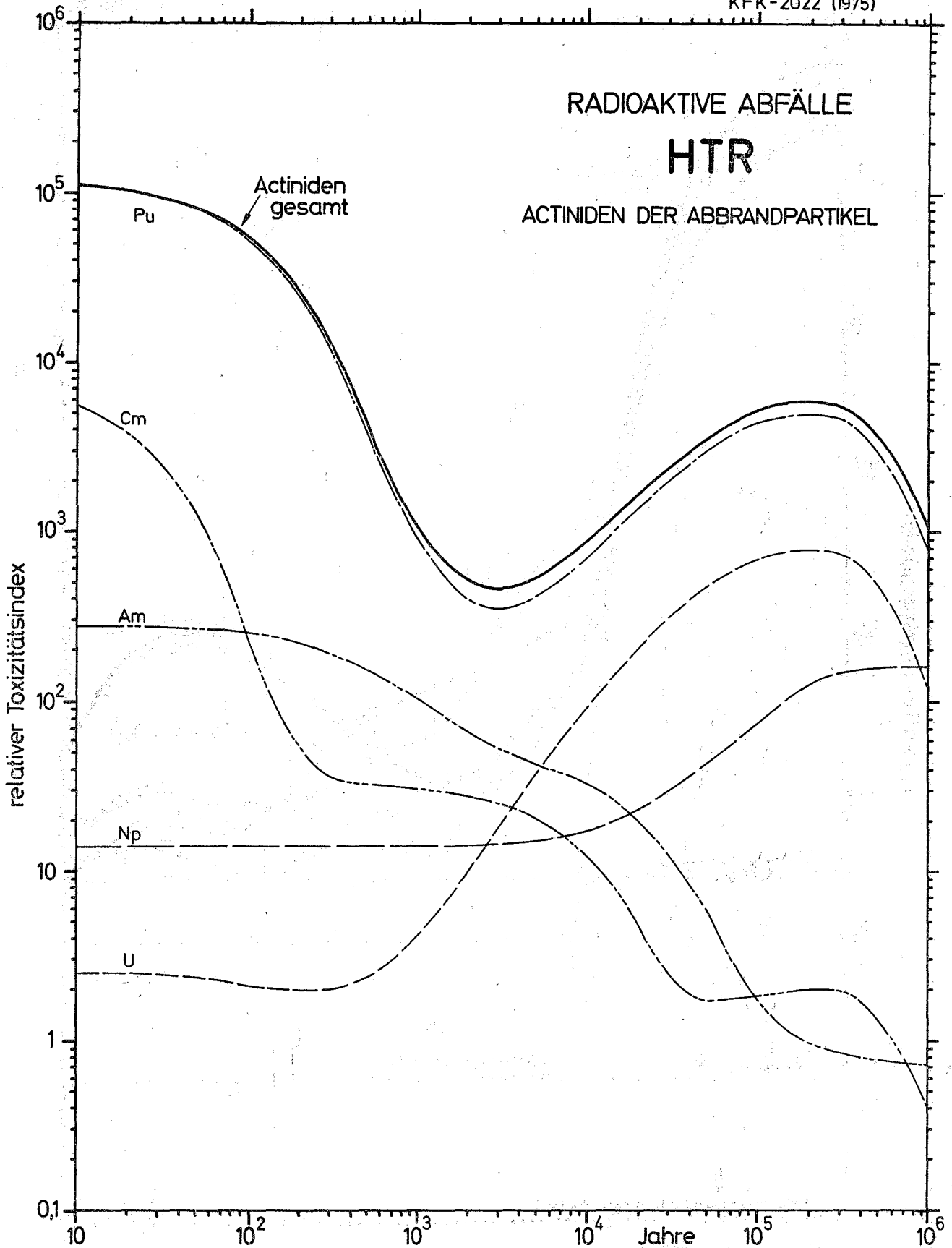


Fig. 5.13 Relativer Toxizitätsindex einzelner Actiniden in den Abbrandpartikeln von HTR-Brennstoff (U-233 Rezyklierung) nach 8-jähriger Bestrahlung. Keine Wiederaufarbeitung.

KFK-2022 (1975)

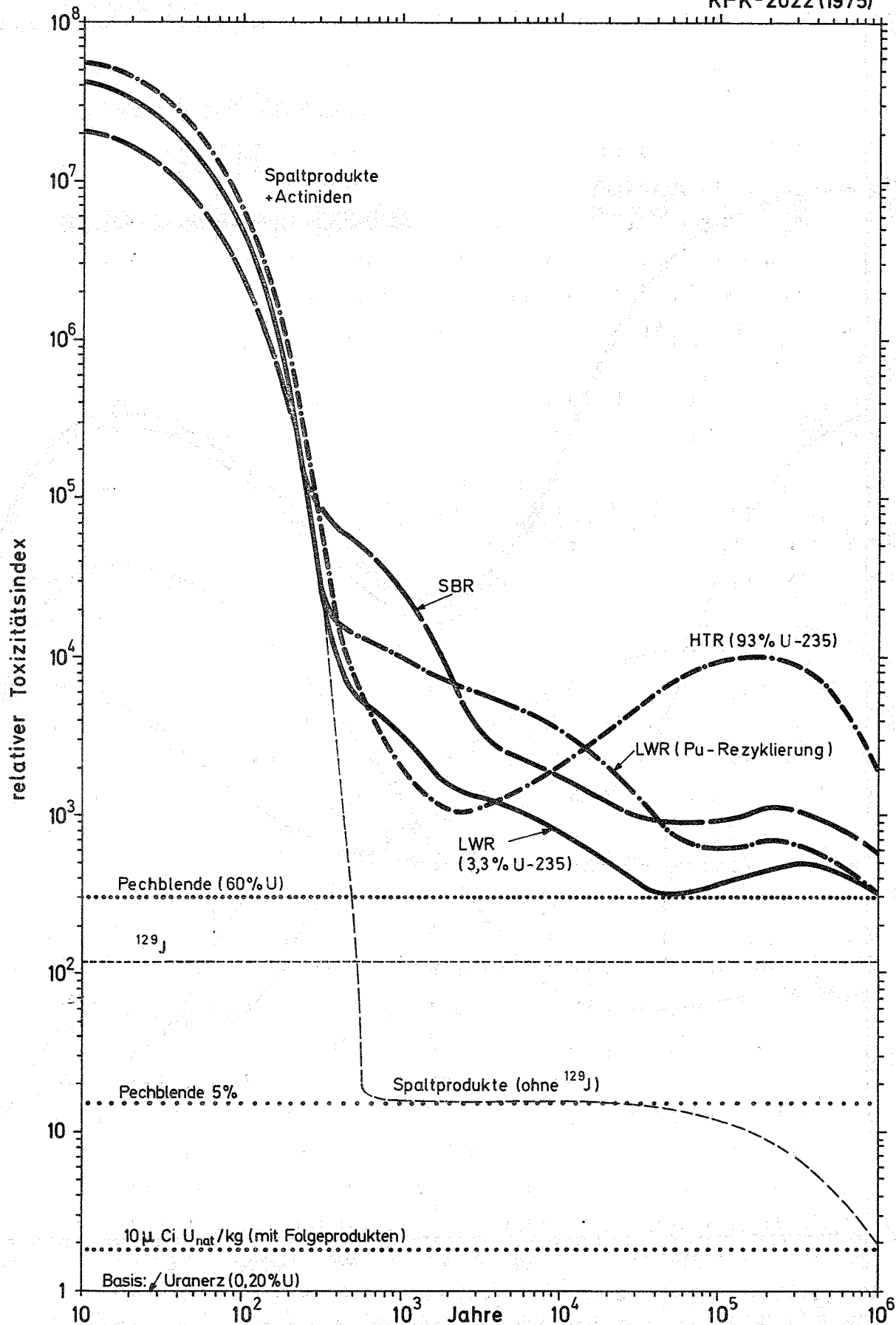


Fig. 5.14 Relativer Toxizitätsindex der verfestigten hochaktiven Abfälle von LWR, SBR und HTR Brennstoff

6. Gegenwärtig bevorzugte Waste-Management Konzepte

Die künftige kerntechnische Entwicklung in der BRD und die zu erwartenden Abfallmengen und Aktivitäten erfordern eine Lösung der Beseitigung der radioaktiven Abfallstoffe, die auch langfristig eine Gefährdung der Umwelt des Menschen mit hoher Sicherheitsgarantie ausschließt, in großem Umfang anwendbar und wirtschaftlich tragbar ist.

Für die folgenden Überlegungen werden die Arten der Beseitigung radioaktiver Rückstände in 3 Gruppen eingeteilt:

- Eliminierung (ultimate disposal)
- Endlagerung (long-term disposal)
- (Zwischen-) Lagerung (interim storage, engineered storage)

Unter Eliminierung soll verstanden werden, daß nach erfolgreicher Durchführung der Maßnahmen zur Beseitigung der radioaktiven Abfälle diese unter keinen Umständen mehr in den Biozyklus zurückkehren können. Dies kann nur durch die Beförderung in den Weltraum (beispielsweise aus dem Sonnensystem hinaus) oder durch Kernumwandlung und Kernspaltung (siehe Kapitel 7) geschehen.

Endlagerung wird definiert als eine Abfallbeseitigung durch langfristige Lagerung der radioaktiven Rückstände in der Erde bis zum praktisch völligen Zerfall der Radionuklide. Einige Jahre nach der Einlagerungsperiode werden dabei die Abfälle als nicht wieder herausholbar betrachtet. Langfristig bedeutet hier eine über geologische Zeiträume sich erstreckende Abfallbeseitigung bis zum Zerfall auch der langlebigen Nuklide und deren radioaktiven Zerfallsprodukte. Bei diesem Konzept ist jedoch unter besonders ungünstigen Umständen eine unkontrollierbare Rückkehr radioaktiver Stoffe in die Biosphäre nicht absolut auszuschließen. Zu dieser

Beseitigungsart gehört die Endlagerung in bestimmten geologischen Schichten des tiefen Untergrunds, z.B. in Salzlagerstätten.

Zum Unterschied von der Endlagerung ist eine kontrollierte Lagerung zu verstehen, bei der die Abfälle jederzeit wieder herausholbar sind. Die Lagerung verlangt eine ständige Beaufsichtigung. Hierzu gehört z.B. die Tanklagerung flüssiger radioaktiver Abfälle oder die Lagerung verfestigter Abfälle in Bunkern.

6.1 Verfestigung hochaktiver Abfälle

Radioaktive Abfälle werden in der BRD in verfestigter Form zur Endlagerung gebracht. Für den Transport und den Zeitraum bis zur endgültigen Versiegelung des Endlagers kann eine Freisetzung der Radionuklide durch die Verfestigungsprodukte in Verbindung mit geeigneten Transport- und Lagerbehältern sichergestellt werden. Die Verfestigungsprodukte sind auch längerfristig eine weitere Sicherheitsbarriere gegen eine eventuelle Freisetzung. Sie müssen daher hohe Beständigkeit und Auslaugresistenz besitzen, obwohl langfristig gesehen primär die Unversehrtheit und Abgeschlossenheit der Endlagerstätte gewährleistet sein muß.

Für die hochaktiven Abfälle werden an die Qualität der Verfestigungsprodukte besonders hohe Anforderungen gestellt:

- hohe Auslaugresistenz
- hohe Lösungsfähigkeit für die Oxide aller Elemente des hochaktiven Abfalls
- homogenes Produkt bei niedriger Herstellungstemperatur
- hohe mechanische Festigkeit
- gute Wärmeleitfähigkeit

Als Verfestigungsprodukt sind Gläser, Glaskeramiken, Glasperlen eingebettet in eine Metallmatrix u.a. in der Entwicklung. Am meisten Erfahrung liegt über Gläser vor. Wegen ihrer guten Eigenschaften sind in der BRD - und in anderen Ländern - Borosilikatgläser vorgesehen, jedoch sind die Entwicklungsarbeiten noch nicht abgeschlossen und eine Entscheidung ist noch nicht gefallen /L3,S2/.

Borosilikatgläser besitzen ein Lösungsvermögen von ca. 20 bis 25 % Oxide der Abfallstoffe, Phosphatgläser eine höhere Aufnahmefähigkeit von ca. 35 % Oxide bei guter Auslaugresistenz.

Nachteile der Gläser /L3/ sind ihre Neigung bei höheren Temperaturen, wie sie durch die Zerfallswärme erzeugt werden, zu kristallisieren: Phosphatgläser neigen bei über 400°C zur Kristallisation, wodurch sich die Auslaugbarkeit um ca. 3 Größenordnungen /B14/ erhöht. Bei Borosilikatgläsern, die erst bei höherer Temperatur kristallisieren (500 bis 700°C), scheinen nur die nichtkristallinen Anteile eine höhere Auslaugbarkeit zu besitzen, nicht jedoch die kristallinen /E3/. Es besteht daher die Tendenz, die Gläser unmittelbar nach der Herstellung gezielt zur Kristallisation zu bringen.

Durch Erhöhung der Wärmeleitfähigkeit könnte die Temperaturdifferenz zwischen dem Inneren der Glasblöcke und dem einschließenden Salz vermindert werden, wodurch auch im Zentrum der Glasblöcke Temperaturen unterhalb des Kristallisationsintervalls möglich würden. Gute Wärmeleitfähigkeit kann durch eine Metallmatrix erhalten werden, in die das Glas in Form kleiner Perlen eingebettet ist /E2/. Das Matrixmetall muß allerdings gegen Natriumchlorid und Wasser korrosionsbeständig sein, damit für solche Blöcke die gleiche hohe Auslaugbeständigkeit resultiert, wie sie bei Glasblöcken gefunden wurde.

Ein Verfestigungsprodukt mit günstigen Eigenschaften, das ebenfalls von einer Metallmatrix durchsetzt wäre, entsteht bei der Verfestigung des hochaktiven Abfalls nach dem - gleichfalls in der Entwicklung befindlichen - Thermitverfahren /R1/.

Über das Verhalten von Plutonium, Americium und Curium im Glas ist noch wenig bekannt, und die Qualität der derzeitigen Produkte läßt die Frage, ob die Actiniden mit der Hauptmenge des hochaktiven Abfalls zusammen verfestigt oder vor der Verfestigung abgetrennt und anders weiterbehandelt werden sollen, noch offen /L3/.

Die Aufnahmefähigkeit von Borosilikatglas ist mengenmäßig bei ca. 25 % Oxide der Abfallstoffe oder thermisch bei 40 W/l Glas, wenn die Wärmeabfuhr durch Salzgestein gemäß der im Abschnitt 6.3 angegebenen Geometrie der Lagerung erfolgt, begrenzt. Für die Verglasung (4 a nach der Wiederaufarbeitung) errechnen sich auf der Basis von Tabelle 3.2 und 4.1 bzw. 4.2 die Werte von Tabelle 6.1 pro Tonne LWR-Brennstoff (3,3 % U-235 Zyklus; 34000 MWd/t SM) und HTR-Brennstoff (93 % U-235 Zyklus; 95000 MWd/t SM).

Bei 25 % Oxide im Glas und einer Dichte des Glases von $\rho = 2,8 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$ errechnen sich folgende Glasmengen (Mittelwerte):

	Gewicht [kg/t SM]	Volumen [l/t SM]
- LWR Waste	180	65
- LWR Waste mit Gd	250	90
- SBR Waste	225	80
- HTR Waste	475	170

Tabelle 6.1: Zusammensetzung und Menge der Abfalloxide im HLW von LWR- und HTR-Brennstoff

	LWR [kg/t SM/]	HTR [kg/t SM/]
nichtflüchtige Spaltprodukte	29,7	82,3
Actiniden		
Th		(1 %) 8,5
U	(0,5 %) 4,8	(1 %) 0,52
Np	0,50	1,76
Pu	(0,5 %) 0,05	(100 %) 1,28
Am, Cm	0,20	0,07
Korrosionsprodukte (Fe, Ni, Cr)	1,52	2,18
Metalle insgesamt ca.	36,8	96,6
ungerechnet in Oxide ca.	45,0	117,6
lösliches Neutronengift Gd	16,0	
gesamte Oxide ca.	63,5	

Bei einer flüssigen Zwischenlagerung von weniger als 3 Jahren kommt die thermische Begrenzung von 40 W/l zum Tragen (Wiederaufarbeitung von LWR-Brennstoff nach 150 Tagen Kühlzeit).

Alter des Waste [Jahre]	1	3	5	10
Aktivität [kCi/t SM]	1700	710	465	325
Wärmeleistung [kW/t SM]	8,3	3,2	1,9	1,2
Glasmenge [l/t SM]	207	80	(48)	(30)

Für diese Arbeit wird angenommen, daß die Zwischenlagerung so lange sein wird, daß eine thermische Begrenzung nicht zum Tragen kommt.

In Tabelle 6.2 wurden die Actinidenkonzentrationen [g pro kg Verfestigungsprodukt] in den verfestigten hochaktiven Abfällen (HLW) (hier z.B. Glas mit 25^W/o Abfalloxiden; Dichte 2,8 g·cm⁻³) von LWR- und HTR-Brennstoff verglichen. Die Rechnungen beziehen sich auf den Zeitpunkt 5 Jahre nach der Wiederaufarbeitung, wobei beim HTR das gesamte Pu in den hochaktiven Abfall gehe.

Tabelle 6.2: Actinidenkonzentrationen in den verfestigten hochaktiven Abfällen (5 Jahre nach der Aufarbeitung)

	LWR		HTR	
	[g/kg HLW]	[Ci/kg HLW]	[g/kg HLW]	[Ci/kg HLW]
Th			(1 %) 17,9	0,005
Pa			0,04	0,004
U	(0,5 %) 26,7	10 ⁻⁴	(1 %) 1,10	0,011
Np	2,77	0,11	3,70	0,016
Pu	(0,5 %) 0,28	3,0	(100 %) 2,67	42,5
Am	0,85	1,2	0,12	0,18
Cm	0,24	12,9	0,04	2,65

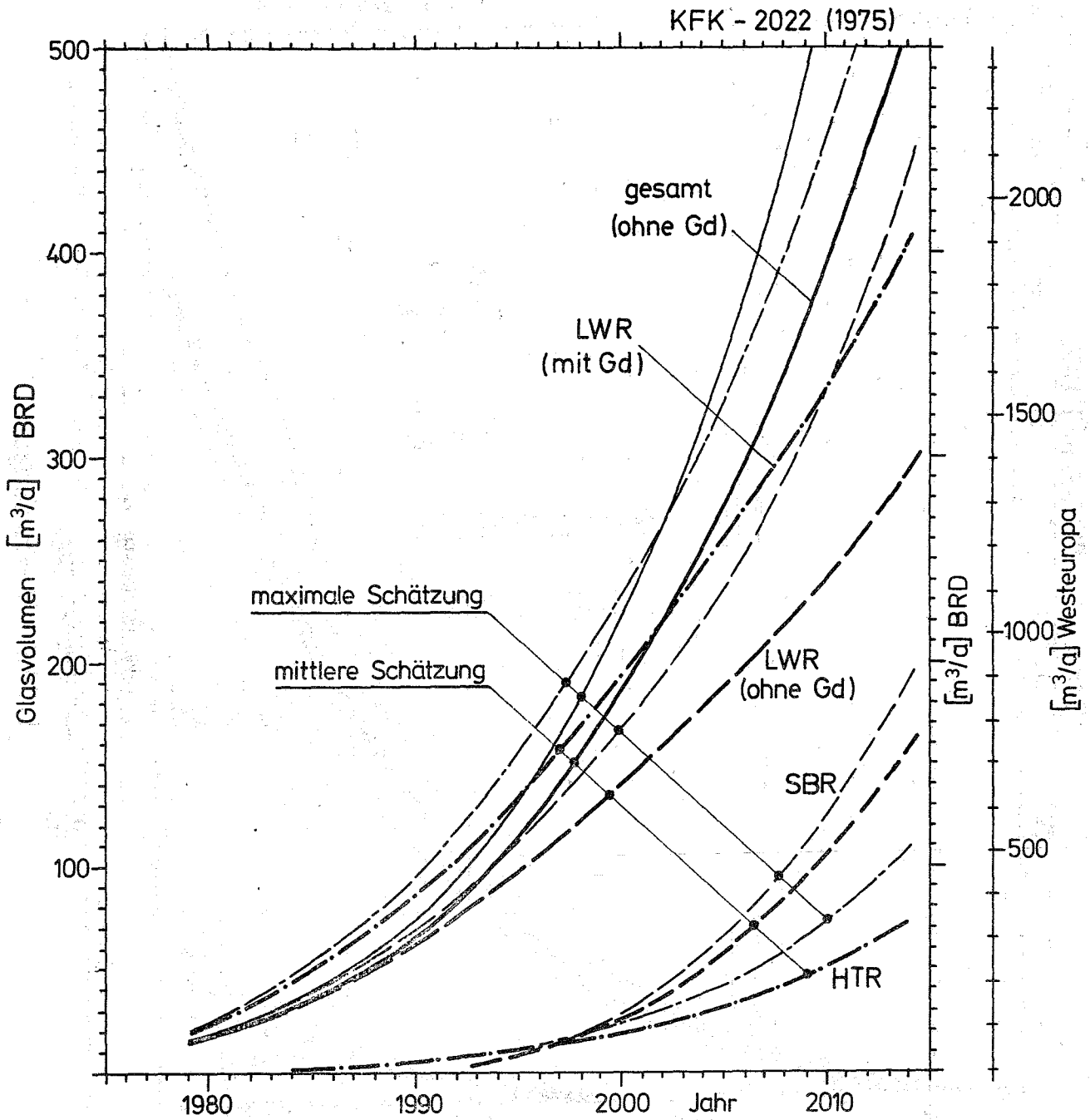


Fig. 6.1 Jährliche Produktion von verglastem hochaktivem Abfall bei mittlerer und maximaler Schätzung. (Verglasung nach 4 Jahren flüssiger Zwischenlagerung)

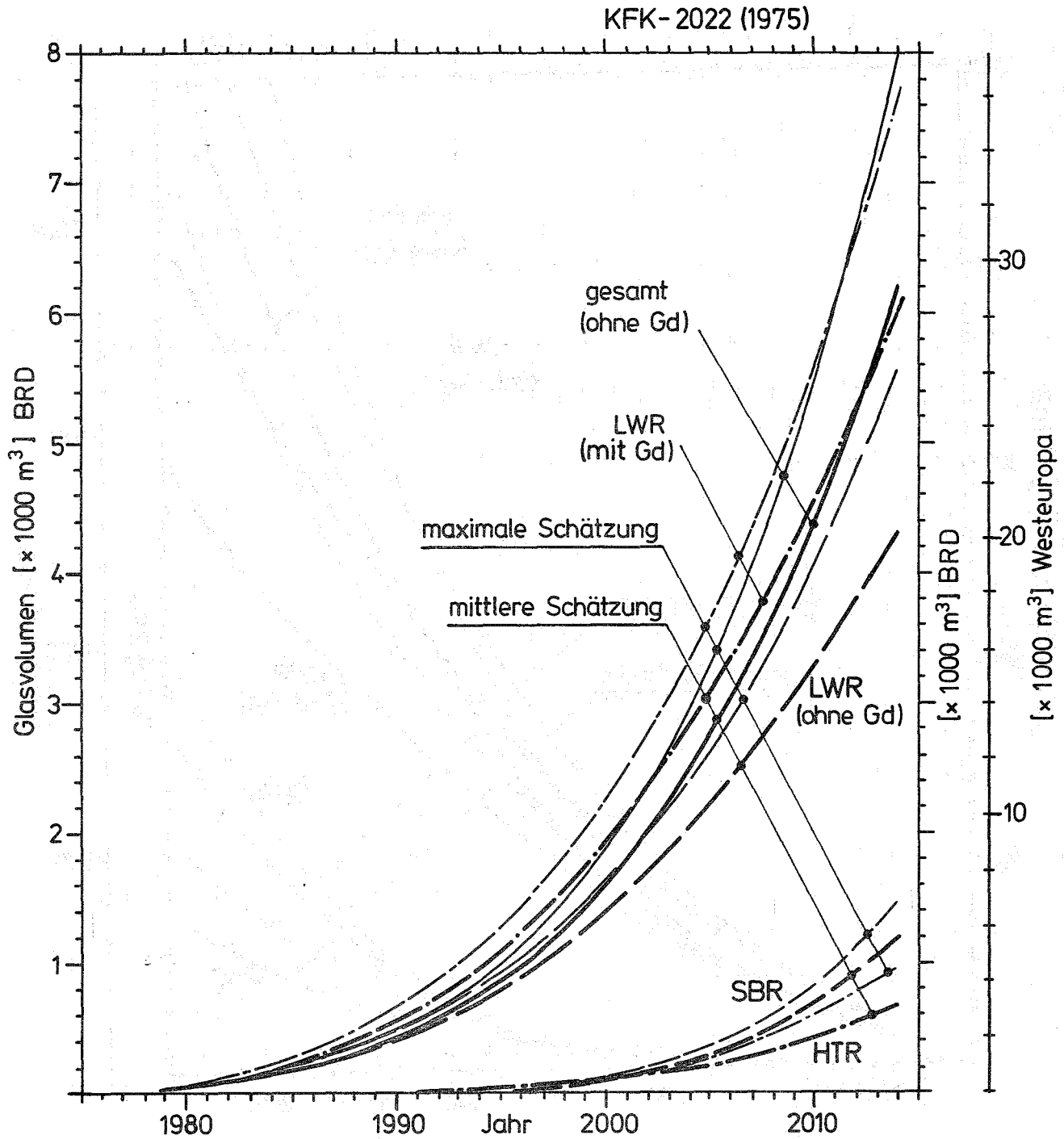


Fig. 6.2 Integrale Produktion von verglastem hochaktivem Abfall bei mittlerer und maximaler Schätzung (Verglasung nach 4a)

Bei der Rezyklierung des Plutoniums ändert sich der Spaltproduktgehalt des hochaktiven Abfalls nur unbedeutend, der Gehalt an Transuranen, in erster Linie Am und Cm, würde stark ansteigen.

Ein deutlicher Unterschied im Vergleich zum LWR besteht beim verfestigten hochaktiven Abfall des HTR durch den um etwa 1 Größenordnung höheren Gehalt an Plutonium (ca. 65 % Pu-238, ca. 15 % Pu-239) /S14/.

In Fig. 6.1 ist die jährliche Produktion von verglastem hochaktiven Abfall für die BRD (und Westeuropa) dargestellt. Für die Berechnung wurde der Bedarf an Wiederaufarbeitungskapazität von Fig. 2.7 zugrundegelegt und eine 4-jährige flüssige Zwischenlagerung der hochaktiven Abfallkonzentrate angenommen. Die im Endlager sich akkumulierenden Glasmengen sind in Fig. 6.2 eingetragen.

6.2 Endlagerung in Formationen des tiefen Untergrunds

Radioaktive Spaltproduktabfälle müssen über Jahrhunderte, solche die langlebige, α -strahlende Actiniden (z.B. Pu) enthalten, über Zeiträume von Millionen Jahren sicher gelagert werden. Nach erfolgter endgültiger Einlagerung und Versiegelung des Endlagers muß garantiert sein, daß eine Wartung oder Aufsicht nicht mehr nötig ist. Ein Überwachungssystem ließe sich weder über viele Jahrhunderte, schon gar nicht über zehntausende bis Millionen Jahren gewährleisten.

Von der Endlagerung muß daher gefordert werden, daß unter allen vorhersehbaren Umständen die Radionuklide nicht mehr in die Biosphäre zurückkehren können. Für die Endlagerung

bieten sich insbesondere geologische Schichten des tiefen Untergrunds an. Für die Sicherheit ist primär die Unversehrtheit und Abgeschlossenheit der Endlagerstätte entscheidend. Daher folgt für die Wahl der Formation und für die Lagerbedingungen die Forderung, durch eine Risikoanalyse auch langfristig in die Zukunft mit hoher Zuverlässigkeit Aussagen über Ereignisketten, die zu einer möglichen Freisetzung von Radionukliden führen könnten, machen zu können. Hierzu gehört nicht nur eine Berücksichtigung möglicher Unfälle während der Einlagerung, sondern auch eine Analyse möglicher Katastrophen wie Erdbeben, Flutkatastrophen, Wassereintrich in die unterirdischen Lagerstätten, Vulkanismus, Meteoriteneinschlag, Gebirgsverformungen etc. und Zerstörungen durch Sabotage und Krieg.

Bei der Lagerung in geologischen Formationen des tiefen Untergrunds wäre als Transportmedium für eine Rückkehr von Radionukliden Wasser von besonderer Bedeutung. Die radioaktiven Abfälle in einem Endlager dürfen daher nicht mit Wasser in Berührung kommen, das wieder im Biozyklus erscheinen könnte. Die Lagerstätte muß trocken bleiben, bis die radioaktiven Stoffe praktisch zerfallen sind.

Die gestellten Forderungen gelten am ehesten durch tief-
liegende Salzformationen erfüllt /K1,K2/. Eine Lagerung im Salzgestein eigne sich prinzipiell für alle Aktivitätsklassen. Salzlagerstätten haben folgende Vorteile:

- Allein die Existenz des Salzgesteins beweist, daß es mit Grundwasser fast keinen Kontakt hat, denn sonst wären die Salzformationen in den geologischen Zeiträumen seit ihrer Entstehung wieder aufgelöst worden. Der Salzbergbau kennt völlig trockene Bergwerke.

- Salzgestein verhält sich unter ausreichendem Gebirgsdruck plastisch. Spalten und Klüfte verschließen sich daher von selbst.
- Steinsalz ist folglich vollkommen dicht und undurchlässig für Flüssigkeiten und Gase.
- Salz ist verglichen mit anderem Gestein ein relativ guter Wärmeleiter, so daß die durch radioaktiven Zerfall entstehende Wärme in ausreichendem Maße abgeführt werden kann.
- Wie der Salzbergbau zeigt, können im Salzgestein zu relativ niedrigen Kosten große Hohlräume hergestellt werden, die ohne Abstützung über längere Zeiträume stehen bleiben.
- Ein Sicherheitsfaktor für den Zeitraum der Einlagerung bis zum Verschließen der Lagerstätte liegt auch darin, daß selbst für den Fall, daß bei einem Wassereinbruch das Lager mit Wasser vollaufen sollte, die Lauge wegen der Undurchlässigkeit des Salzgesteins nicht nach außen entweichen kann.
- Steinsalz sei in vielen Ländern in ausreichender Menge vorhanden.

Während die Endlagerung schwach- und mittelaktiver verfestigter Abfälle in Salzformationen als eine geeignete Lösung angesehen wird, werden zur Lagerung von hochaktiven Abfällen im Salz Bedenken geäußert /K3/:

- Die Anwesenheit von Salz garantiert für die geologische Vergangenheit, daß kein Wasser anwesend war. Die Kehrseite ist, daß Salz wasserlöslich ist und Wasser durch eine Änderung der geologischen Struktur in der Zukunft eindringen könnte.
- Eine große Unsicherheit besteht durch Einwirkungen des Menschen. Es ist z.B. nicht auszuschließen, daß Wasser durch Bohrlöcher eindringt und auch wieder abfließt, obgleich im bisherigen Salzbergbau in einer Reihe von Beispielen das Wasser in den ersoffenen Gruben stehen blieb.

Solche teilweise unbekanntes Bohrlöcher waren einer der Gründe, der in den USA zur Aufgabe der Lyons Mine in Kansas als radioaktives Endlager führte /K3/. In Jahrhunderten oder Jahrtausenden wäre nicht auszuschließen, daß die Informationen über ein Endlager hochaktiver Abfälle verloren gehen und neue Bohrungen (z.B. bei der Suche nach Rohstoffen) niedergebracht würden. Bei der Verwendung von Schichtsalz für ein Endlager für hochaktive und α -Abfälle (wie es in den USA konzipiert wurde /B11/) scheinen solche Bedenken nicht leicht von der Hand zu weisen zu sein, da bekannt ist, daß unter den Salzsichten häufig Ölvorkommen sind.

Anders dürften nach Meinung des Verfassers die Verhältnisse bei Salzdomen liegen, vor allem wenn die hochaktiven Abfälle tief genug (z.B. über 1000 m tief) eingelagert werden. Der ASSE-Sattel (vgl. Abschnitt 6.4) reicht beispielsweise von ca. 300 m bis über 3000 m Tiefe (die untere Grenze ist noch nicht genau bekannt). Für den hypothetischen Einschlag eines großen Meteoriten einerseits und für den Fall andererseits, daß die Information über das Endlager verloren ginge, würde sowohl für die Einwirkung des Menschen (Salzgewinnung, Lagerkavernen) ein mächtiges, schützendes Salzgebirge über

KFK - 2022 (1975)

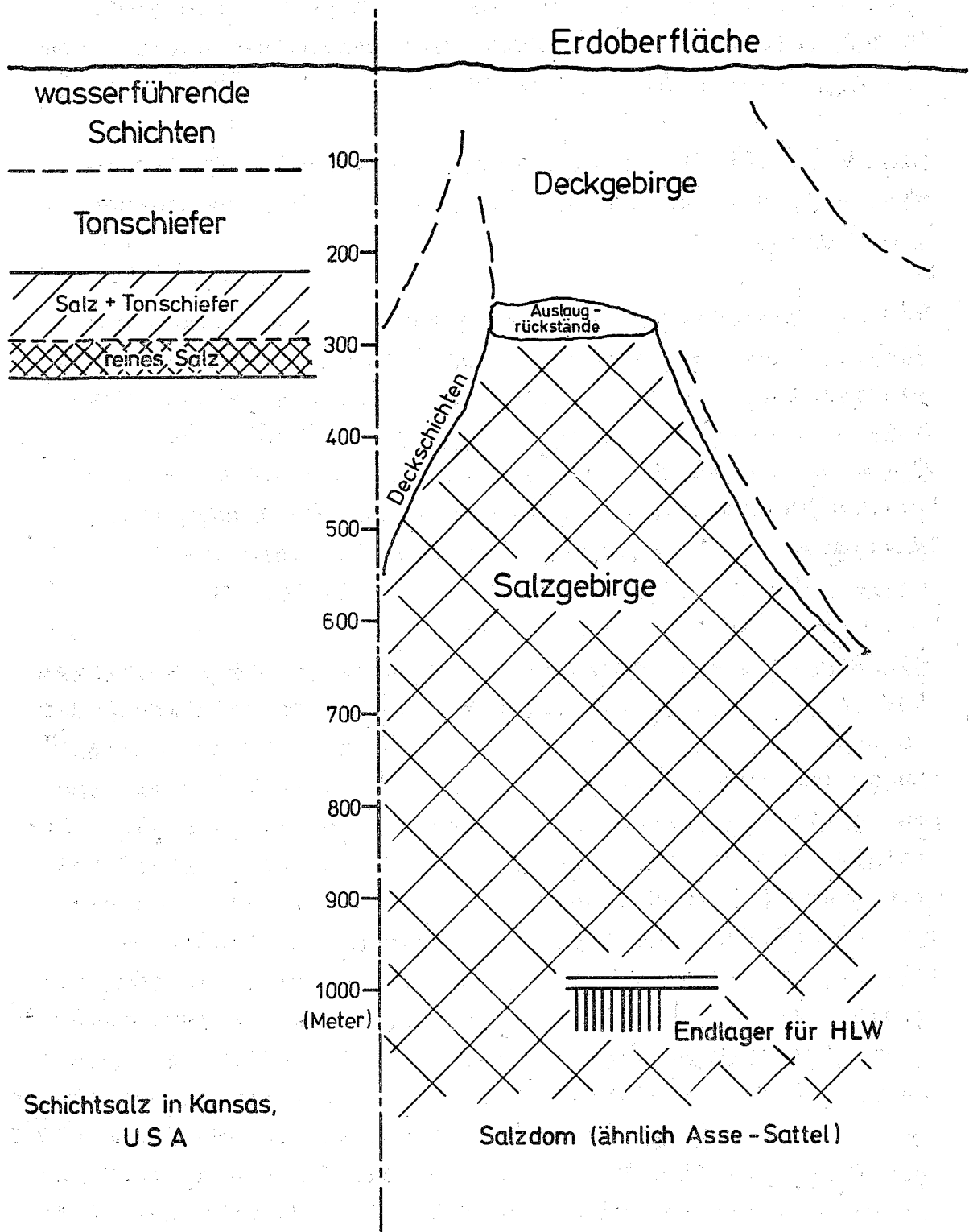


Fig. 6.3 Skizze zum Vergleich zwischen Schichtsalz und einem Salzdom für mögliche HLW-Endlagerstätten (nach HAMSTRA/H 15/).

dem radioaktiven Material lagern, als auch in so große Tiefen reichen, daß die Suche nach Rohstoffen unter einem Salzdom uninteressant sein würde.

Die Verhältnisse von Schichtsalz und Salzdom sollen in Fig. 6.3, die auf HAMSTRA /H15/ zurückgeht, veranschaulicht werden.

Für die Einlagerung sei hier angenommen, daß eine Verfestigung der hochaktiven Rückstände durch Einschmelzen in Glaskörper erfolge. Nach einer aussichtsreichen Verfahrenskonzeption sollen die flüssigen Abfälle zur Trockene eingedampft, kalziniert und mit Hilfe von Zusätzen zu Borosilikatgläsern verschmolzen werden /G4/. Für Handhabung und Transport würde die Glasmasse in Edelstahlbehälter eingegossen und verschlossen.

Das Modell eines hochaktiven Endlagers in einem Salzstock ist in Fig. 6.4 skizziert. Die hochaktiven Abfallzylinder (Durchmesser ca. 20 cm, Länge ca. 80 bis 100 cm) müssen wegen der Selbsterhitzung in einzelnen, räumlich getrennten Bohrlöchern gestapelt werden. Der obere Teil der Bohrlöcher wird mit Beton und Salz verschlossen. Abstand und Tiefe der Bohrlöcher werden durch die maximal tolerierbare Temperatur des Salzes zwischen den Zylindern bestimmt, bei der noch eine ausreichende Wärmeableitung erfolgt, ohne daß die Oberflächen und Zentraltemperaturen in den Glasblöcken (oder ähnlichen Materialien) zu hoch werden. Bei Borosilikatgläsern wird mit Zentraltemperaturen von 500 - 600°C und Oberflächentemperaturen von 300 - 400°C gerechnet /K2, K4/. Rechnungen zeigen, daß ein Abstand der Bohrlöcher von ca. 10 m erforderlich wird, wenn die Tiefe etwa 50 m und die Höhe der gestapelten Zylinder ca. 40 m beträgt (Volumen pro Glassäule 1,25 m³).

KFK-2022 (1975)

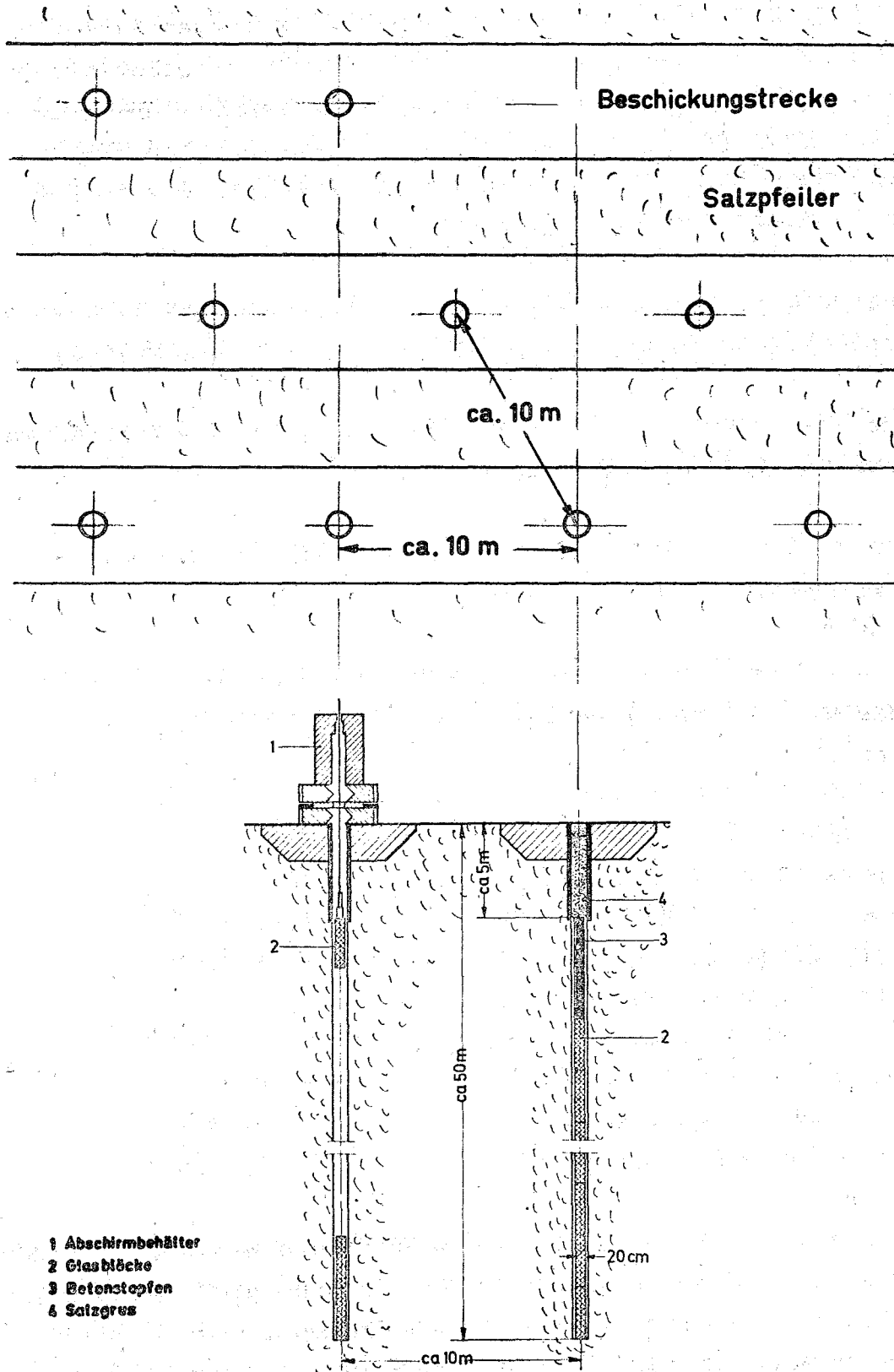


Fig.6.4 Schema der Endlagerung hochaktiver Glasblöcke
(unterer Bildteil nach KRAUSE /K2/)

In einer Modellbetrachtung soll zunächst die spezifische Beladung des Salzes mit den Radionukliden der hochaktiven Abfälle abgeschätzt und dann mit einer gleichgroßen Menge natürlicher radioaktiver Stoffe, wie Uran- und Thoriumvorkommen, verglichen werden /B1,H13,V2,K3/. Hierzu werden folgende Annahmen gemacht:

- Es erfolgt nur eine einmalige Einlagerung von hochaktiven Glasblöcken in einem bestimmten Feld des Salzstocks.
- In den belegten Feldern werden die Beschickungsstrecken wieder verfüllt und verschlossen.
- Es wird nur die Salzmenge zwischen den Glassäulen in die Betrachtung einbezogen.

Auf das Modell eines hochaktiven Endlagers nach Fig. 6.4 angewandt, würden sich folgende Zahlen ergeben:

Abstand der Glassäulen	10 m
Höhe einer Glassäule	40 m
Volumen einer Glassäule	1,25 m ³
Menge des umgebenden Salzes	($\rho = 2,16 \text{ t/m}^3$)
pro Glassäule	3460 m ³ = 7500 t
pro Tonne LWR-Brennstoff	
bei 65 l Glas/t SM	180 m ³ = 390 t
bei 90 l Glas/t SM	250 m ³ = 540 t
pro Tonne SBR-Brennstoff	220 m ³ = 480 t
pro Tonne HTR-Brennstoff	470 m ³ = 1020 t

Bei dieser Betrachtung wird der verfestigte Waste in kleinen Einheiten und in unlöslicher Form über eine große Salzschrift verteilt, die tief im Inneren des Salzdoms liegen würde. Naheliegend ist deshalb ein Vergleich des relativen Toxizitätsindex unter Einbeziehung des "verdünnenden" Salzes (z.B. bei

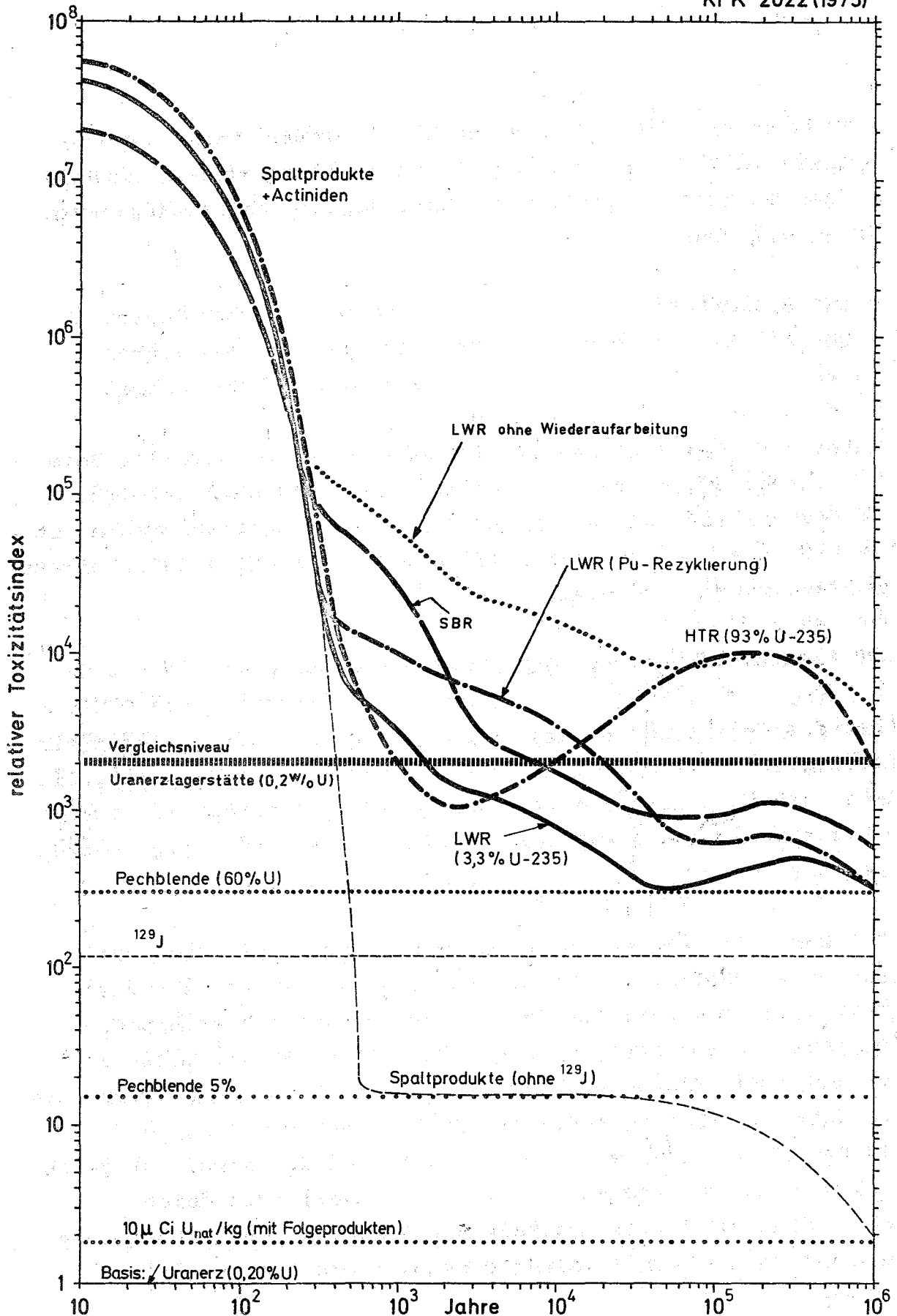


Fig. 6.5 Relative Toxizität des HLW von LWR, SBR und HTR-Brennstoff und Vergleich des HLW-Lagerfeldes (Abfallzylinder in 10 m Abstand plus umgebendes Salzgestein) mit einer gleichgroßen Uranerzlagerstätte (mit 0,2 % Urangehalt)

LWR-Waste ca. 400 t) mit einer gleich großen Menge (400 t) Uranerz (mit 0,2 % Urangehalt). Für die hochaktiven Abfälle dieses Endlagers ergibt sich dann, daß die Toxizitätskurven (Fig. 6.5) bei

- LWR-Brennstoff nach ca. 2 000 Jahren
- LWR mit Plutoniumrezyklierung nach ca. 20 000 Jahren
- SBR nach ca. 5 000 Jahren

unter die Toxizität des natürlichen Uranerzes abfällt. Beim HTR ist dies nach ca. 1000 Jahren erreicht, dann erfolgt (> 2000 Jahre) wieder ein Anstieg. (Für Vergleichszwecke ist in Fig. 6.5 auch die Toxizitätskurve von nicht aufgearbeitetem LWR-Brennstoff angegeben).

Über das Gesamtvolumen des Endlagers gesehen erfolgt langfristig (>10³ Jahre) also keine oder zumindest keine wesentliche Erhöhung des Radiotoxizitätsniveaus einer geologischen Schicht über das Niveau vergleichbarer Schichten hinaus, wie sie anderswo - auch an der Erdoberfläche - bereits vorhanden sind und die als akzeptables Risiko betrachtet werden können /H 13/.

Bei dem betrachteten Endlager-Modell beruht die Sicherheit auf einer Konzentrationsbeschränkung, die im betrachteten Fall durch die Wärmeentwicklung der anfänglich vorhandenen Spaltprodukte erzwungen wurde. Es beinhaltet die Voraussetzung, daß die Randbedingung der Konzentrationsbeschränkung im Salz auch bei verfestigten hochaktiven und sonstigen Transuran-Abfällen eingehalten wird, bei denen bedingt durch längere Zwischenlagerung (z.B. Blocklager) oder durch geringeren Spaltproduktgehalt zum Zeitpunkt der Einlagerung die geringere Wärmeleistung eine dichtere Packung erlauben würde.

6.3 Verfahren in der BRD zur Endlagerung radioaktiver Abfälle in Salzformationen

Für die Beurteilung der Eignung von Verfahren zur Endlagerung radioaktiver Abfälle in der Bundesrepublik Deutschland ist zu berücksichtigen, daß die BRD eine hohe Bevölkerungsdichte, ein relativ feuchtes Klima und einen hohen Grundwasserspiegel hat. Bei manchen Methoden, die in anderen Ländern zur oberflächennahen Lagerung angewandt werden, kann kaum ausgeschlossen werden, daß ein Teil der Radionuklide in den Biozyklus zurückkehren kann. Eine Versenkung höherer Aktivitäten ins Meer scheidet ebenfalls aus /K2,A2/. Aus diesen Gründen soll hier nur auf die Endlagerung radioaktiver Abfälle in geologischen Formationen höchster Beständigkeit hingewiesen werden. Die Entwicklung geeigneter Lagerverfahren bilden den Schwerpunkt entsprechender Arbeiten in der BRD (in Zusammenarbeit mit anderen Ländern, die ähnliche kerntechnische Probleme bearbeiten).

In der Bundesrepublik entschied man sich aus den im vorangegangenen Abschnitt 6.2 dargelegten Gründen sehr frühzeitig dazu, radioaktive Abfälle in Salzgestein einzulagern. Das stillgelegte Salzbergwerk ASSE bei Wolfenbüttel wurde zu diesem Zweck hergerichtet und ist seit 1967 als Versuchsanlage zur Endlagerung für radioaktive Abfälle in Betrieb /K2/. Verfestigte schwachaktive Abfälle, die mit Bitumen oder Zement meist in 200 l Fässern eingebettet sind, werden routinemäßig eingelagert /G5/.

Für mittelaktive Abfälle, die wegen der höheren Strahlung an der Außenseite der Fässer bei der Manipulation bereits einer Abschirmung bedürfen, ist zur Entwicklung der Einlagermethode eine Versuchseinlagerung in eine Lagerkammer im Bergwerk im Gange /K2/. Die Technik soll gegen Ende der 70er Jahre durch eine Kavernenanlage vereinfacht werden, bei der die Abfallfässer aus einer oberirdischen, abgeschirmten Zelle durch ein Bohrloch ohne Abschirmung direkt in die Lagerkaverne abge-

senkt werden /D4/.

Während man für die Endlagerung von schwach- und mittelaktiven Abfällen ein stillgelegtes Bergwerk verwenden kann, scheint ein solches für eine Endlagerung von hochaktivem Abfall großer kommerzieller Wiederaufarbeitungsanlagen nicht geeignet, da wegen der großen Wärmeentwicklung im Feld eines solchen hochaktiven Endlagers eine Gefährdung des darüberliegenden Grubengebäudes nicht auszuschließen ist /K9/. Für ein hochaktives Endlager müßte daher eine eigene Schachtanlage aufgeföhren werden. Zur Veranschaulichung wurde in Fig. 6.4 eine Modellskizze eines solchen hochaktiven Endlagers angegeben /K2/.

Der jährliche Ausstoß von verglastem hochaktivem Abfall einer großen Wiederaufarbeitungsanlage für 1500 t LWR-Brennstoff pro Jahr würde (nach 4- bis 5-jähriger flüssiger Zwischenlagerung) folgende Mengen ergeben (siehe auch Tabelle 6.3).

	HLW [65 l/t SM]	HLW mit Gadolinium [90 l/t SM]
jährlicher Ausstoß [m ³]	98	135
Zahl der Glassäulen (40 m Höhe; 0,2 m Ø)	78	108
Endlagerfläche [m ² /a]	6800	9400
nach 20 Betriebsjahren	370 x 370 m	440 x 440 m

Tabelle 6.3: Jährlicher hochaktiver Wasteanfall einer 1500 jato Wiederaufarbeitungsanlage (LWR-Brennstoff, 34000 MWd/t SM, /H6/ ohne und mit Gadolinium als Neutronengift).

		Flüssige Zwischenlagerung [Jahre]			
		1	3	5	10
Aktivität	[MCi/a]	2550	1070	700	490
thermische Leistung	[MW/a]	12.3	4.7	2.9	1.7
Abfallmenge					
Oxide ohne Gd	[t/a]	67.5	67.5	67.5	67.5
Glas	[m ³ /a]	308	118	98	98
Oxide mit Gd	[t/a]	95.3	95.3	95.3	95.3
Glas	[m ³ /a]	308	135	135	135

6.4 Endlagerung von hochaktiven Abfällen durch alternative Konzepte

Eine systematische Untersuchung einer Reihe von alternativen Waste Management Methoden zur Endlagerung im Salz wurden in einem großen Forschungsprogramm des Battelle Pacific Northwest Laboratory, Hanford, USA, durchgeführt /S10/. Neben der Kernumwandlung und dem Transport in den Weltraum galt die Untersuchung der

- Endlagerung in anderen geologischen Schichten (außer Salz)
- Endlagerung in sehr tiefen Bohrlöchern ohne Aufschmelzen des umgebenden Gesteins
- - Einbringen in tiefe Bohrlöcher und Aufschmelzen des umgebenden Gesteins
- Lagern in bergmännisch ausgehöhlten Kammern und zwischenzeitlicher Luft- oder Wasserkühlung der Abfallbehälter
- Einbringen des flüssigen hochaktiven Abfalls in bergmännisch oder durch Kernexplosion gewonnene Hohlräume, Trocknung und Inkorporation in das Gestein durch Aufschmelzen
- Endlagerung im Eis der Antarktis.

Weiterhin wurde das Konzept einer Lagerung auf dem Meeresgrund mit folgenden unterschiedlichen Eigenschaften untersucht:

- stabile Tiefseeböden
- Tiefseegräben
- Zonen, die unter den Festlandssockel wandern,
- Zonen hoher Sedimentationsgeschwindigkeit.

Diese Methoden, ihre Sicherheitsaspekte und Risiken wurden in einem Bericht von McGRATH /M8/ im Hinblick auf ihre eventuelle Eignung für die Bundesrepublik untersucht. Da diese Methoden für die Beseitigung hochaktiver Abfälle in der BRD entweder ohnehin unrealistisch sind oder keine Verminderung langfristiger Risiken erkennen lassen, sollen sie (ausgenommen die Transmutation, vgl. Kapitel 7) hier nicht diskutiert werden.

7. Alternative Konzepte zur Beseitigung hochaktiver Abfälle

Die Abtrennung einzelner Wastebestandteile wird erwogen, um die Wärmeentwicklung oder die langfristige Toxizität des radioaktiven Rückstandes, der zur Lagerung oder Endlagerung gebracht werden soll, zu reduzieren. Eine Abtrennung aus Gründen der Verminderung der Wärmeentwicklung, d.h. insbesondere der Spaltprodukte Strontium und Cäsium, könnte eine wesentliche Verbesserung der Langzeitbeständigkeit der Verfestigungsprodukte des restlichen Abfalls mit den darin enthaltenen langlebigen Actiniden, zur Folge haben.

Andererseits stellen die Spaltproduktabfälle ein Waste Managementproblem für 600 bis 700 Jahre, bis ihre spezifische Radio-toxizität auf eine mit natürlichen radioaktiven Erzen vergleichbare Größe abgefallen ist, dar, während die Actiniden und ihre Folgeprodukte ihre hohe Toxizität über einen Zeitraum von Millionen Jahren behalten. Die stark verschiedenen Eigenschaften der Spaltprodukte und Actiniden führen immer wieder zu der Frage, ob es nicht vorteilhaft ist, die beiden Gruppen chemisch zu trennen und für jede Gruppe eine eigene Strategie zu entwickeln /H1,R2,K3/.

Eine Abtrennung der Actiniden aus dem radioaktiven Abfall würde das Problem der langfristigen Lagerung der Spaltproduktabfälle reduzieren, da die kritische Lagerperiode von 600 bis 700 Jahren eine Zeitspanne ist, für die geologische und andere natürliche Änderungen der ausgewählten Formationen des tiefen Untergrundes mit hoher Sicherheit extrapoliert werden können.

Die abgetrennten Actiniden könnten entweder auf spezielle Weise, die den chemischen und nuklearen Eigenschaften, den langen

Halbwertszeiten und der geringen Wärmeentwicklung Rechnung trägt, endgelagert oder durch andere Prozesse endgültig eliminiert werden. Aus dem Millionen-Jahr-Problem wird aber nur dann ein 700-Jahr-Problem /K3/, wenn eine Reduktion der sich anhäufenden Actinidenmengen durch Elimination erfolgt.

Eine solche Eliminierung langlebiger Radionuklide in Zeitabschnitten, die erheblich kürzer als ihr radioaktiver Zerfall sind, kann nur erfolgen

- durch Kernumwandlung und -spaltung, d.h. Rückführung in Reaktoren oder
- durch Beförderung in den Weltraum.

Eine Reduktion der Anhäufung von Actiniden im Endlager für radioaktive Abfälle setzt eine chemische Abtrennung voraus, die zwei Aspekte beinhaltet:

- einerseits die Abtrennung der Actiniden aus dem hochaktiven Abfall
- andererseits eine Minimierung der Actinidenmengen, insbesondere der Plutoniumverluste (und Neptunium) in den großen Volumina mittel- und schwachaktiver Abfälle der Wiederaufarbeitung und Brennelementrefabrikation auf das technisch erreichbare Minimum.

7.1 Chemische Abtrennung der Actiniden aus den hochaktiven Abfällen

Eine separate Behandlung der Actiniden, sei es durch Kernumwandlung (Abschnitt 7.2) oder Transport in den Weltraum (7.3), setzt eine chemische Abtrennung der Transurane aus dem hochaktiven Abfall voraus. Nach derzeitigen Konzeptionen der Brennstoffzyklen werden 98 bis 99 % der Brut- und Spaltstoffe (U, Pu bzw. Th und U) aus den abgebrannten Brennelementen wiedergewonnen und erneut

eingesetzt, während etwa 0,5 % der Brut- und Spaltstoffverluste, ca. 70 - 95 % des Neptuniums und das gesamte Americium und Curium (sowie die Zerfallsprodukte) in den hochaktiven Abfall der Wiederaufarbeitung gehen.

Der relative Toxizitätsindex der Actiniden im hochaktiven Abfall von aufgearbeitetem LWR-Brennstoff (vgl. Fig. 5.3) wird bis ca. $3 \cdot 10^4$ Jahren deutlich vom Am und Cm und deren Folgeprodukte bestimmt. Bei noch größeren Zerfallszeiten überwiegt Np-237 und seine Folgeprodukte. Das bedeutet, daß in einem hochaktiven Abfall der Brennstoffwiederaufarbeitung, eine Reduzierung des langfristigen relativen Toxizitätsindex nur erreichbar wäre, wenn zusätzlich Americium, Curium und Neptunium sowie Plutonium und Uran aus dem Waste abgetrennt würden.

Im Thorium-Uran-Brennstoffkreislauf liegen die Verhältnisse analog. Hier ist zusätzlich das Protactinium-231 von Bedeutung. Wichtig für den relativen Toxizitätsindex ist hier jedoch in erster Linie, ob das Plutonium bei der Wiederaufarbeitung abgetrennt wird oder zum hochaktiven Abfall gelangt. Eine Reduzierung des langfristigen Toxizitätsindex würde hier bedeuten, daß zusätzlich Thorium, Protactinium, Uran, Neptunium, Plutonium, Americium und Curium abgetrennt werden.

7.1.1 Ermittlung des Grads der Actinidenabtrennung

Ein solcher der Wiederaufarbeitung nachgeschalteter Prozeß zur Actinidenabtrennung aus dem hochaktiven Abfall erscheint nur sinnvoll, wenn die Abtrennung zu einem Grad erfolgt, bei dem der relative Toxizitätsindex des resultierenden hochaktiven

Rückstandes nach ca. 1000 Jahren

- einerseits in die gleiche Größenordnung wie derjenige der langlebigen Spaltprodukte Tc-99, Cs-135 und Zr-93/Nb-93 und
- andererseits in den Bereich der natürlich vorkommenden radioaktiven Materialien mit niedrigem Urangehalt fällt.

Es muß an dieser Stelle betont werden, daß für die folgenden Betrachtungen angenommen wird, daß 99,9 % des Jods bei der Wiederaufarbeitung abgetrennt und als separater $\beta\gamma$ -Abfall behandelt wird (siehe Kapitel 4.1.2 sowie Fig. 5.1 ff.)

Um den relativen Toxizitätsindex des Waste von LWR, SBR- oder HTR-Brennstoff nach 1000 Jahren auf weniger als 5 % des Toxizitätsindex von Pechblende zu reduzieren, wären nach Rechnungen von CLAIBORNE /C4, B20/ (auf der Basis gleicher Volumina) die in Tabelle 7.1 aufgeführte prozentuale Gesamtabtrennung der Wiederaufarbeitung und der nachgeschalteten Waste fraktionierung erforderlich.

Die Änderung des relativen Beitrags der einzelnen Actiniden mit der Zerfallszeit ließen zahlreiche Kombinationen zu, um auf einen bestimmten Wert des gesamten Toxizitätsindex zu kommen. Die Berechnung der Abtrennfaktoren erfolgte daher in möglichst weitgehender Übereinstimmung mit der Chemie der verwendeten Prozesse und der potentiellen Abtrennprozesse. CLAIBORNE /C4/ ging davon aus, daß mit der gegenwärtigen Technologie des PUREX-Prozesses ca. 99,9 % Uran sowie 95 bis 99 % Neptunium nach Einführung einiger Modifikationen möglich erscheinen. Abtrennfaktoren von Plutonium >99,5 % und die Abtrennung von Americium und Curium erfordert zusätzliche Prozeßzyklen, die erst noch entwickelt werden müßten. Für die Aufarbeitung von HTR-

Brennstoff sei der THOREX-Prozeß gegenwärtig geeignet, 99,5 % Thorium abzutrennen, aber zusätzlich müßten noch Np, Pu, Am und Cm sowie auch Protactinium separiert werden.

Die Berechnung der Werte von Tabelle 7.1 erfolgte daher unter der Annahme einer hohen Uranabtrennung, einer minimalen Neptuniumabtrennung (95 %) und einer gleichen prozentualen Abtrennung von Americium und Curium, die beide sehr ähnliche chemische Eigenschaften besitzen. Der Beitrag der restlichen Actiniden im HLW-Rückstand wird in den Diagrammen Fig. 7.1 bis 7.4, die auf den Werten von Tabelle 7.1 basieren, aufgezeigt.

Tabelle 7.1: Erforderliche gesamte Actinidenabtrennung in Prozent zur Reduzierung des hazard index von HLW^{a)} nach 1000 Jahren auf 5 % von Pechblende^{b)} [C4, B20].

	DWR-U ^{c)}	DWR-Pu ^{c)}	SBR ^{d)}	HTR ^{e)}
Th				99,5
Pa				95
U	99,9	99,9	99,9	99,99
Np	95	95	70	95
Pu	99,95	99,99	99,99	99,9
Am und Cm	99	99,9	99,9	95
Reduktion des hazard index	110	400	240	270

- a) Basis: 99,9 % Spaltprodukt-Jod abgetrennt
- b) Pechblende mit 60 % Urangehalt
- c) Abbrand 33000 MWd/t SM; HLW-Volumen 56 l
- d) Abbrand 41200 MWd/t SM; HLW-Volumen 84 l
- e) Abbrand 94300 MWd/t SM; HLW-Volumen 168 l

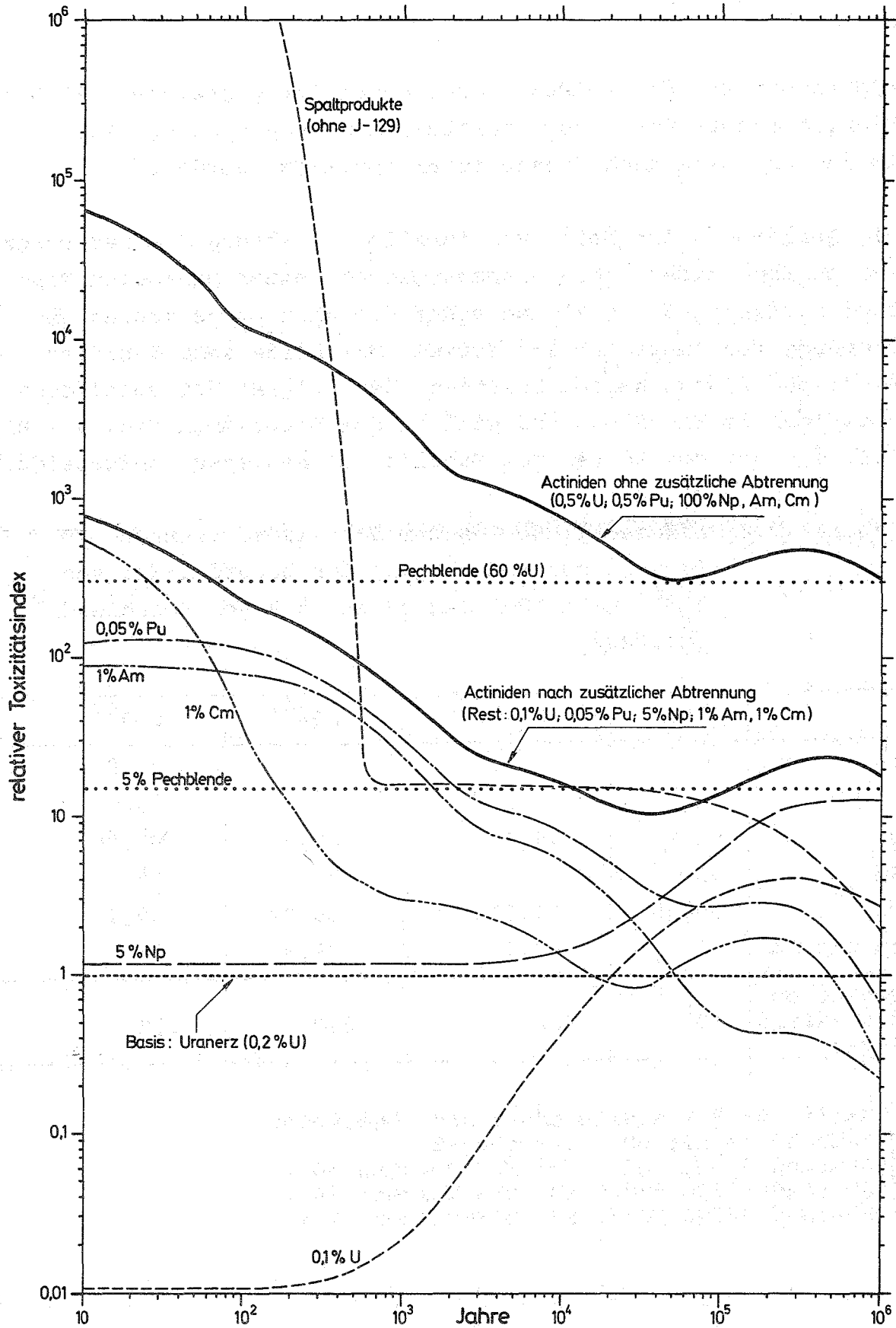


Fig. 7.1 Relativer Toxizitätsindex des HLW von LWR-Brennstoff (3,3% U-235) nach Actinidenabtrennung auf 5% Pechblende (Actinidenverluste nach /C4/).

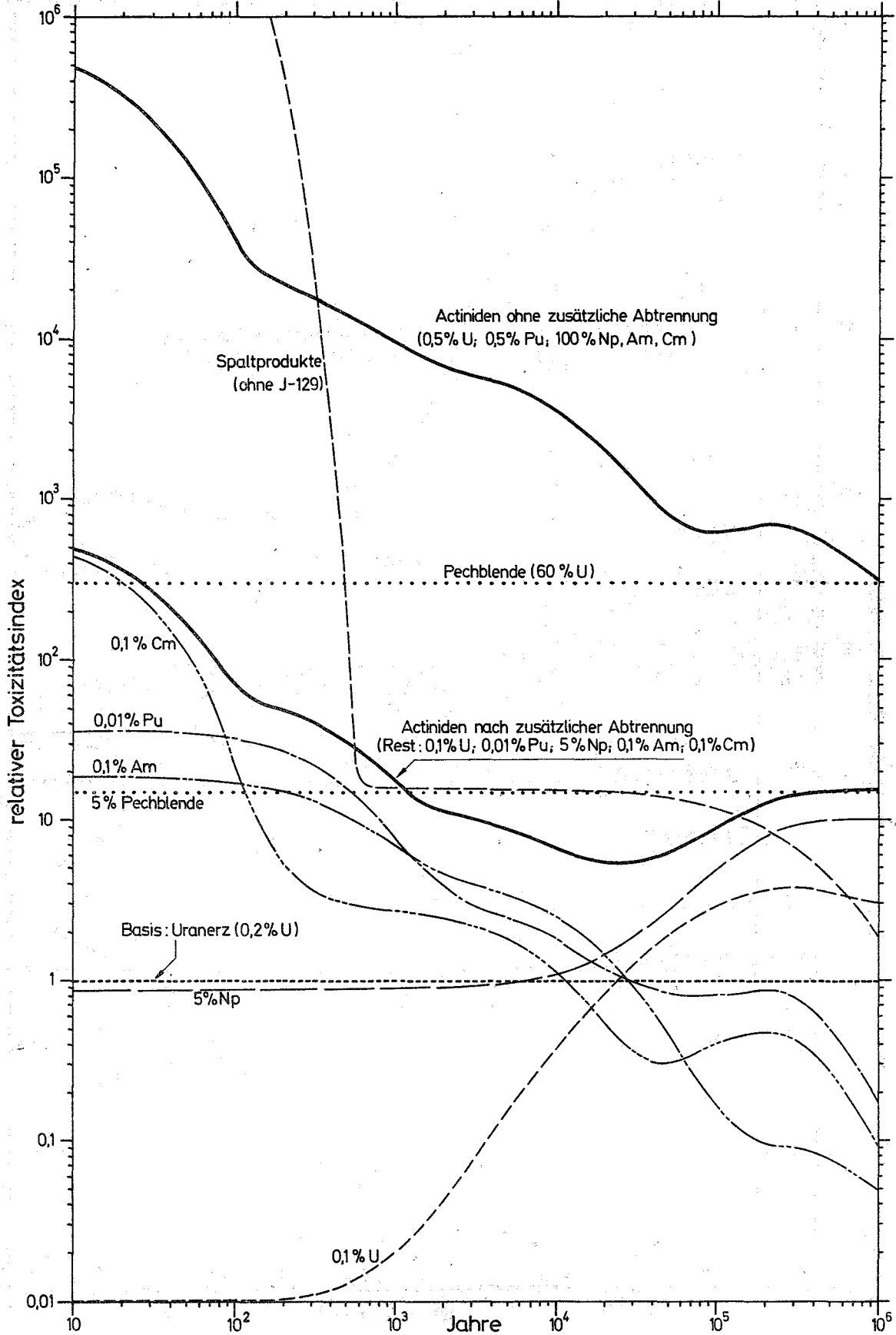


Fig. 7.2 Relativer Toxizitätsindex des HLW von LWR-Brennstoff (Pu-Rezyklierung) nach Actinidenabtrennung auf ca. 5% Pechblende (Actinidenverluste nach /C4/)

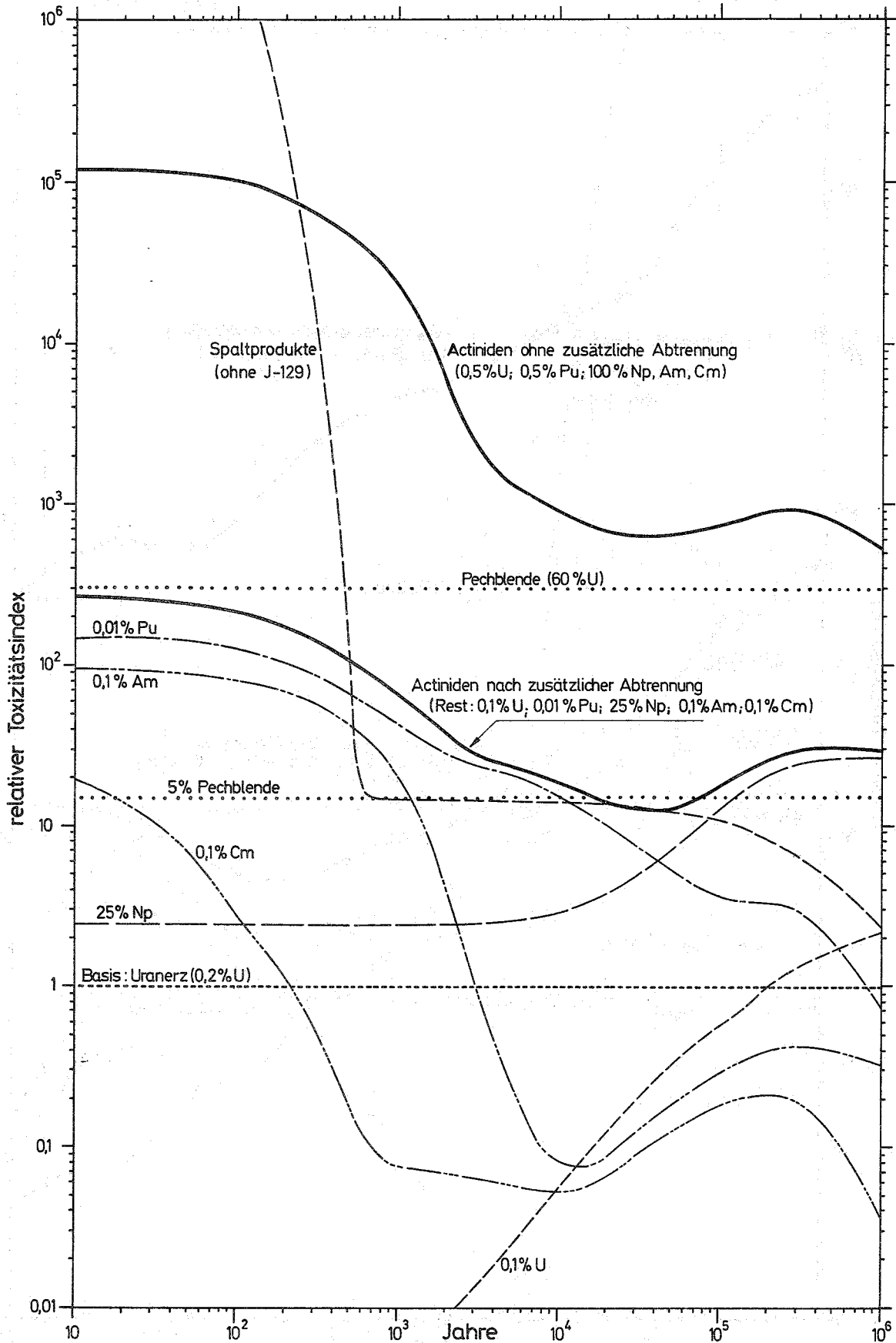


Fig. 7.3 Relativer Toxizitätsindex des HLW von SBR-Brennstoff (Core+Blanket, 34000 MWd/t SM) nach Actinidenabtrennung auf ca. 5% Pechblende (Actinidenverluste nach/C4/)

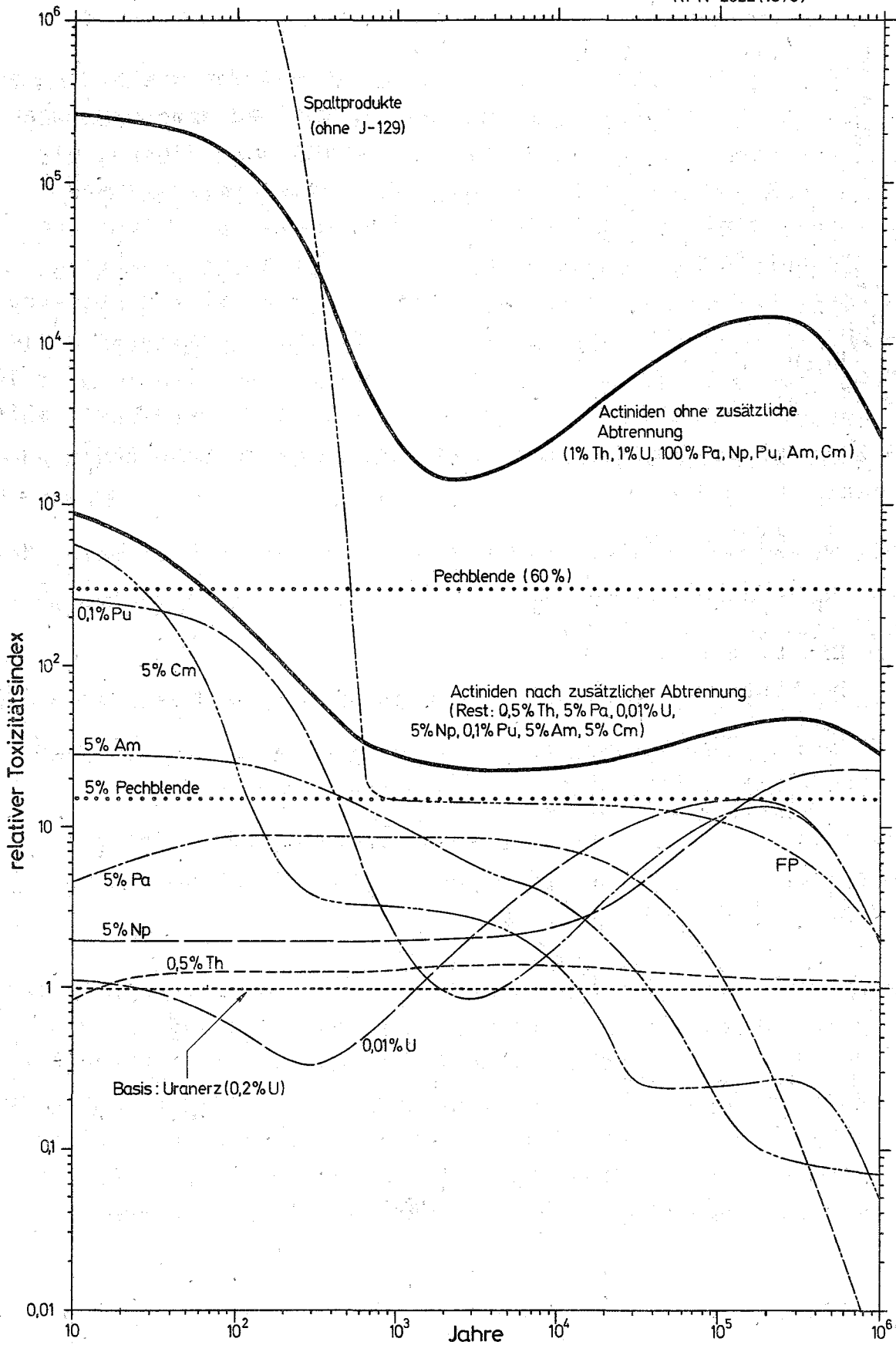


Fig. 7.4 Relativer Toxizitätsindex des HLW von HTR-Brennstoff (U-233 Rezyklierung) nach Actinidenabtrennung auf ca. 5% Pechblende. (Actinidenverluste nach /C 4/)

Die Werte stellen das Ziel eines alternativen Waste Managements mit Wastefraktionierung dar. Um das Ziel zu erreichen, werden Trennfaktoren benötigt, die 10- bis 100-mal größer sind, als sie mit den gegenwärtigen Methoden der Actinidenabtrennung erreichbar sind. Die geforderte Abtrennung der Actiniden von LWR-Brennstoff mit Plutoniumrezyklierung bedeutet anders betrachtet, daß ausgehend von 0,5 % Uran- und Plutoniumverlusten des PUREX-Prozesses folgende zusätzliche Abtrennfaktoren nötig wären: Uran ≥ 5 , Neptunium ≥ 20 , Plutonium ≥ 50 , Americium ≥ 1000 und Curium ≥ 1000 /B20/. Um ein solches Ziel zu erreichen, müßte ein integrales Aufarbeitungs- und Abtrennsystem entwickelt werden:

- Die Wiederaufarbeitung der Brennelemente müßte nach verbesserten Methoden erfolgen, die zu niedrigeren Verlusten an Spalt- und Brutmaterial führen.
- Das Neptunium müßte bereits im PUREX-Prozeß abgetrennt werden.
- Ein Prozeß zur Abtrennung von Americium und Curium aus dem hochaktiven Abfall müßte neu entwickelt werden.
- Es müßten Methoden gefunden werden, die anderen wäßrigen α -Wabestrome aus den Trenn- und Reinigungszyklen in den Prozeß rezyklieren zu können.

Die Rückführung und Verminderung der α -kontaminierten Abfallströme erscheint überhaupt von fundamentaler Bedeutung und das auch für das derzeitige Wastemanagementsystem, das keine Abtrennung der Actiniden aus dem hochaktiven Abfall einschließt. Die α -Abfälle sind wegen ihrer großen Menge und des Gehalts an Plutonium (oder weiterer Transurane) ein langfristiges Sicherheitsproblem für jedes Abfallbehandlungs- und Endlagersystem.

Die in Tabelle 7.1 für die Actinidenabtrennung geforderten Werte bedeuten nach ref. /B21, Seite 4/, daß die Gesamtverluste in allen Abfällen, seien sie hoch-, mittel- oder schwachaktiv, die aus Tabelle 7.1 sich ergebenden Grenzwerte nicht überschreiten dürfen. Da die Werte für die verfestigten hochaktiven Rückstände im Vergleich mit 5 % Pechblende ermittelt wurden und eine Konzentrationsbegrenzung im HLW darstellen, erscheint eine Übertragung der Abtrennfaktoren für HLW als Grenzwerte für die Gesamtheit der Abfälle nicht schlüssig. Für die transurankontaminierten Abfälle aus der Wiederaufarbeitung oder der Refabrikation sind entsprechend eigene Kriterien, die ebenfalls auf einer Konzentrationsbeschränkung in den verfestigten Abfällen beruhen, zu entwickeln.

Es ist sicherlich richtig, daß eine Actinidenabtrennung aus den hochaktiven Abfällen, soll sie sinnvoll sein, gleichzeitig eine Begrenzung der Actinidenverluste in den anderen Abfallströmen der Wiederaufarbeitung und Waste fraktionierung bedingt. Dies hat zur Konsequenz, daß die $\beta\gamma$ - und α -Abfälle dieser Prozesse in die entsprechenden Prozeßstufen rezykliert werden müßten, wobei weder das Volumen der hochaktiven Abfälle noch das der $\beta\gamma$ -Abfälle übermäßig ansteigen und zusätzliche Endlagerprobleme nach sich ziehen darf.

Die Probleme dieses integrierten Aufarbeitungs- und Abtrennsystems erscheinen aus der Sicht des heutigen Stands der Technologie der Aufarbeitung von Brennelementen oder von speziellen Bestrahlungselementen, wenn überhaupt, dann nur auf längere Sicht lösbar.

7.1.2 Chemische Probleme der Actinidenabtrennung

In Studien der Battelle Northwest Laboratories von BARTLETT, BRAY, BURGER, BURNS und RYAN /B18/, die einen Überblick über die bisherigen chemischen Trennverfahren zur Isolierung von Transuranen und eine kritische Untersuchung ihrer Anwendbarkeit für die Fraktionierung von hochaktiven Abfällen geben und des Oak Ridge National Laboratory von BOND, CLAIBORNE, LEUZE et al. /B20, B21/ wird auf eine Reihe der enorm schwierigen, noch ungelösten Probleme der Actinidenabtrennung hingewiesen:

- Die bisherigen Prozesse, mit denen hohe Trennfaktoren erzielt wurden, wurden und können in ihrer derzeitigen Form nicht auf eine Waste fraktionierung angewendet werden. Die Selektivität der in Betracht zu ziehenden Prozesse wurde noch nicht demonstriert.
- Feststoffe, die in hochaktiven Abfällen mit ca. 1 - 10 Gewichtsprozent /B18/ enthalten sind, können für die Durchführbarkeit bestimmend werden, wenn sie Actiniden enthalten, die extrahiert werden sollen. Neben ungelösten Rückständen von der Auflösung des Brennstoffs betrifft dies vor allem Kolloide und Niederschläge, die durch chemische Veränderungen der Actinid- und Spaltproduktlösungen im Wiederaufarbeitungs- oder Actinidenabtrennungsprozeß, insbesondere bei Rückführung aller Abfallströme, entstehen.
- Bisher wurde eine weitergehende Abtrennung des Plutoniums durch nicht extrahierbare Formen des Plutoniums begrenzt, die im Prozeß möglicherweise als Kolloide, Niederschläge oder Komplexe (z.B. mit Phosphationen) entstanden. Zusätzliche Extraktionsstufen nützen nichts, wenn das Plutonium nicht durch eine geeignete Behandlung in eine Ionenform übergeführt wird.

- Einige Spaltprodukte wie Zirkon, Molybdän, Zinn etc. bilden Niederschläge durch Hydrolyse oder mit TBP-Radiolyseprodukten, die leicht zu Störungen des Betriebs der Anlagen Anlaß geben und zu Verlusten an Actiniden (durch Adsorption) führen können.
- Ein im technischen Maßstab durchführbarer Prozeß zur Abtrennung von Am/Cm von den Spaltprodukten steht nicht zur Verfügung. Bisherige Trennprozesse erfordern für den Am/Cm-Abtrennschritt Lösungen geringer Säurestärke, die leicht zu Hydrolyse und Niederschlagsbildung führen. Es müßten erst Methoden zur Herstellung geeigneter Feedlösungen (Entfernen der leicht hydrolysierenden Spaltprodukte Zr, Mo u.a.) entwickelt werden.
- Die Abtrennung des Neptuniums hängt von der Entwicklung einer genauen Wertigkeitseinstellung ab.
- Alle α -Wasteströme aus den Trenn- und Reinigungszyklen müssen rezykliert werden, ohne daß neue α -Abfallströme entstehen oder das Volumen der Spaltproduktabfälle übermäßig zunimmt. Bei der Rückführung ist insbesondere die Zunahme von Verunreinigungen und Radiolyseprodukten, die sich in bestimmten Prozeßschritten störend auswirken, ein Problem.

7.1.3 Abtrennung von Neptunium

Neptunium bildet in den Oxidationsstufen +6 und +4 mit TBP extrahierbare Komplexe /B9/, während die Oxidationsstufe +5 in der wäßrigen Phase bleibt. Np(IV) ist erst bei höheren Salpetersäurekonzentrationen gut extrahierbar. Das bedeutet, daß Neptunium im PUREX-Prozeß im ersten Extraktionszyklus entweder

- zusammen mit Uran und Plutonium extrahiert wird und in den nachfolgenden Reinigungszyklen von diesen abgetrennt werden muß oder
- als Np(V) in den hochaktiven Abfallstrom fließt und daraus durch Ionenaustausch oder Lösungsmittlextraktion isoliert werden muß.

Eine Übersicht über die Prozeßchemie des Neptuniums findet sich bei G. KOCH /K12/ und R.D. BAYBARZ /B4/.

Nach dem Auflösen des oxidischen Brennstoffs liegt Neptunium überwiegend im 5-wertigen Zustand vor /B9/, was wahrscheinlich durch die Anwesenheit größerer Mengen Stickoxide bewirkt wird. Eine Oxidation zu Np(VI) erfolgt entweder durch mehrstündiges Kochen mit HNO_3 oder der Oxidation mit Vanadat(V) /K6/. Die Koextraktion kann mit Ausbeuten über 90 % (im HA-Extraktionsschritt des 1. Zyklus) erfolgen.

Je nach Reduktionsbedingungen, Säurekonzentration, Flußbedingungen etc. in der anschließenden Uran-Plutonium-Trennung wird der größere Teil des Neptuniums entweder überwiegend den Uran- oder den Plutoniumstrom begleiten. Es kann jeweils im 2. Uran- oder Plutoniumzyklus aus den wäßrigen Raffinatströmen /K6/ abgetrennt werden.

Durch Einstellen der Oxidationsstufe +5, z.B. durch Zugabe von Nitrit in die vorletzte Stufe des ersten Extraktors /P1/, wird das Neptunium in die wäßrige Phase überführt und fließt in den hochaktiven Raffinatstrom. In Savannah River wurde dieser mit dem wäßrigen Raffinatstrom des zweiten Uranzyklus aufkonzentriert, das Neptunium zu Np(IV) reduziert und durch Anionenaustausch abgetrennt /P1/.

Ein Anionenaustauschverfahren erscheint für die Neptuniumabtrennung aus den hochaktiven Abfallkonzentraten hochabge-

brannter Brennstoffe zweifelhaft. Dagegen dürften nach einer Optimierung der Neptuniumabtrennung durch Extraktion im PUREX-Prozeß eine ausreichend hohe Abtrennung von über 95 % erreichbar sein.

7.1.4 Abtrennung von Americium/Curium

Americium und Curium können nicht direkt im PUREX-Prozeß abgetrennt werden. Sie verbleiben als 3-wertige Ionen in der wäßrigen Phase des ersten Extraktionszyklus und gelangen so praktisch quantitativ in den hochaktiven Abfallstrom. Eine Abtrennung muß also aus dem Spaltproduktgemisch mit Hilfe eigens dafür entwickelter Verfahren und Anlagen erfolgen.

Wegen der großen chemischen Ähnlichkeit mit den Seltenen Erden erfolgt die Abtrennung im wesentlichen in drei Schritten

- gemeinsame Abtrennung von Americium/Curium mit den Selten-Erd-Spaltprodukten von den übrigen Spaltprodukten,
- Trennung des Americium/Curiums von den Seltenen Erden,
- eventuelle Trennung der Elemente Americium und Curium.

Einen Überblick über die Am/Cm-Abtrennung gab VAUGHEN /V3/.

Die meisten Trennverfahren wurden speziell zur Gewinnung von Americium und Curium durch eigene Bestrahlungsprogramme entwickelt /B4/. Sie setzen häufig hohe Aussalzkonzentrationen voraus, wie bei der Extraktion mit TBP /H8, W6/ oder aliphatischen Aminen oder Ammoniumsalzen /B10, M7, S12/ oder erfolgen in korrosiven Medien, wie konzentrierten Chloridlösungen beim "TRAMEX-Prozeß" des Oak Ridge National Laboratory /L4, B10, B4/.

Für die technische Anwendung erscheinen letztlich nur solche Prozesse geeignet, die kontinuierlich arbeiten, strahlungsbeständige Prozeßchemikalien verwenden, keine Aussalzmittel und korrosive Salze (wie Chlorid) benötigen, die zu großen Volumina radioaktiver Abfälle führen.

Von den bekannt gewordenen Prozessen für die Trennung des Americium und Curiums von den Lanthaniden-Spaltprodukten haben nur zwei Verfahren, nämlich Verfahren der Kationenaustauschchromatographie und Verfahren, die auf dem Lösungsmittelextraktionsprozeß TALSPEAK beruhen, ein entsprechendes Entwicklungspotential.

Kationenaustauschprozesse wurden in den USA erfolgreich im Multigramm-Maßstab eingesetzt /K11/. Von Interesse sind besonders die neueren Methoden der Hochdruckkationenaustausch-Technologie für die Isolierung der Transplutoniumelemente /C3, L5, H12/. Die Trennungen erfolgen an Kationenaustauschern sehr feiner Fraktionen (Durchmesser 20 bis 50 μm), die sich in druckfesten Edelstahltrennsäulen befinden. Die Lösungen werden mit hoher Geschwindigkeit (bis $25 \text{ ml} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{min}^{-1}$) durch die Säulen gedrückt, wobei sich Drücke bis 300 bar aufbauen. Die feinen Ionenaustauschpartikel bewirken eine rasche Einstellung der Austauschgleichgewichte zwischen Lösung und Harz und sehr scharfe Trennungen. Auf Grund der kurzen Kontaktzeiten werden die Harze weniger schnell durch die hohe Strahlung zerstört. Der hohe Druck verhindert außerdem die Bildung von Gasblasen in der Säulenfüllung, da das radiolytisch durch die α -Strahlung gebildete Gas unter dem erhöhten Druck gelöst bleibt.

Dieses Verfahren wurde im Rahmen des Projektes Actiniden im Kernforschungszentrum Karlsruhe zur Abtrennung von Gramm-mengen Americium und Curium /G7/ und in Savannah River /H9, H12/ zur Isolierung größerer Mengen Curium eingesetzt. Die

Trennung erfolgte durch Verdrängungschromatographie mit Zink als Rückhalteion und Diäthylen-triaminpentaessigsäure- oder Nitrilotriessigsäurelösungen als Elutionsmittel. Nachteile der Ionenaustauschverfahren sind:

- die Feedlösungen dürfen nur geringe Konzentrationen anderer Spaltprodukte oder Salze enthalten;
- die großen Mengen Zink müßten rezykliert werden;
- es entstehen bedeutende Mengen Abfälle an kontaminierten Austauscherharzen und Komplexbildnern.

Das größte Entwicklungspotential dürfte der sogenannte TALSPEAK-Prozeß /W4, W5/ besitzen, der auf einer bevorzugten Extraktion der Seltenen Erden gegenüber Americium/Curium durch saure Organophosphorsäureverbindungen (wie Di-(2-äthylhexyl)phosphorsäure, HDEHP) aus einer Milchsäure und Polyamino-polyacetat-Lösung beruht.

In einer Weiterentwicklung dieses Prozesses werden zunächst Americium und Curium zusammen mit den Selten-Erd-Spaltprodukten mit HDEHP aus schwachsauren zitronen- oder weinsäurehaltigen Lösungen von den übrigen Spaltprodukten extrahiert /H11, B12/. Anschließend erfolgt eine selektive Rückextraktion von Americium/Curium in eine Milchsäure/Diäthylentriaminpentaacetatlösung /K13, K6, W5/.

Bei der Karlsruher Version von KOCH, KOLARIK et al. /K7/ wird dieser Prozeß mit einer vorhergehenden Denitrierung der hochaktiven Abfallkonzentrate bis in den schwachsauren Bereich (Ausfällung von Zirkon, Eisen etc.) kombiniert, dann kann der Zusatz von Komplexbildner für die HDEHP-Extraktion unterbleiben.

Über die routinemäßig erzielbaren Trennfaktoren dieser Prozesse liegen noch keine Erfahrungen vor. Ungelöste Probleme sind auch hier

- vorgeschaltete Prozessschritte zur Präparation geeigneter Feedlösungen,
- die Lösungsmittelreinigung,
- der Anfall großer Mengen mittel- und schwachaktiver Abfälle mit teilweise hohem Gehalt an organischen Komplexbildnern, die bei der Verfestigung der Abfälle zerstört werden müßten.

7.2 Beseitigung langlebiger Radionuklide durch Kernumwandlung

Langlebige Radionuklide aus radioaktiven Abfällen können durch neutroneninduzierte Kernumwandlung eliminiert werden, wobei sie entweder

- durch Neutroneneinfang in stabile oder kurzlebige Isotope umgewandelt oder
- durch Kernspaltung (schwere Elemente) in kurzlebige bzw. langfristig weniger toxische Spaltprodukt nuklide abgebrannt werden.

Die Kriterien für eine erfolgreiche Transmutation sind /S10/:

- die Gesamtbilanz der Energiegewinnung durch Kernspaltung darf nicht wesentlich verschlechtert werden;
- es muß mehr langfristig toxischer Waste beseitigt als neu erzeugt werden;
- die spezifische Umwandlungsrate muß um ein Vielfaches größer sein als die natürliche Zerfallsrate;

- die gesamte Umwandlungsrate des Prozesses muß so groß sein, daß ein bedeutender Teil des Inventars langlebiger Abfallnuklide umgewandelt und eliminiert wird.

Die Vorteile der Transmutationsprozesse sollen durch den relativen Toxizitätsindex dargestellt und verglichen werden.

Die Eliminierung von Spaltprodukten /S9/ mit mittleren und langen Halbwertszeiten durch neutroneninduzierte Kernumwandlung nach Rückführung in existierende oder projektierte thermische wie schnelle Leistungsreaktoren mit Neutronenflüssen von $3 \cdot 10^{13}$ bis $10^{15} \text{ n} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{sec}^{-1}$ ist nicht möglich /C1, S10, W3/, da die obigen Kriterien des Wasteinventars und der Umwandlungsrate nicht erfüllt werden können.

Demgegenüber wurde - wie in den folgenden Abschnitten dargestellt wird - durch Rechnungen /C1, S10/ prinzipiell nachgewiesen, daß eine Eliminierung der Actiniden durch Rezyklierung in Kernreaktoren möglich ist. Zur Beurteilung eines solchen Waste-Management-Systems fehlt in Anbetracht des enormen technischen Aufwandes, der langen Entwicklungszeit und der hohen Kosten

- eine systemanalytische Untersuchung des Gesamtsystems der Bildung und Beseitigung der Actiniden und der Minimierung des Wasteanfalls unter Einbeziehung der verschiedenen Reaktortypen und ihrer Brennstoffkreisläufe in einer fortgeschrittenen Kernenergiewirtschaft;
- die Entwicklung spezieller Kriterien für die gesamte Abfallbilanz und der spezifischen und integralen Umwandlungsraten;

- eine Risikoanalyse, bei der einerseits das zusätzliche Risiko der Rezyklierung während der Betriebsphase, andererseits ein Risikovergleich der gesamten Abfälle im Endlager mit und ohne Actinidenabtrennung und Rezyklierung nach 1000 Jahren.

7.2.1 Rezyklierung von Transuranen in LWR-Brennstoff

In einer umfangreichen Studie untersuchte CLAIBORNE /C1/ die Möglichkeit einer Reduzierung des relativen Toxizitätsindex (bei CLAIBORNE "hazard measure") des Wastes für den Fall der fortlaufenden Rückführung der Transurane im neuen Brennstoff mit 3,3 % angereichertem Uran eines Druckwasserreaktors gemäß der Strategie 1 in Fig. 7.5, wobei Uran und Plutonium nicht rezykliert würden. Es wurde zugrunde gelegt, daß nach der Gewinnung von Uran und Plutonium bei der Wiederaufarbeitung jeweils zusätzlich Neptunium, Americium, Curium, Berkelium und Californium aus dem hochaktiven Abfall abgetrennt und in den Brennstoff zurückgeführt würden.

Es wurde gezeigt, daß das Actinideninventar des hochaktiven Rückstands durch die Actinidenrezyklierung stark vermindert würde. Das Inventar der meisten Actiniden erhöht sich nach wenigen Zyklen auf einen Sättigungswert, bei dem ebenso viele Transurane gebildet wie abgebrannt werden. Dieser Gleichgewichtszustand wäre für Np praktisch nach 3, für Pu und Am nach 2, dagegen für Cm (und damit auch für Bk und Cf) erst nach über 30 Zyklen als Folge des Aufbaus höherer Curiumisotope mit kleinen Einfangsquerschnitten erreicht.

Die Reduktion des langfristigen Toxizitätsindex wurde für eine Actinidenabtrennung von 99,5 % und 99,9 % untersucht /C1/ und errechnet sich als direkt vom Grad der Abtrennung aller Actiniden aus dem Waste abhängig.

KFK-2022 (1975)

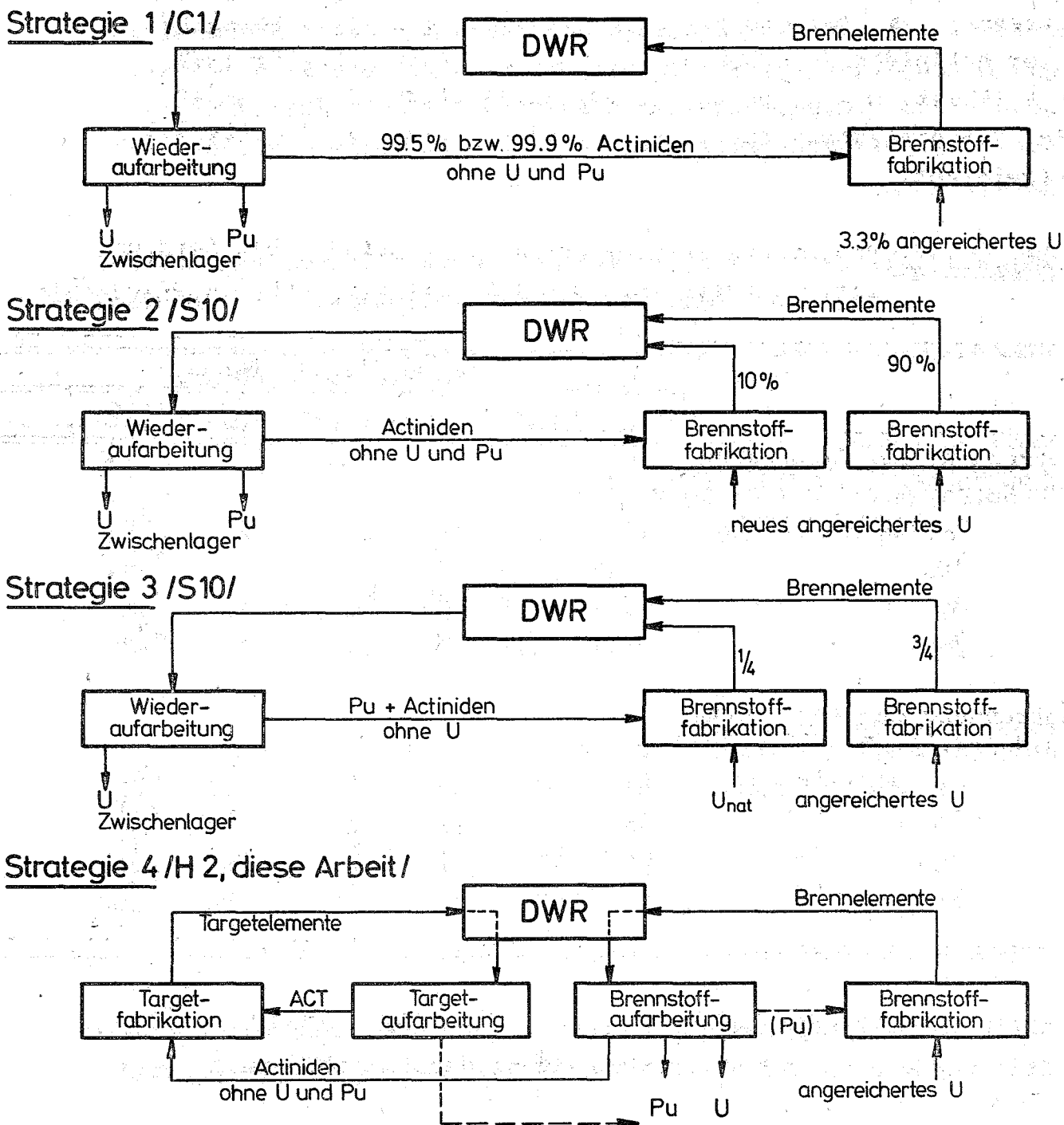


Fig. 7.5 Strategien der Actinidenrecycling in einen Druckwasserreaktor

Als Vergleichsmaßstab wurde der Reduktionsfaktor eingeführt, der das Verhältnis des Toxizitätsindex des Standard-Waste (nur 99,5 % (bzw. 99,9 %) des Urans und Plutoniums werden abgetrennt) zum Toxizitätsindex des Waste bei einer Abtrennung aller Actiniden (U, Np, Pu, Am, Cm, Bk, Cf) von 99,5 % (bzw. 99,9 %) ist. Die gefundenen Reduktionsfaktoren /C1/ sind in Fig. 7.6 grafisch dargestellt und eine Auswahl in Tabelle 7.2 aufgelistet.

Tabelle 7.2: Reduktionsfaktoren des Toxizitätsindex bei fortgesetzter Rezyklierung der Transurane nach Claiborne /C1/

	Zerfallszeit [Jahre]					
	10 ²	10 ³	10 ⁴	5·10 ⁴	10 ⁵	10 ⁶
Abtrennung der Actiniden (U,Np,Pu,Am,Cm,Bk,Cf) je 99,5 %						
o. Rezyklierung	12	15	19	23	28	52
5. "	6,8	6,6	7,5	14	17	43
10. "	5,8	4,7	5,8	14	17	43
20. "	5,1	3,8	4,9	14	17	43
Abtrennung der Actiniden (U,Np,Pu,Am,Cm,Bk,Cf) je 99,9 %						
o. Rezyklierung	57	73	89	110	137	256
5. "	32	31	36	67	83	208
10. "	27	22	27	67	83	207
20. "	-	18	22	66	82	206

Der jeweils höchste Reduktionsfaktor für eine gegebene Zerfallszeit würde nach der Wiederaufarbeitung der Brennelemente dann

KFK-2022 (1975)

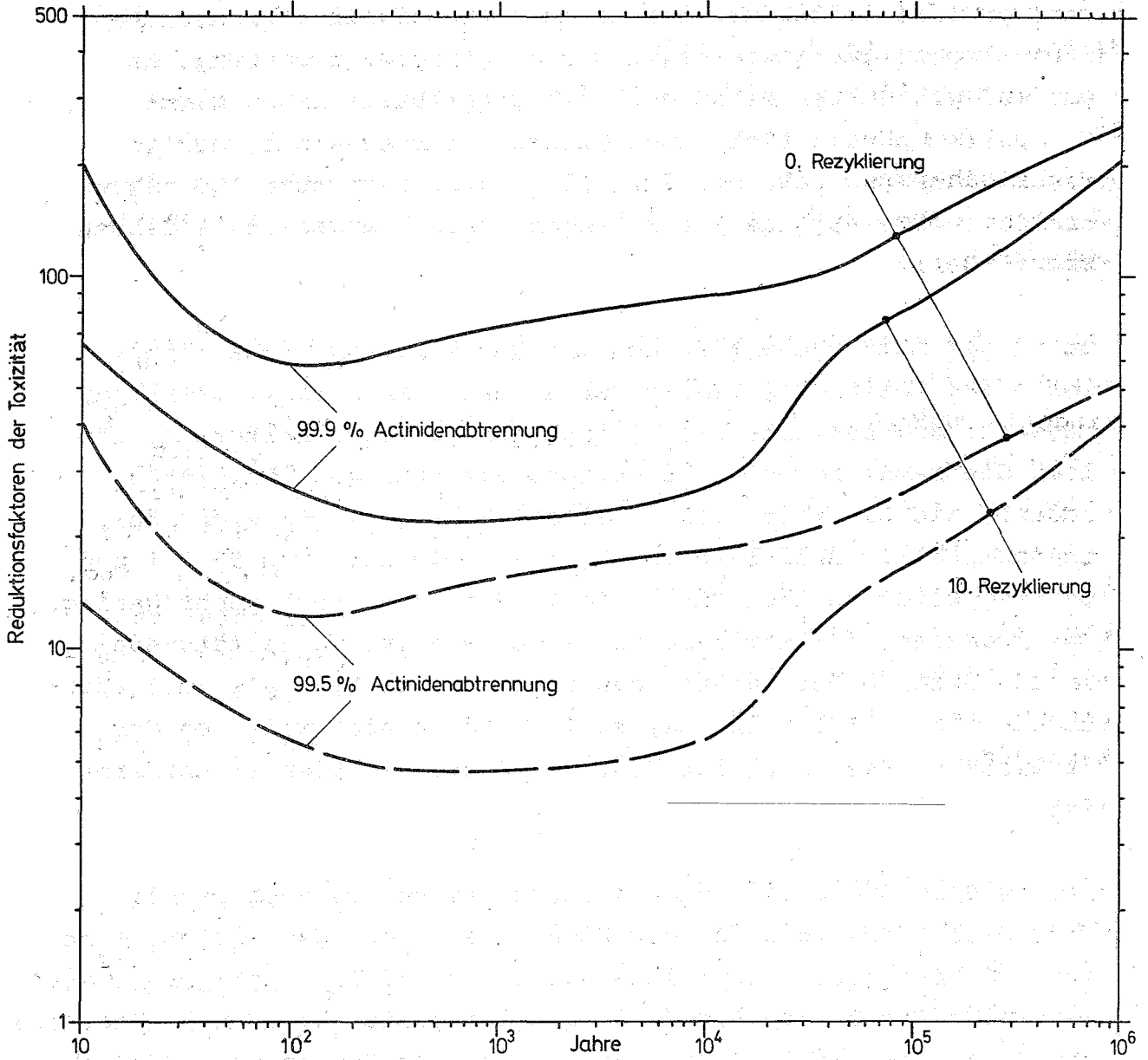


Fig. 7.6 Reduktionsfaktoren des Toxizitätsindex bei fortgesetzter Rezyklierung der Actiniden (außer U und Pu) in einen DWR nach CLAIBORNE/C1/.

erhalten, wenn außer 99,5 % (bzw. 99,9 %) Uran und Plutonium durch zusätzliche Actinidenabtrennung 99,5 % (bzw. 99,9 %) aller Actiniden (0. Rezyklierung) abgetrennt würden. Die Rezyklierung der Transurane in den Brennstoff erhöht den relativen Toxizitätsindex des hochaktiven Abfalls der nächsten Brennelementwiederaufarbeitung und Actinidenabtrennung, da zur neu gebildeten Menge noch die rezyklierte hinzu kommt. Das System nähert sich einem Gleichgewichtszustand, der in erster Näherung nach ca. 20 Zyklen, d.h. nach etwa 100 Jahren erreicht wäre (Zyklus mit 3 Jahren Bestrahlungszeit, 2 Jahren Excore-Zeit).

Durch die Actinidenabtrennung und Rezyklierung würde einerseits das Actinideninventar der hochaktiven Abfälle stark vermindert, andererseits wäre jedoch ein weiteres Kriterium, nämlich die resultierenden Reduktionsfaktoren (des Toxizitätsindex), wie die Werte von Tabelle 7.2 zeigen, bei einer Abtrennung aller Actiniden von 99,5 % sowie auch von 99,9 % und der Rezyklierung nach Strategie 1 (Fig. 7.5) noch recht gering. Das bedeutet, daß der resultierende relative Toxizitätsindex in den Bereich der natürlichen radioaktiven Minerale (mit Pechblende als oberster Grenze) fällt, jedoch noch weit von der Zielsetzung des Abschnitt 7.1.1 (5 % der Pechblende) entfernt ist.

Dieses Bild würde sich nach Ansicht des Autors noch merklich verschlechtern, wenn bei der Strategie 1 auch das Plutonium in den LWR-Brennstoff rezykliert würde, da bei Pu-Rezyklierung die mehrfache Americium- und Curiummenge gebildet wird (vgl. Fig. 3.3 und 3.5). Dies kommt auch in Rechnungen zu Strategie 2 /Table 9C.8 in ref. S10/ zum Ausdruck.

Den Strategien 2 und 3 (Fig. 7.5), die in den Battelle Pacific Northwest Laboratories /S10/ untersucht wurden, wurde zugrundegelegt, daß die Brennelementherstellung mit den rezyklierten Actiniden unter starker Abschirmung fernbedient erfolgen muß, und die damit verbundene Vervielfachung der Herstellungskosten auf wenige Brennelemente beschränkt werden können.

Für Strategie 2, bei der die Actiniden nur in 10 % der Brennstäbe rezykliert würden, ergaben die Rechnungen - durch Selbstabschirmungseffekte bedingt - ein erhöhtes Actinideninventar. Daraus würde folgen, daß beim Vergleich der gleichen Anzahl Zyklen der Strategie 1 und 2 das Actinideninventar bei Rezyklierung in wenige Brennstäbe weniger weit reduziert würde. Der Unterschied liegt jedoch zum Teil in der gleichen Größenordnung wie die Abweichungen, die zwischen Abbrandmessungen /M9/ und den mit ORIGEN /B3/ gerechneten Werten festgestellt /D6/ wurden, wobei die Rechnung insbesondere zu hohe Curiumwerte aufweist.

Bei der Strategie 3 würden die übrigen Transurane zusammen mit dem Plutonium in etwa ein Viertel der Brennelemente des DWR rezykliert. Das Actinideninventar liegt wegen der Pu-Rezyklierung um ein Vielfaches über den Strategien 1 und 2 und der Gleichgewichtszustand würde erst nach einer größeren Zykluszahl erreicht werden /S10/. Das hohe Inventar an Americium, Curium und Pu-238, das wegen der gemeinsamen Rezyklierung von Neptunium und Plutonium entstehen würde, würde für diese Brennelemente eine eigene Wiederaufarbeitungsanlage bedingen, da sie nicht über die PUREX-Anlage für LWR-Brennelemente aufgearbeitet werden könnten.

7.2.2 Weiterbestrahlung von Transuranen in separaten Bestrahlungseinsätzen und eigener Aufarbeitung

Für eine weitere Bestrahlung der aus dem hochaktiven Abfall abgetrennten Actiniden gemäß Strategie 4 von Fig. 7.5 werden folgende Annahmen gemacht (siehe Fig. 7.7):

- Die Actiniden werden in eigenen Bestrahlungseinsätzen für LWR oder HTR konzentriert und in dem LWR oder HTR weiterbestrahlt, in denen sie produziert wurden /H1, R2, P4/.
- Aus Gründen der relativ kleinen Mengen, der chemischen Eigenschaften sowie der Abschirmung der Neutronenstrahlung (verursacht durch die Spontanspaltung von Curium und Californiumisotopen) erfolgt die Aufarbeitung und Refabrikation der Actinidentargets in einer speziellen Anlage.

- Die noch fehlende Technologie der Refabrikation der Actiniden müßte für die U-233-Rezyklierung in den HTR ohnehin entwickelt werden und könnte in modifizierter Form unter Berücksichtigung der Erfahrung mit Bestrahlungseinsätzen, wie sie beispielsweise in der BRD im Projekt Actiniden /G7/ oder in den USA entwickelt wurden, für die Actinidentargetierung anwendbar sein.

Einige Gründe für die separate Bestrahlung und Aufarbeitung der Actiniden lassen sich wie folgt zusammenfassen:

- Nach wiederholter Rezyklierung bauen sich Curium und Californium auf, die ein Ansteigen der Neutronenstrahlung (durch Spontanspaltung und α, n -Reaktionen) bewirken. Bei Mischung mit dem Brennstoff /C1/ würden sich für die Wiederaufarbeitung kaum zusätzliche Probleme ergeben, jedoch müßten die Brennelemente fernbedient hergestellt werden. Es muß mit höherer Abschirmung als bei Plutoniumrezyklierung /B7/ gerechnet werden.
- Es dürfte erheblich schwieriger sein, die geforderten hohen Trennfaktoren für die Abtrennung der Actiniden jeweils aus dem gesamten hochaktiven Abfallstrom der Kernbrennstoffwiederaufarbeitung zu erzielen, als für die deutlich kleinere Menge in einem speziellen Aufarbeitungsprozeß für bestrahlte Actinidentargets.
- Nach wenigen separaten Rezyklierungen der Actiniden würde ein relativ kleiner Rückstand von Pu-242 und höheren Cm-Isotopen entstehen, der durch getrennte Weiterbehandlung, insbesondere der Spaltung im schnellen Neutronenfluß (oder eventuell auch Schuß in den Weltraum) beseitigt werden könnte.

Beim Rezyklieren der Transurane, d.h. weiterer Neutronenbestrahlung wird der größere Teil über die spaltbaren Nuklide Pu-239, Pu-242, Am-242m, Cm-243, Cm-245 und Cm-247 weggespalten, der kleinere Teil wird in höhere Nuklide umgewandelt. Der Nuklidaufbau führt schließlich zu den langlebigen Isotopen Pu-242, Pu-244, Cm-247 und Cm-248 mit Halbwertszeiten $>3 \cdot 10^5$ Jahren und (von Cm-247 abgesehen) niedrigen Neutronenwirkungsquerschnitten. Es entsteht letztlich ein Rückstand schwer umwandelbarer Nuklide /R2/, deren Eigenschaften in Tabelle 7.3 aufgeführt sind.

Tabelle 7.3 Eigenschaften langlebiger Plutonium- und Curiumisotope /C2, N1/

Nuklid	Halbwertszeit [Jahre]	Neutronenwirkungsquerschnitte	
		Einfang σ_c [barns]	Spaltung σ_f [barns]
^{242}Pu	$3,87 \times 10^5$	18,5	< 0,2
^{244}Pu	$8,26 \times 10^7$	1,7	0
^{246}Cm	4820	1,3	0,17
^{247}Cm	$1,56 \times 10^7$	60	90
^{248}Cm	$3,61 \times 10^5$	4	0,34

Wie aus Fig. 7.6 und Tabelle 7.2 hervorgeht, liegen die Reduktionsfaktoren des langfristigen Toxizitätsindex nach dem ersten Abtrennen der Elemente Neptunium, Americium und Curium aus dem hochaktiven Abfall (also vor der Rezyklierung) erheblich höher als bei fortlaufender Rezyklierung über den Brennstoff. Die Menge des hochaktiven Abfalls aus der Brennelementaufarbeitung übersteigt die Menge aus der Aufarbeitung der Bestrahlungseinsätze um einen Faktor 10^2 bis 10^3 . Hierin wird ein Vorteil für eine Rückführung der Transurane in separaten Bestrahlungsstäben in LWR oder Spezialbrennelementen in HTR gesehen, und es sollte möglich sein, daß sich für die kleineren Durchsätze einer separaten Aufarbeitung der Bestrahlungseinsätze Trennprozesse mit höheren Trennfaktoren entwickeln lassen.

Der wichtigste Vorteil bestünde jedoch in der Möglichkeit, nach zwei bis drei Zyklen die weitere Bestrahlung einer Charge im thermischen Neutronenfluß zu stoppen und den mengenmäßig stark reduzierten "Rückstand" durch Bestrahlung im schnellen Neutronenfluß von Brutreaktoren zu beseitigen /W7/. Im schnellen

Neutronenfluß sind die Wirkungsquerschnitte schwerer Nuklide insgesamt kleiner, aber zugunsten der Spaltungen verschoben. Weitere Transurannuklide, die mit langsamen Neutronen nicht spalten, besitzen für schnelle Neutronen einen merklichen Spaltquerschnitt. Eine Spaltproduktvergiftung spielt im schnellen Fluß keine Rolle. Eine genauere Berechnung dieses Bestrahlungskonzeptes liegt noch nicht vor. Erschwerend für solche Rechnungen ist, daß für die schwereren Kerne nur unsichere Daten vorliegen.

Generell ist hier anzumerken, daß die bisherigen Rechnungen auf andere Reaktortypen, wie HTR und SBR, und deren verschiedene Brennstoffkonzepte ausgedehnt werden müßten:

- Insbesondere erscheint eine detailliertere Untersuchung und Optimierung der Reaktorbestrahlung rezyklierter Actiniden in thermischen und schnellen Reaktoren und eine kombinierte Bestrahlung in diesen Reaktortypen erforderlich.

7.3 Der Schuß in den Weltraum

In einigen Arbeiten wurden die Möglichkeiten und Kosten untersucht, radioaktive Abfälle durch Transport in den Weltraum für immer zu beseitigen /P3, P2, S10/. Vorläufige Ergebnisse dieser Studien zeigen, daß diese Methode wegen der hohen Kosten (mindestens \$ 2000.-/ kg Waste /P3/) und steigenden Risiken bei häufigen Starts und eventuellem Wiedereintritt in die Atmosphäre höchstens auf den Transport von abgetrennten Transuranen, die nicht mehr als 0,1 % bis 1 % Spaltprodukte enthalten, in Frage käme.

Zur besonders sicheren Verpackung der Transurane sollen die Oxide durch mehrfache Beschichtung umschlossen, abgeschirmt und in einer Graphit- oder Metallmatrix in sehr beständigen Kapseln, die eine Freisetzung von Radionukliden bei Fehlstarts mit Sicherheit verhindern, verpackt werden /P2/.

Für eine Flugbahn, die aus dem Sonnensystem hinausführt, können pro Flug ca. 190 kg Transuran-Waste transportiert werden /P3/, das entspricht der Transuranmenge von 155 bis 270 t LWR-Brennstoff (Tabelle 4.1). Im Jahr 2000 werden (gemäß der mittleren und maximalen Schätzung) allein in der BRD 2,8 bis 3,4 t Americium, Curium und Neptunium erwartet (siehe Kapitel 3.5), für die 15 bis 18 Raketenstarts erforderlich wären. Da dies offensichtlich unrealistisch ist, bliebe nur die eventuelle Möglichkeit übrig, den im Abschnitt 7.2.2 erwähnten, mengenmäßig kleinen Rückstand (höherer Pu- und Cm-Isotope) in den Weltraum zu befördern.

Auch für einige wenige Raketenstarts bestünden die unbeantworteten Fragen

- internationaler Zustimmung und Vereinbarungen
- Unsicherheit politischer Faktoren
- der Sicherheit häufiger Raketenstarts und eventueller Fehlschläge
- der schwierigen Rückholbarkeit des Abfalls bei Fehlstart oder Wiedereintritt in die Atmosphäre.

8. Literaturverzeichnis

- /A 1/ 4. Atomprogramm der Bundesrepublik Deutschland für die Jahre 1973 - 1976
Bundesministerium für Forschung und Technologie
- /A 2/ E. ALBRECHT, H. KODLITZ, K. KÜHN, H.E. TRABANDT,
H. KRAUSE, W. KLUGER
"Radioaktive Rückstände"
Schriftenreihe des Deutschen Atomforums, Heft 16 (1969)
- /A 3/ W.C. ASTLEY, G.J. WALKE, J. LADESICH
"Plutonium Recycle Developments"
Nuclear News 14 (Aug. 1971) 29-32
- /A 4/ E.D. ARNOLD
"Effect of Uranium Recycle on Transuranic Element Build-up"
Nucl.Sci.Eng. 3 (1958) 707 - 25
- /A 5/ L.A. ABRAMS
"Fuel Reprocessing-Commercial Experience"
Reactor Fuel-Reproc. Techn. 12 (1969) 181-94.
- /B 1/ M.J. BELL, R.S. DILLON
"The long-term hazard of radioactive wastes produced by the enriched uranium, Pu-²³⁸U, and ²³³U-Th fuel cycles"
Report ORNL-TM-3548 (Nov. 1971)
- /B 2/ F. BAUMGÄRTNER, H. PHILIPP
"Die Wiederaufarbeitung von Uran-Plutonium-Kernbrennstoffen"
Fortschritte Chem.Forsch. 12 (1969) 712-774

- /B 3/ M.J. BELL
"ORIGEN, The ORNL Isotope Generation and Depletion Code"
Report ORNL-4628 (1973)
- /B 4/ R.D. BAYBARZ
"Recovery and Application of the Transuranium Elements ^{237}Np , ^{238}Pu , ^{241}Am , ^{242}Cm , ^{244}Cm , and ^{252}Cf "
At.Ener.Rev. 8 (1970) 327-60
- /B 5/ K.H. BECKURTS , B. BERGMANN
"Die Hochtemperaturreaktoren"
atomwirtschaft 18 (1973) 191-8
- /B 6/ L.H. BROOKS, C.R. DAVIS, D.D. PETERMAN, M.E. SPAETH
"Spent Fuel Shipping, Reprocessing, and Recycle Fabrication in the HTGR Fuel Cycle"
Report GULF-GA-A 12272 (Dec. 1972)
- /B 7/ M.J. BELL, J.P. NICHOLS
"Penetrating Radiation Dose Rates and Shield Requirements in Fabrication of Fuels Containing U-233 and High Exposure Plutonium"
Proc.Symp. on Sol-Gel Processes and Reactor Fuel Cycles"
Gatlinburg (May 1970) 74-84 [CONF-700502]
- /B 8/ J.O. BLOMEKE, C.W. KEE, J.P. NICHOLS
"Projections of Radioactive Wastes to be Generated by the U.S. Nuclear Power Industry"
Report ORNL-TM-3965 (Feb. 1974)
- /B 9/ W. BÄHR
"Extraktionsverhalten von Neptunium bei der Wiederaufarbeitung von bestrahlten Kernbrennstoffen nach dem PUREX-Prozeß"
Report KFK-797 (1968)

- /B 10/ R.D. BAYBARZ, B.S. WEAVER, H.B. KINSER
"Isolation of Transplutonium Elements by Tertiary
Amine Extraction"
Nucl.Sci.Eng. 17 (1963) 457
- /B 11/ J.O. BLOMEKE, J.P. NICHOLS, W.C. McCLAIN
"Managing Radioactive Wastes"
Physics Today 26, No. 8 (1973) 36-42
- /B 12/ R.E. BURNS, W.W. SCHULZ, L.A. BRAY
"Recent Solvent Extraction Studies at Hanford Laboratories"
Nucl.Sci.Eng. 17 (1963) 566-75
- /B 13/ R.G. BROGLI, R.C. DAHLBERG, G.H. GEORGE
"Plutonium Utilization in the HTGR"
Trans.Am.Nucl.Soc. 17 (1973) 298-9
- /B 14/ A.G. BLASEWITZ, G.L. RICHARDSON, J.L. McELROY,
J.E. MENDEL, K.J. SCHNEIDER
"The High-Level Waste Solidification Demonstration
Program"
Proc. NEA/IAEA Symp. "Management of Radioactive Wastes
from Fuel Reprocessing", Paris (Nov. 1972) 615-54
- /B 15/ R. BACHMANN
"Stand und Entwicklung der Kernkraftwerke (KKW) sowie
die Verteilung auf KKW-Typen"
Systemstudie "Radioaktive Abfälle in der BRD",
Zwischenbericht, SRA-1 (Aug. 1974)
- /B 16/ U. BRAATZ, C. COLHOUN
"Der Markt für Kernbrennstoffe"
Jahrbuch für Atomwirtschaft 1974, A31-A42
(Handelsblatt Verlag, Düsseldorf)
- /B 17/ J. BLOMEKE, J.J. PERONA
"Storage, Shipment, and Disposal of Spent Fuel Cladding"
Report ORNL-TM-3650 (Jan. 1972)

- /B 18/ J.W. BARTLETT (ed.), L.A. BRAY, L.L. BURGER, R.E. BURNS,
J.L. RYAN
"Feasibility Evaluation and R+D-Program Plan for Trans-
uranic Partitioning of High-Level Fuel Reprocessing
Waste"
Report BNWL-1776 (Nov. 1973)
- /B 19/ G. BAUMGÄRTEL, R. KRAEMER, R. KROEBEL
"Plutonium Availability from LWR-Reprocessing in the
FRG, EG, and USA"
Panel on Plutonium Utilization in Thermal Power
Reactors, IAEA, Karlsruhe, Nov. 25 - 29, 1974
- /B 20/ W.D. BOND, H.C. CLAIBORNE, R.E. LEUZE
"Methods for Removal of Actinides from High-level Wastes"
Nucl.Techn. 24 (1974) 362-370
- /B 21/ W.D. BOND, R.E. LEUZE
"Feasibility Studies of the Partitioning of Commercial
High-Level Wastes Generated in Spent Nuclear Fuel
Reprocessing"
Annual Progress Report for FY-1974, ORNL-5012 (Jan. 1975)
- /C 1/ H.C. CLAIBORNE
"Neutron-induced transmutation of high-level radio-
active waste"
Report ORNL-TM-3964 (Dec. 1972)
- /C 2/ J.L. CRANDALL
"Synthesis of the Transuranium Nuclides"
Gmelin Handbuch der Anorganischen Chemie, 8. Aufl.
Erg. Werk, Bd 7b, "Transurane" (Hrsg. G. KOCH)
Teil A1, II, Kap. 4.1, 1-28 (Springer Verlag, 1974)
- /C 3/ D.O. CAMPBELL
"Rapid Ion Exchange Separations. Chromatographic
Separation of Transplutonium Elements Using High
Pressure Ion Exchange"
Ind.Eng.Chem.Process Des.Dev. 9 (1970) 95-99

- /C 4/ H.C. CLAIBORNE
"Effect of Actinide Removal on the Long-Term Hazard
of High-Level Waste"
Report ORNL-TM-4724 (Jan. 1975)
- /C 5/ C.R. COOLEY, R.E. LERCH
"The Acid Digestion Process for Treatment of Combustible
Wastes"
Proc. Seminar "Management of Plutonium-Contaminated
Solid Wastes", Marcoule Oct 1974, OECD Paris (1975)
172-85
- /D 1/ D.E. DEONIGI, E.A. ESCHBACH
"Production and Indifference Pricing of Transuranium
Isotopes"
Report BNWL-223 (March 1966)
- /D 2/ R.C. DAHLBERG, L.J. COLBY, Jr.
"HTGR Fuel Cycles and Economics"
Symp. on Sol-Gel-Processes and Reactor Fuel Cycles"
Gatlinburg (May 1970) 2 - 11 [CONF-700502]
- /D 3/ E. DETILLEUX, E. LOPES-MENCHERO, L. GEHEM, F. MARCUS
"Requirements and Problems of High-Active Waste Manage-
ment at the Eurochemic Reprocessing Plant"
Proc.Symp. "Solidification and Long-term Storage of
Highly Radioactive Wastes"
Richland, Wash. (Feb. 1966) 30-60 (CONF-660208)
- /D 4/ W. DIEFENBACHER, H. HEIL, H. KRAUSE, M.C. SCHUCHARDT,
H. BORCHERT, K. DÜRR, K. KLARR, K. KÜHN, G. STAUPENDAHL,
E. ALBRECHT, H. KOLDITZ, K. THIELEMANN
"Endlagerung radioaktiver Abfälle" - Jahresbericht 1970,
Report KFK-1454, GSF-T34 (1971)

- /D 5/ R.C. DAHLBERG, K. ASMUSSEN, D. LEE, L. BROOKS, R.K. LANE
"HTGR and Fuel Cycle"
Nucl.Eng.Des. 26 (1974) 58 - 77
- /D 6/ G.J. DAU (comp.)
"Nuclear Waste Management and Transportation Quarterly
Progress Report. July-Sept. 1974"
Report BNWL-1876 (Nov. 1974)
- /E 1/ M.M. EL-WAKIL
"Nuclear Energy Conversion"
Intext Educational Publishers, Scranton, USA (1971)
- /E 2/ H. ESCHRICH
Mol, Belgien, (Mai 1974) unveröffentlicht
- /E 3/ E. Ewest
Hahn-Meitner-Institut, Berlin, private Mitteilung
(Dez. 1974)
- /F 1/ FORATOM
"The Nuclear Power Industry in Europe"
FORATOM-Report (May 1972)
- /F 2/ FICHTNER, Beratende Ingenieure
"Wirtschaftliche Aussichten von mit nuklearer Prozeß-
wärme erzeugtem technischem Wasserstoff"
Kurzstudie im Auftrag des Bundesministers für Bildung
und Wissenschaft, NT 125 (Okt. 1971)
- /F 3/ P. FORTESCUE
"A Reactor Strategy: FBR's and HTGR's"
Nuclear News 15, No. 4 (1972) 36-9
- /F 4/ FORATOM Expert Group
"The Future of Reprocessing in Europe"
FORATOM Report (Feb. 1970)

- /G 1/ W.V. GOEDEL
"Coated Particle Fuels in High Temperature Reactors:
A Summary of Current Applications"
Nucl.Appl. 3 (1967) 599-614
- /G 2/ F. GERA, D.G. JACOBS
"Considerations in the Long-Term Management of High-
Level Radioactive Wastes"
Report ORNL-4762 (Feb. 1972)
- /G 3/ S. GOLAN, R. SALMON
"Nuclear Fuel Logistics"
Nuclear News 16, No. 2 (1973) 47-53
- /G 4/ W. GUBER, W. DIEFENBACHER, W. HILD, H. KRAUSE, E. SCHNEI-
DER, G. SCHUBERT
"Pilot Plant Experience on High-Level-Waste Solidification
and Design of the Engineering Prototype VERA"
Proc.Symp. "Management of Radioactive Wastes from Fuel
Reprocessing", Paris (Nov. 1972) 489-514
- /G 5/ Gesellschaft für Strahlen- und Umweltforschung
"Zur Sicherheit der Endlagerung radioaktiver Abfälle
im Salzbergwerk ASSE"
Broschüre (April 1973)
- /G 6/ F. GERA, D.G. JACOBS
"Hazard Potential of Radioactive Waste"
Proc.Int. Symposium in "Radioecology Applied to the
Protection of Man and his Environment", Rome (Sept. 1971)
- /G 7/ Gesellschaft für Kernforschung
Projekt Actiniden - Jahresbericht 1973
Report KFK-1849 (April 1974)

- /H 1/ G. HÖHLEIN
"Das Projekt PACT"
KFK-Nachrichten 4, No. 1 (1972) 1 - 6
- /H 2/ J. HÖCHEL, G. MATZ, H. SCHWEICKERT, H. WEIDINGER
"Der Brennstoffkreislauf"
Schriftenreihe des Deutschen Atomforums, Heft 19 (1972)
- /H 3/ K.G. HACKSTEIN
"Probleme und Stand des HTR-Brennstoffkreislaufes"
atomwirtschaft 18 (1973) 294-7
- /H 4/ G.C. HANNA, C.H. WESTCOTT, H.D. LEMMEL, B.R. LEONARD,
J.S. STORY, P.M. ATTREE
"Revision of Values for the 2200 m/s Neutron Constants
for Four Fissile Nuclides"
At. Energy Rev. 7 (1969) Heft 4, 3-92
- /H 5/ F.J. HOMAN
"Timing the use of Recycle Fuel in the HTGR"
Trans. Am. Nucl. Soc. 17 (1973) 314-5
- /H 6/ H.O. HAUG
"Calculations and Compilations of Composition,
Radioactivity, Thermal Power, Gamma and Neutron Release
Rates of Fission Products and Actinides of Spent Power
Reactor Fuels and their Reprocessing Wastes"
Report KFK-1945 (1974)
- /H 7/ C.C. HAWS, B.C. FINNEY, W.D. BOND
"Engineering-Scale Demonstration of the Sol-Gel Process"
Report ORNL-4544 (May 1971)

- /H 8/ H.E. HENRY
"Isolation of Americium and Curium from $\text{Al}(\text{NO}_3)_3\text{-NaNO}_3\text{-HNO}_3$ Solutions by Batch Extraction with Tributyl Phosphate"
Report DP-972 (1965)
- /H 9/ W.H. HALE, J.T. LOWE
"Rapid, Gram-Scale Separation of Curium from Americium and Lanthanides by Cation Exchange Chromatography"
Inorg.Nucl.Chem.Lett. 5 (1969) 363-8
- /H 10/ P.A. HAAS, W.D. BOND, M.H. LLOYD, J.P. McBRIDE
"Sol-Gel Process Development and Microsphere Preparation"
Proc. 2nd Int. Thorium Fuel Cycle Symp., Gatlinburg, Tenn. (May 1966) 391-415
- /H 11/ D.E. HORNER, D.J. CROUSE, K.B. BROWN, B. WEAVER
"Fission Product Recovery from Waste Solutions by Solvent Extraction"
Nucl.Sci.Eng. 17 (1963) 234-46
- /H 12/ R.M. HARBOUR, W.H. HALE, G.A. BURNEY, J.T. LOWE
"Large-Scale Separation of Transplutonium Actinides by Pressurized Cation Exchange"
Atomic Energy Review 10 (1972) 379-99
- /H 13/ J. HAMSTRA
"Radiotoxic Hazard Measure for Buried Solid Radioactive Wastes"
Nuclear Safety 16 (1975) 180 - 189
- /H 14/ H. HEPP
"Behandlung und Lagerung von radioaktiven Abfällen"
VGB-Konferenz "Kraftwerk und Umwelt", Essen (Feb. 1973)
- /H 15/ J. HAMSTRA
private Mitteilung (Okt. 1974)

- /I 1/ IAEA
"Standardization of Radioactive Waste Categories"
Report of a Panel held in Vienna, Nov. 1967
Technical Report Series No. 101, IAEA, Wien (1970)
- /I 2/ International Commission on Radiological Protection
"Recommendations of the International Commission on
Radiological Protection"
ICRP-Publication No. 2 (1959), No. 6 (1964)
- /J 1/ P. JANSEN
Programm zur Berechnung von Reaktorstrategien (unver-
öffentlicht)
- /J 2/ Jahrbuch der Atomwirtschaft 1974
(Handelsblatt Verlag, Düsseldorf)
- /K 1/ K. KÜHN
"Die radioaktiven Abfälle"
Neue Technik 13 (1971) 61-68
- /K 2/ H. KRAUSE
"Die Lagerung radioaktiver Abfälle"
Naturwissenschaften 59 (1972) 412-7
- /K 3/ A.S. KUBO, D.J. ROSE
"Disposal of Nuclear Waste"
Science 182 (1973) 1205-11
- /K 4/ K. KÜHN, W. DIEFENBACHER, H. KRAUSE, H. SCHMIDT
"Disposal of Solidified High-level Radioactive Wastes
in the Asse Salt Mine"
Proc.Symp. on "Management of Radioactive Wastes from
Fuel Reprocessing", Paris (Nov. 1972) 917 - 32
- /K 5/ L. KÜCHLER, L. SCHÄFER, B. WOJTECH
"Der Thorex-Zweistufen-Prozeß zur Wiederaufarbeitung
thoriumhaltiger Kernbrennstoffe mit hohem Abbrand"
Kerntechnik 13 (1971) 319-22

- /K 6/ G. KOCH
"Recovery of By-Product Actinides from Power Reactor Fuels"
Report KFK-976 (1969)
- /K 7/ G. KOCH, Z. KOLARIK, H. HAUG, W. HILD, S. DROBNIK
"Recovery of Transplutonium Elements from Fuel Reprocessing High-Level Waste Solutions"
Proc.Symp. "Management of Radioactive Wastes from Fuel Reprocessing", Paris (Nov. 1972) 1081-1110
- /K 8/ K.D. KUHN, G. MÜHLING, K. SCHEFFLER
"Analytische Überwachung der Produktion von Kernbrennstoffen"
Chemiker-Zeitung 95 (1971) 350-5
- /K 9/ K. KÜHN
Institut für Tieflagerung der GSF, Clausthal-Zellerfeld
private Mitteilung (Okt. 1973)
- /K 10/ L. KÜCHLER, L. SCHÄFER, B. WOJTECH
"Labor- und Heißzellenversuche über die Anwendbarkeit des sauren Interim-23-Prozesses zur Wiederaufarbeitung hochabgebrannter thoriumhaltiger Kernbrennstoffe"
Kerntechnik 13 (1971) 225-9
- /K 11/ J.A. KELLEY
"Ion Exchange Process for Separating Americium and Curium from Irradiated Plutonium"
Report DP-1308 (1972)
- /K 12/ G. KOCH
"Gewinnung von Neptunium-237, Plutonium-238 und Plutonium-242"
Gmelin Handbuch der Anorganischen Chemie, 8. Aufl.
Erg. Werk, Bd. 7b, "Transurane" (Hrsg. G. KOCH)
Teil A1, II, Kap. 5.5, 288-315 (Springer Verlag, 1974)

- /K 13/ G. KOCH
"A Study on Americium/Curium Recovery from Fuel Reprocessing High-Level Waste Solutions" in A.S. KERTES, Y. MARCUS (eds.) "Solvent Extraction Research", Proc. 5th Int.Conf.Solvent Extr.Chem., Jerusalem, Sept. 1968 (Wiley-Interscience 1969)
- /K 14/ R. KAEMPFER, J.G. WILHELM (eds.)
Jahresbericht des Labors für Filtertechnik
Report KFK-2165 (1975) 9-21
- /L 1/ W. LINS, W. STOLL
"Brennelemente und äußerer Brennstoffkreislauf"
in Jahrbuch der Atomwirtschaft (1973) A59-A66
- /L 2/ J.R. LAMARSH
"Nuclear Reactor Theory"
Addison-Wesley Publ.Comp., New York (1966)
- /L 3/ H.W. LEVI, G. MALOW, E. SCHIEWER
"Weiterentwicklung von Verfestigungsprodukten für Abfälle aus der Aufarbeitung bestrahlter Kernbrennstoffe"
Atomwirtschaft 18 (1973) 177-8
- /L 4/ R.D. LEUZE, R.D. BAYBARZ, B. WEAVER
"Application of Amine and Phosphonate Extractants to Transplutonium Element Production"
Nucl.Sci.Eng. 17 (1963) 252
- /L 5/ J.T. LOWE, W.H. HALE, D.F. HALLMAN
"Development of a Pressurized Cation Exchange Chromatographic Process for Separation of Transplutonium Actinides"
Ind.Eng.Chem.Process Des.Dev. 10 (1971) 131-5
- /L 6/ Los Alamos Scientific Lab., H-Division Staff,
Environmental Studies Group, Waste Management Studies
"Transuranic Solid Waste Management Research Programs"
Quarterly Report April-June 1974
Report LA-5762-PR (1974)

- /M 1/ H. MANDEL
"Strukturen der nuklearen Stromerzeugung in den
70er und 80er Jahren "
atomwirtschaft 18 (1973) 18-24
- /M 2/ P.E. McGRATH, R. SCHRÖDER, H. HAUG
"Eine Prognose über die Entwicklung der Kernenergie-
wirtschaft in der BRD bis zum Jahre 2010"
unveröffentlicht (Kurzfassung in Anhang 1)
- /M 3/ D.L. MEADOWS
"Die Grenzen des Wachstums"
Deutsche Verlagsanstalt, Stuttgart (1972)
- /M 4/ E. MERZ, M. LASER, E. ZIMMER
"Schließung des äußeren Brennstoffkreislaufes von
Hochtemperaturreaktoren"
Kerntechnik 15 (1973) 249-56
- /M 5/ F.R. MARCUS, F. SEYNAEVE
"Demands for Reprocessing Services and the Planning
of Industrial Reprocessing Facilities in Western
Europe"
Proc. Fourth Int. Conf. on Peaceful Uses of At. Energy,
Geneva, 4 (1972) 281-92 [A/CONF 49/P/640]
- /M 6/ H. MÄRKL, W. STOLL
"Rückführung von Plutonium in thermische Reaktoren"
Atomwirtschaft 17 (1972) 306-12
- /M 7/ W. MÜLLER
"The Extraction of Actinides by Alkyl-Substituted
Ammonium Salts"
Actinide Reviews 1 (1967) 71-119

- /M 8/ P.E. McGRATH
"Radioactive Waste Management Potentials and Hazards
from a Risk Point of View"
KfK-Report-1992 (1974)
- /M 9/ R.P. MATSON
"An Analysis of Yankee-Rowe Burn up Data"
Report BNWL-1122 (July 1969)
- /M 10/ J.L. McELROY (comp.)
"Quarterly Progress Report. Research and Development
Activities Waste Fixation Program. July-Sept. 1974"
Report BNWL-1871 (Nov. 1974)
- /N 1/ Nuklidkarte, 4. Auflage 1974
W. SEELMANN-EGGEBERT, G. PFENNIG, H. MÜNZEL
Gesellschaft für Kernforschung mbH, Karlsruhe
- /O 1/ Staff of Oak Ridge National Laboratory
"Siting of Fuel Reprocessing Plants and Waste
Management Facilities"
Report ORNL-4451 (July 1970)
- /P 1/ W.L. POE, A.W. JOYCE, R.I. MARTENS
"Np-237 and Pu-238 Separation at the Savannah River
Plant"
IEC Proc.Des.Dev. 3 (1964) 314-22
- /P 2/ A.M. PLATT, R.W. RAMSEY
"Long-Term Waste Management Methods"
Proc.Symp. "Management of Radioactive Wastes from
Fuel Reprocessing", Paris (Nov. 1972) 409-429
- /P 3/ F.K. PITTMAN
"High-Level Radioactive Waste Management Alternatives"
USAEC Report WASH-1297 (May 1974)

- /R 1/ G. RUDOLPH, J. SAIDL, S. DROBNIK, W. GUBER, W. HILD,
H. KRAUSE, W. MÜLLER
"Lab-Scale R+D Work on Fission Product Solidification
by Vitrification and Thermite Processes"
Proc.Symp. "Management of Radioactive Wastes from
Fuel Reprocessing", Paris (Nov. 1972) 655-81
- /R 2/ A.F. RUPP
"A Radioisotope-Oriented View of Nuclear Waste Manage-
ment"
Report ORNL-4776 (May 1972)
- /R 3/ R.W. RAMSEY, G.H. DALY, A.G. BLASEWITZ, R.C. COOLEY,
G.L. RICHARDSON
"Overview of Management Programs for Plutonium
Contaminated Solid Waste in the USA"
Proc. Seminar "Management of Plutonium-Contaminated
Solid Wastes", Marcoule Oct. 1974, OECD Paris (1975)
62-77
- /S 1/ K.J. SCHNEIDER
"Status of Technology in the United States for
Solidification of Highly Radioactive Liquid Wastes"
Report BNWL-820 (Oct. 1968)
- /S 2/ K.J. SCHNEIDER
"Solidification and Disposal of High-Level Radio-
active Wastes in the United States"
Reactor Technology 13 (1970/71) 387-415
- /S 3/ 1. Strahlenschutzverordnung (SSVO)
Bundesgesetzblatt Nr. 61 (Okt. 1965) 1653-84
- /S 4/ B.I. SPINRAD
"The Role of Nuclear Power in Meeting World Energy
Needs"
Proc.Symp. on Environmental Aspects of Nuclear Power
Stations, IAEA, 10-14 Aug. 1970, New York

- /S 5/ H.-L. SCHERFF
"Protactinium"
Euratom Review 1 (1968) 74-81
- /S 6/ H.B. STEWART, R.C. DAHLBERG, W.V. GOEDEL, D.B. TRAUGER,
P.R. KASTEN, A.L. LOTT
"Utilization of the Thorium Cycle in the HTGR"
Proc. Fourth Int.Conf. on Peaceful Uses of At.En.,
Geneva, 4 (1972) 433-46
- /S 7/ W. SCHIKORR
"Reaktorstrategie zu einer autarken Primärenergie-
versorgung"
Reaktortagung, Berlin (April 1974)
- /S 8/ B.W. SOUTHWORTH, D.H. LEE, R.C. DAHLBERG
"Use of Low Enrichment Uranium in the HTGR"
Report GA-9715 (Sept 1970)
- /S 9/ M. STEINBERG, G. WOTZAK, B. MANOWITZ
"Neutron Burning of Long-Lived Fission Products for
Waste Disposal"
Report BNL-8558 (1964)
- /S 10/ K.J. SCHNEIDER, A.M. PLATT (eds.)
"Advanced Waste Management Studies: High-Level Radio-
active Waste Disposal Alternatives"
USAEC-Report BNWL-1900 (May 1974)
- /S 11/ K. SCHNEIDER (ed.)
"Waste Solidification Program. Vol. 1. Process Technology:
Pot, Spray, and Phosphate Glass Solidification Processes"
Report BNWL-1073 (Aug. 1969)
- /S 12/ Savannah River Laboratory
"Large Scale Production and Applications of Radio-
isotopes"
Report DP-1066, Vol. II (1966)

- /S 13/ Stanford Research Institute
"Patterns of Energy Consumptions in the United States"
Office of Science and Technology, Washington D.C.,
PB 212-776/9 (Jan. 1972)
- /S 14/ S.H. SMILEY
"Waste Management-Licensing and Criteria"
Nucl. Technol. 24 (Dec. 1974) 294-299
- /S 15/ T.H. SMITH, W.K. WINEGARDNER, G. JANSEN, L.D. WILLIAMS,
T.I. McSWEENEY
"A Methodology for Risk Analysis of Nuclear Waste
Management Systems"
Report BNWL-SA-4899 (June 1974)
- /S 16/ H. SOULIER
"Incinérateur de déchets riches en émetteurs alpha de
Marcoule Fonctionnement"
Proc. Seminar "Management of Plutonium-Contaminated
Solid Wastes"
Marcoule, Oct. 1974, OECD Paris (1975) 163-171
- /S 17/ W.-J. SCHMIDT-KÜSTER
"Internationale Strukturen des nuklearen Brennstoff-
kreislaufes"
Atomwirtschaft 20 (1975) 282-8
- /T 1/ H.H. van TUYL, W.K. WINEGARDNER, R.K. HILLIARD, C.R.
COOLEY
"A Survey of Alpha Waste Generation and Disposal
as Solids in the U.S. Nuclear Fuel Industry"
Report BNWL-B-34 (Dec. 1970)
- /T 2/ U. TILLESSEN, H. JAUER, J. KAYSER
"Studie zur Schließung des HTR-Brennstoffkreislaufes"
Report NUKEM-119 (Aug. 1973)

- /U 1/ UNIPEDE Working Group
"Prospects of Development of Fast Breeder Reactors in
the European Community"
Report (March 1973)
- /U 2/ USAEC
"AEC Predicts Nuclear Power Growth to the Year 2000"
Nuclear News 16, No. 4 (1973) 37-8
- /U 3/ USAEC
"Nuclear Power 1973 - 2000"
WASH-1139 (72) (Dec. 1, 1972)
- /U 4/ USAEC
"Reprocessing of Dresden Reactor Fuel at Nuclear
Fuel Services, Inc., West Valley Facility"
Report SRO-123 (Oct. 1968)
- /U 5/ USAEC
"Reprocessing of Yankee Reactor Fuel at Nuclear Fuel
Services, Inc., West Valley Facility"
Report SRO-124 (Oct. 1968)
- /U 6/ USAEC
"Environmental Statement: Liquid Metal Fast Breeder
Reactor Demonstration Plant"
Report WASH-1509 (April 1972)
- /U 7/ USAEC
Draft Environmental Statement: "Management of Commer-
cial High Level and Transuranium Contaminated Radio-
active Waste"
Report WASH-1539 (Sept. 1974)
- /U 8/ USAEC Working Group
"Compaction of Radioactive Solid Waste"
Report WASH-1167 (1970)

- /V 1/ D.R. VONDY, J.A. LANE, A.T. GRESKY
"Production of Np-237 and Pu-238 in Thermal Power Reactors"
Ind.Eng.Chem.Proc.Des.Dev. 3 (1964) 293-6
- /V 2/ B. VERKERK
Reactor Centrum Nederland, Petten
Private Mitteilung, Okt. 1974
- /V 3/ V.C.A. VAUGHEN
"Recovery of Americium and Curium"
Gmelin Handbuch der Anorganischen Chemie, 8. Aufl.
Erg. Werk, Bd. 7b, "Transurane" (Hrsg. G. KOCH)
Teil A1, II, Kap. 5.6, 315-326 (Springer Verlag, 1974)
- /W 1/ U. WENZEL
Kernforschungsanlage Jülich, Institut für Chemische Technologie
private Mitteilung (1973)
- /W 2/ P.J. WOOD, M.J. DRISCOLL
"The Economics of Thorium Blankets for Fast Breeder Reactors"
Trans.Am.Nucl.Soc. 17 (1973) 314
- /W 3/ W.C. WOLKENHAUER, B.R. LEONARD, B.F. GORE
"Transmutation of High-level Radioactive Waste with a Controlled Thermonuclear Reactor"
Report BNWL-1772 (Sept. 1973)
- /W 4/ B. WEAVER, F.A. KAPPELMANN
"TALSPEAK: A New Method for Separating Americium and Curium from the Lanthanides by Extraction from an Aqueous Solution of an Aminopolyacetic Acid Complex with a Monoacidic Organophosphate or Phosphonate"
Report ORNL-3559 (1964)

- /W 5/ B. WEAVER, F.A. KAPPELMANN
"Preferential Extraction of Lanthanides over Trivalent Actinides by Monoacidic Organophosphates from Carboxylic Acids and from Mixtures of Carboxylic and Aminopolyacetic Acids"
J.Inorg.Nucl.Chem. 30 (1968) 263
- /W 6/ E.J. WHEELWRIGHT, F.P. ROBERTS, L.A. BRAY, G.L. RITTER, A.L. BOLT
"Simultaneous Recovery and Purification of Pm, Am, and Cm by the Use of Alternating DTPA and NTA Cation Exchange"
Report BNWL-SA-1462 (1968)
- /W 7/ J.J. WENT
"Energy for the Future"
Europhysics News 4, No. 10 (1973) 1 - 4
- /W 8/ J.T. WEILLS
"Towards a quasi-steady-state energy supply"
Nuclear News 16, No. 14 (1973) 89-94
- /W 9/ J.G. WILHELM, H. SCHÜTTELKOPF
"An Inorganic Adsorber Material for Off-Gas Cleaning in Fuel Reprocessing Plants"
Proc. 12th USAEC Air Cleaning Conf. (Aug. 1972) 540;
/CONF-720823 (1972) 540/
- /Z 1/ P. ZÜHLCKE
"Europäische Zusammenarbeit bei der Wiederaufarbeitung bestrahlter Kernbrennstoffe"
Atom und Strom 18 (1972) 128-31
- /Z 2/ D.L. ZIEGLER, A.J. JOHNSON, L.J. MEILE, A.J. JOHNSTON, E.L. SHAMHART
"Pilot Plant Development of a Fluidized Bed Incineration Process"
Report RFP-2271 (Oct. 1974)

Anhang 1

Eine Prognose der Entwicklung der Kernkraftwerke in der BRD und in Westeuropa

A.1 Prognosezeitraum

Die Unsicherheit einer Prognose nimmt notwendigerweise mit zunehmender Länge des betrachteten Zeitraums rasch zu. Da jedoch erst in den 90er Jahren mit einem merklichen Einsatz der Hochtemperaturreaktoren und Schnellen Brüter zu rechnen ist, wurde der Vorhersagezeitraum bis zum Jahre 2010 gewählt. (Einige Rechnungen wurden bis zum Jahr 2020 ausgedehnt, um alle für das Jahr 2010 gewünschten Angaben zu erhalten).

Die maximale Prognose für den betrachteten Zeitraum (1970 bis 2010) zeigt einen Anstieg der Elektrizitätserzeugung und der installierten elektrischen Leistung um mehr als den Faktor 10. Gründe, wie die resultierende hohe jährliche Zubaurate oder der hohe Prokopfverbrauch lassen es nicht sinnvoll erscheinen, den betrachteten Zeitraum weiter auszuweiten. Andererseits sind die Faktoren, die zu einer Reduzierung der jährlichen Zuwachsraten, d.h. zur S-Form der Elektrizitätserzeugungskurve, führen werden, noch zu wenig bekannt. Deshalb soll die Bandbreite der hier aufgestellten Prognose auch nur den unteren Teil der S-förmigen Energiekurve erfassen.

A.2 Wachstum des Primärenergieverbrauchs

Die mittlere Wachstumsrate des Primärenergieverbrauchs zwischen 1950 und 1970 belief sich in der Europäischen Gemeinschaft (der 6 Staaten) auf 5,3 % pro Jahr, 4,9 % in der BRD und 3,5 % in den USA /M1/. In den USA gleicher-

maßen wie in der BRD beträgt der Anteil der elektrischen Energie am Primärenergieverbrauch gegenwärtig ca. 25 % /S13,M1/. Die übrigen 75 % des Primärenergieverbrauchs teilen sich auf andere Energieträger auf, die in Haushalt, Gewerbe, Industrie und Verkehr verbraucht werden.

Die durchschnittliche Wachstumsrate der Elektrizitätserzeugung war in der BRD zwischen 1960 und 1970 7,9 % pro Jahr, woraus zu ersehen ist, daß der Anteil der elektrischen Energie am Gesamtenergieverbrauch weit über seinen gegenwärtigen Wert von 25 % hinauswachsen wird. Der Grund liegt in einem Substitutionseffekt der Elektrizität durch ihre vielseitigen Einsatzmöglichkeiten und Umweltfreundlichkeit gegenüber anderen Primärenergieträgern.

Nach Voraussagen von MANDEL /M1/ für die Bundesrepublik wird 1985 die elektrische Energie ca. 39 % des Gesamtenergiebedarfs ausmachen. Gegen Ende des Jahrhunderts dürfte sich der Primärenergieverbrauch in der BRD mehr als verdoppeln, wobei der Anteil des Elektrizitätsverbrauchs rund 50 % sein würde /M1/.

A.3 Wachstum des Verbrauchs elektrischer Energie

Die Bruttoelektrizitätserzeugung belief sich 1970 in der BRD auf 242,6 TW_eh (öffentliche Kraftwerke 167,2 TW_eh, industrielle Kraftwerke 75,4 TW_eh), was gegen das vorangegangene Jahr einen Anstieg um 7,3 % darstellte. Die durchschnittliche jährliche Anstiegsrate zwischen 1960 und 1970 war 7,9 %.

Um die Erzeugung an elektrischer Energie für die nächsten 50 Jahre abzuschätzen, werden die beiden Bereiche, der öffentliche und der industrielle, getrennt betrachtet, weil

das Wachstum in den genannten Sektoren nicht von denselben Faktoren abhängt, und folgende Annahmen gemacht:

- Für die Abschätzung des oberen Grenzwerts:

- a) Konstante Wachstumsrate von 7,15 % pro Jahr auf dem öffentlichen Sektor von 1970 bis 2020. Das entspricht einer Verdopplungszeit von 10 Jahren, wie sie etwa gegenwärtig vorliegt.
- b) Konstante Wachstumsrate von 4,0 % im industriellen Bereich im selben Zeitraum.

- Für die Abschätzung des unteren Grenzwerts:

- a) Eine linear abnehmende Wachstumsrate im öffentlichen Bereich von

1970 bis 1980	7,15 % pro Jahr
1980 bis 1990	6,2 % " "
1990 bis 2000	5,1 % " "
2000 bis 2010	4,0 % " "
2010 bis 2020	3,0 % " "

Hiermit soll der Annäherung an einen Sättigungszustand Rechnung getragen werden.

- b) Gleichbleibendes Wachstum von 4 % pro Jahr im industriellen Bereich zwischen 1970 und 2020.

Die unter Berücksichtigung dieser Annahmen berechneten Werte für die Elektrizitätserzeugung wurden in Fig. 2.1 (Kapitel 2) grafisch dargestellt.

A.4 Installierte elektrische Leistung

Die installierte elektrische Leistung kann aus der Elektrizitätserzeugung mit Hilfe der zugehörigen Lastfaktoren errechnet

werden. Zur Abschätzung des Maximums wurde pessimistisch angenommen, daß bis 2020 die Ausnutzung der Kraftwerkstationen nicht besser als im Jahre 1970 sein wird, in dem der für die BRD gültige Lastfaktor von 0,545 errechnet:

$$\frac{243 \text{ TW}_e \text{ h/a}}{51 \text{ GW}_e} \cdot \frac{1}{8760 \text{ h/a}} = 0,545$$

Für die Minimalabschätzung wird optimistisch angenommen, daß in der BRD im Jahr 2010 der durchschnittliche Lastfaktor bei 0,7 in der gleichen Größe wie der in einigen Ländern (Israel, DDR) heute schon erreichte Wert (0,685) liegt. Durch lineare Interpolation ergaben sich die am Ende jeder Zehnjahresperiode gültigen Lastfaktoren zu:

1970	0,545
1980	0,584
1990	0,622
2000	0,662
2010	0,700

Die in Fig. 2.2 (Kapitel 2) dargestellten Werte für die installierte Leistung (Engpaßleistung) beruhen auf diesen Annahmen.

A.5 Installierte Kernkraftwerksleistung

Um das Eindringen der Kernenergie in die Elektrizitätserzeugung abzuschätzen, wurden repräsentative Zahlen der voraussichtlichen Marktdurchdringung der Kernenergie übernommen, die mit denen von MANDEL /M1/ und SPINRAD /S4/ in Einklang sind.

Diese sind für die maximale Abschätzung für die BRD:

- 1980: Maximalschätzung von FORATOM /F1/, d.h. ca. 35 % der Elektrizitätserzeugung durch Kernenergie (Lastfaktor 0,8);
- 2000: 85 % der erzeugten Elektrizität sei nuklearen Ursprungs;
- 2020: 85 % der gesamten installierten elektrischen Leistung ("Engpaßleistung") sei nuklear, d.h. Kernkraftwerke übernehmen einen Teil der Spitzenlast.

Für die minimale Abschätzung wurden folgende Annahmen zugrunde gelegt:

- 1980: Niedriger FORATOM-Schätzwert minus 2 GW_e;
- ab 2000: Nur die Grundlast, die 65 % der Elektrizitätserzeugung ausmacht, würde durch Kernkraftwerke mit einem Lastfaktor 0,8 gedeckt.

Zwischenwerte wurden durch einfache Interpolation ermittelt. Die erhaltenen Werte für die installierte Kernkraftwerksleistung sind in Fig. 2.2 (Kapitel 2) dargestellt und mit der gesamten installierten elektrischen Leistung verglichen.

Es ist von Interesse, einen Vergleich der hier vorgelegten Ergebnisse und anderer Voraussagen anzustellen. Dazu wurden Skalenfaktoren gebildet, die das Verhältnis der Elektrizitätserzeugung in anderen Teilen der Welt zu der in der BRD darstellen. Diese Näherung ist sicherlich sehr grob und enthält die Annahme, daß die durchschnittlichen Wachstumsraten und Auslastungen der Kraftwerke in den betrachteten Gebieten gleich sind. Der Vergleich wurde daher auf Länder ähnlicher Industrialisierung wie die der Bundesrepublik beschränkt. Die Skalenfaktoren wurden durch Mittelung über die Jahre 1968 bis 1970 für folgende Gebiete gewonnen:

EWG (6)	2,4
EG (9)	3,5
Westeuropa	4,7
USA	7,0

Die Darstellung in Fig. 2.3 (Kapitel 2) macht die relative Entwicklung in der BRD, Westeuropa und den USA deutlich. Zusätzlich sind einige früher veröffentlichte Voraussagen /S4,U2,U3,A1/ sowie eine neuere Prognose /B15/ unter Zugrundelegung der bereits installierten Kernkraftwerke und von Zubauprogrammen eingeschlossen.

A.6 Anteil verschiedener Reaktortypen

Für die Strategierechnung zur Ermittlung des Zubaus der einzelnen Reaktortypen wurden folgende Annahmen gemacht:

- Bis 1980 nur LWR mit Plutoniumrezyklierung,
- ab 1980 HTR und weiter LWR mit Plutoniumrezyklierung bis zur Einführung des SBR,
- ab 1987 LWR, HTR und SBR (Oxid).

Die Zubaurate des HTR wurde von 10 % auf 25 % steigend angenommen /M1,B5,U1/ und zwar

- | | |
|---|------|
| - 1980 bis 1985 Anteil am Kernkraftwerkszuwachs | 10 % |
| - 1985 bis 2000 " " " " | 20 % |
| - 2000 bis 2020 " " " " | 25 % |

Der hieraus resultierende Anteil des HTR an der gesamten installierten elektrischen Kernenergieleistung wurde vorgegeben, dem LWR fällt der übrige Marktanteil zu.

Mit Beginn des Zubaus von Schnellen Brütern endet die Rezyklierung von Plutonium im LWR. Der Brüterzubau erfolgt

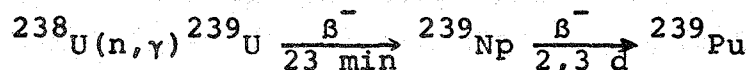
entsprechend der Menge in LWR und SBR erzeugten Plutoniums. Um das Bild nicht unnötig zu komplizieren wurde für die hier gewählte Strategie auf die Einführung von karbidischem Brennstoff für den Schnellen Brüter verzichtet.

Nach den aufgeführten Randbedingungen und zusätzlichen reaktorphysikalischen Angaben für 1000 MW_e Referenzreaktoren (siehe Tabelle 3.1) wurde mit Hilfe eines Rechenprogramms für Reaktorstrategie /J1/ der Anteil der Leichtwasserreaktoren (je zur Hälfte Druck- und Siedewasserreaktoren) und der Schnellen Brutreaktoren berechnet und in Tabelle 2.1 und Fig. 2.4 (Kapitel 2) zusammengefaßt.

Anhang 2

Aufbau der Transurane im Uran-Plutonium-Brennstoffzyklus

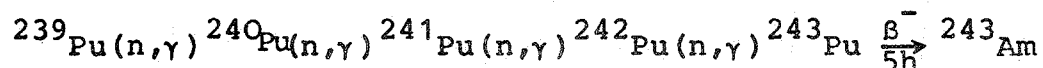
In jedem Kernreaktor, dessen Brennstäbe neben dem Spaltstoff U-235 auch das mit thermischen Neutronen nicht spaltbare U-238 enthalten, erfolgt durch das U-238 ein Einfang von Neutronen, wodurch auf dem Wege über kurzlebige Zwischennuklide Plutonium-239 gebildet wird:



(α -Strahler; 24400 a)

In erster Näherung gilt für den LWR, daß die bei der Spaltung entstehenden nutzbaren Neutronen zu etwa 60 % in Aufrechterhaltung der Kettenreaktion weitere Spaltungen hervorrufen, zu etwa 40 % durch Einfang zum Aufbau höherer Transuranisotope, wie in Fig. 3.2 dargestellt ist, führen /L2/.

Vom gebildeten spaltbaren Pu-239 wird während des Reaktorbetriebs bis zur Entnahme der Brennelemente ebenfalls ein Teil wieder gespalten und trägt damit zur Energieerzeugung bei, so daß gegen Ende des Abbrands ca. 30 % der Wärmeenergie aus Plutonium erzeugt wird /H2/. Ein anderer Teil des gebildeten Pu-239 fängt während der langen Verweilzeit im Reaktor Neutronen ein, so daß sich ein Gemisch höherer Plutoniumisotope bis zur Massenzahl 242 aufbaut.



Das nicht abgebrannte Plutonium fällt bei der Wiederaufarbeitung an und stellt einen wertvollen Kernbrennstoff

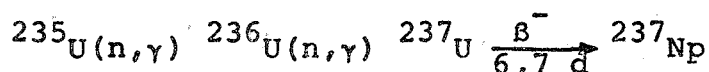
dar. Bei hochabgebranntem LWR-Brennstoff liegt die Isotopenzusammensetzung des Plutoniums /H2, M9/ im Bereich der in Tabelle A.2.1 angegebenen Werte.

Tabelle A.2.1 Mittlere Isotopenzusammensetzung von LWR-Plutonium

Nuklid	Ref. /H2/ extrapoliert auf ca. 34000 MWd/t (DWR und BWR)	YANKEE-ROWE gemessene Werte /M9/, auf 34000 MWd/t interpoliert	Rechnungen dieser Arbeit	
			DWR (34000 MWd/t)	
			3,3 % U-235	Pu-Rezyklierung
Pu-238	0,4 - 1,3 %	1,5 %	2 %	2 %
Pu-239	48 - 57	59,4	58	49 - 51
Pu-240	24 - 33	20,9	24	24 - 25
Pu-241	12 - 15	13,9	12	14
Pu-242	5 - 9	4,3	4	9 - 11
spaltbares Pu	60 - 70	73	70	62 - 64

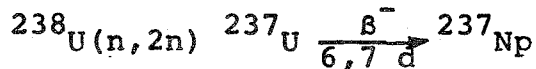
Der Aufbau schwerer Isotope endet nicht beim Plutonium, sondern führt, wie in Fig. 3.2 ersichtlich, weiter zu den Isotopen der Elemente Americium und Curium, deren Menge in abgebrannten Kernbrennstoffen vergleichsweise Tabelle 3.2 (Kapitel 3) entnommen werden kann.

Auch beim U-235 führt die Reaktion mit thermischen Neutronen neben der Spaltung zu etwa 15 % Neutroneneinfang. Es entsteht U-236 und durch weiteren Neutroneneinfang (U-237) mit anschließendem Betazerfall das Transuran Neptunium-237.



(α -Strahler; $2,2 \cdot 10^6 \text{ a}$)

Np-237 wird andererseits auch aus U-238 mit schnellen Neutronen durch (n,2n)-Reaktion gebildet:



In thermischen Reaktoren mit angereichertem Uran (> 1 % U-235) und hohen Abbränden erfolgt die Produktion von Np-237 überwiegend durch Neutroneneinfang /B4,V1/.

Da der Einfangquerschnitt des U-236 im Bereich epithermischer Neutronen durch Resonanzen ansteigt, liegt die Produktion von Neptunium-237 in Reaktoren mit "härterem" Neutronenspektrum höher (z.B. Druckwasserreaktoren gegenüber Siedewasserreaktoren). Zusätzlich steigt die Neptuniumerzeugung beim Rezyklieren von U-236 in wiederaufgearbeitetem Uran /D1/, da nur etwa 40 % des U-236 bei der Urananreicherung abgetrennt werden /A4/.

In ähnlicher Weise steigt mit Zunahme der mittleren (thermischen) Neutronenenergie der Einfangquerschnitt von Pu-239, Pu-240, Pu-242 sowie von Am-241 und Am-243 und folglich die Bildung der schweren Nuklide an.

Anhang 3

Notizen zum Thorium-Uran-Brennstoffzyklus mit coated-particle-Brennstoff

Wegen seiner kernphysikalischen Eigenschaften, die in Tabelle A.3.1 zusammengestellt sind /H4/, eignet sich Uran-233 besonders vorteilhaft als Spaltstoff für thermische Reaktoren. Das Verhältnis α von Einfangsquerschnitt zu Spaltquerschnitt ist sehr klein ($\alpha = 0.089$). Die pro absorbiertem Neutron freigesetzte effektive Neutronenzahl liegt im gesamten thermischen Bereich bei 2,2 bis 2,3 und damit höher als bei U-235 und Plutonium /L2/. Rechnet man die unvermeidlichen Neutronenverluste durch Absorption (z.B. im Strukturmaterial etc.) und Leckagen aus dem Reaktorkern ab, dann ergibt sich ein Konversionsfaktor von ca. 0,8 bis 0,9, d.h. ein Reaktorkern mit U-233 als Spaltstoff kann im Bereich thermischer Neutronen über 80 % des spaltbaren Materials, das er verbraucht, wieder aus Thorium erbrüten. Die fehlende Menge muß durch U-233 aus anderen Reaktoren, z.B. Schnellen Brütern mit Thoriumblanket (vgl. Kapitel 3.3.4) oder durch U-235 ergänzt werden.

Uran-233 kann nach folgender Reaktionsgleichung gewonnen werden:

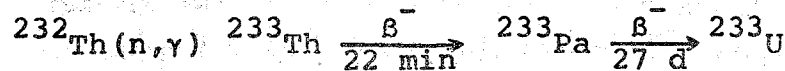


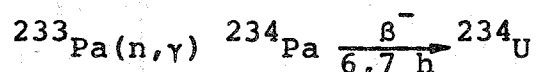
Tabelle A.3.1 Kernphysikalische Konstanten einiger spaltbarer Nuklide für 0.025 eV Neutronen /H4/

	^{233}U	^{235}U	^{239}Pu	^{241}Pu
σ_f	531	580	742	1007
σ_c	47	98	271	368
α	0.089	0.169	0.366	0.365
η	2.284	2.072	2.109	2.149
$\bar{\nu}_t$	2.487	2.423	2.880	2.934

α Verhältnis von Einfangquerschnitt σ_c zu Spaltquerschnitt σ_f
 η pro absorbiertem Neutron effektiv freigesetzte Neutronenzahl
 $\bar{\nu}_t$ mittlere pro Spaltung freigesetzte Neutronenzahl

In dieser Kernreaktionsgleichung der Th-232/U-233-Brutreaktion spielt das Zwischenprodukt Protaktinium-233 eine wichtige Rolle /S5/. Es besitzt mit 27 Tagen Halbwertszeit eine mehr als zehnmal so lange Halbwertszeit als das Np-239 in der U-238/Pu-239 Reaktionskette. Dies hat folgende Konsequenzen:

- während der Bestrahlung der Brennelemente im Reaktor baut sich eine hohe Pa-233 Konzentration (0,2 bis 2 %) in der Thoriummatrix auf. Pa-233 fängt selbst Neutronen ein,



(α -Strahler; $2,47 \cdot 10^5$ a)

die in der Gesamtneutronenbilanz verloren gehen. Bei Anwesenheit von 1 % Pa-233 im Brutstoff gehen durch diese Absorption ca. 10 % der Neutronen verloren, wodurch der Konversionsfaktor um etwa 0.1 erniedrigt wird /S5/.

- Die längere Halbwertszeit des Pa-233 bedingt nach der Entnahme der Brennelemente aus dem Reaktor eine längere Lagerzeit bis zur chemischen Wiederaufarbeitung (270 d bis 1 a), damit alles Pa-233 in Uran-233 zerfallen kann.

Beschreibung des Brennstoffzyklus

Im Uran-Plutonium- und im Thorium-Uran-Brennstoffkreislauf sind die prinzipiellen Verfahrensstufen, wie sie in Fig. 3.1 (Kapitel 3) dargestellt sind, weitgehend analog. Im folgenden soll auf einige Besonderheiten des Thorium-Uran-Zyklus hingewiesen werden.

Brennstoffkonzepte der HTR

Die Entwicklungsarbeiten im Thoriumbrennstoffzyklus konzentrieren sich überwiegend auf die Verwendung von

- Uran-235 und Thorium in einem nicht geschlossenen Brennstoffzyklus und
- der Rezyklierung des erbrüteten U-233 unter Ausgleich des fehlenden Spaltstoffs mit U-235 in einem geschlossenen Brennstoffkreislauf.

Beim gegenwärtigen Entwicklungsstand der Hochtemperaturreaktoren und des Thorium-Uran-Brennstoffzyklus kann im technischen Maßstab noch nicht von einem geschlossenen Brennstoffkreislauf gesprochen werden. Wesentliche Komponenten, wie ein geeignetes Wiederaufbereitungsverfahren und die Refabrikation, befinden sich noch in der Entwicklung /H3,M4/. Deshalb wird der offene U-235/Th-Zyklus den Referenzfall bis

zur 2. Hälfte der 80-er Jahre darstellen. Bis dahin sollte durch die installierte HTR Kapazität eine Wiederaufarbeitung auch wirtschaftlich interessant werden /H5, T2/.

Brennelemente

Die Brennelemente der gasgekühlten Hochtemperaturreaktoren bestehen aus Brennstoffteilchen, die in eine Graphitmatrix eingebettet sind. Die Brennstoffteilchen sind 0,2 bis 0,8 mm dicke Kügelchen aus Uran- und Thoriumoxid (oder -carbid), die zur ersten, sehr effektiven Rückhaltung von Spaltprodukten mit Schichten aus pyrolytisch abgeschiedenem Kohlenstoff (bzw. Siliziumcarbid) umhüllt sind (coated particles) /G1/. Der Brennstoff besteht entweder aus Mischkristallpartikeln beider Elemente oder nebeneinander aus Uran-Brennstoffpartikeln einerseits und Thorium-Brutstoffpartikeln andererseits (Abbrand-Brutsystem; feed-breed system).

Mischkristallpartikel sowie Thoriumbrutstoffteilchen werden mit einer porösen und darüber mit einer sehr dichten (isotropen) Pyrokohlenstoffschicht versehen. Die U-235 Abbrandpartikel im feed-breed-System erreichen während des Reaktorbetriebes eine sehr hohe Temperatur und haben deshalb zur erhöhten Spaltproduktrückhaltung zusätzlich noch eine Siliziumcarbidschicht und eine weitere Pyrokohlenstoffschicht.

Die Trennung des Spaltstoff- und Brutstoffmaterials in verschiedene Partikel hat mehrere Gründe /S6/:

- Einfachere und billigere Handhabung des Thoriums in großen Mengen ohne Kritikalitätsbegrenzung;
- Aufbau des Neutronenabsorbers U-236 überwiegend nur in den mit Siliziumcarbid beschichteten U-235 Teilchen, die in der Eingangsstufe der Wiederaufarbeitung getrennt behandelt werden können.

Die relative Erzeugung verschiedener Uranisotope ist in den beiden Brennstoffpartikelarten stark unterschiedlich. In den U-235 Abbrandpartikeln nimmt bei einem vierjährigen Einsatz im Reaktor die U-235 Anreicherung von 93 % auf ca. 28 % ab; das durch Neutroneneinfang entstandene U-236 macht bereits ca. 55 % der Uranisotope aus. Trotz des hohen U-236 Anteils lohnt sich der Einsatz für eine weitere vierjährige Abbrandperiode /D2/, bevor es mit etwa 4 bis 5 % U-235 und ca. 72 % U-236 als hochaktiver fester Abfall ausgeschieden wird.

Das Uran in den Brutstoffpartikeln besteht vorwiegend aus dem erzeugten U-233 (sowie daraus entstandenem U-234). Durch wiederholtes Rezyklieren des erbrüteten U-233 bauen sich auch weitere Uranisotope auf, so daß im Gleichgewichtszyklus eine Zusammensetzung von 54 % U-233, 29 % U-234, 10 % U-235 und 7 % U-236 erreicht würde /S6/.

Wiederaufarbeitung

In der Eingangsstufe (head-end) der Wiederaufarbeitungsanlage stellt sich das Problem, daß pro 1000 MW_e·Jahr ca. 85 t Graphit vom Schwermetall getrennt werden müssen /H3/. Das aussichtsreichste Verfahren zur Abtrennung des Graphits ist die Verbrennung. Nach dem Zerkleinern wird beim Verbrennen der Graphitmatrix auch die freiliegende Pyrokohlenschicht der Partikel abgebrannt, nicht aber die Siliziumcarbid-schicht der Uran-Abbrandkerne. Durch diese unterschiedlichen Eigenschaften der Teilchen mit und ohne Siliziumcarbid-schicht ergibt sich die Möglichkeit entweder einer mechanischen Trennung oder einer selektiven Auflösung der freiliegenden Brutstoffkerne und Abtrennung der noch mit Siliziumcarbid beschichteten Abbrandkerne als unlöslicher Rückstand. Die Trennung in die Prozeßströme Spaltprodukte, Thorium und Uran

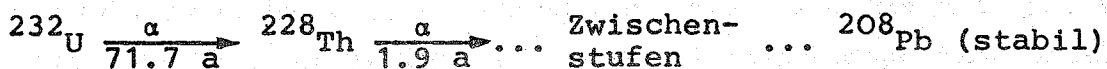
erfolgt durch einen mehrstufigen Extraktionsprozeß mit Tributylphosphat (TBP) als Lösungsmittel (vgl. Kapitel 4.2).

Nach Aufmahlen der Siliziumcarbidhüllen können dann auch die Abbrandkerne gelöst und separat aufgearbeitet werden.

Der sog. Interimprozeß, bei dem nur das Uran vollständig abgetrennt würde, während das Thorium beim radioaktiven Abfall bleibt /K10/, soll hier nur erwähnt werden, da angenommen werden kann, daß sich "dieser Weg langfristig aus wirtschaftlichen und grundsätzlichen Erwägungen heraus" verbietet /M4/. Die Kosten der Behandlung und Lagerung des radioaktiven Abfalls würden erheblich höher liegen. Aus Gründen einer Rohstoffsicherstellung auf längere Sicht sollte außerdem auf die Wiederverwendung des Thoriums nicht verzichtet werden /M4/.

Refabrikation

Die Refabrikation von Uran-233 bringt besondere Schwierigkeiten mit sich, bedingt durch einen Gehalt von 100 bis 1000 ppm Uran-232. Dieser α -Strahler (Halbwertszeit 71.7 a) zerfällt in Thorium-228 (Halbwertszeit 1.9 a). In der Kette der weiteren, stark radioaktiven Zerfallsprodukte



treten Nuklide auf, die sehr energiereiche, durchdringende γ -Quanten aussenden. Zusätzlich werden durch (α, n)-Reaktionen mit leichten Elementen Neutronen emittiert /B7/.

Deshalb muß zum Schutz des Bedienungspersonals die Refabrikation des Urans, aber auch des Thoriums fernbedient unter starker Abschirmung (in Heißen Zellen) erfolgen. Die starke Radioaktivität des Thoriums ist nach 10 Halbwertszeiten des Th-228, also nach ca. 20 Jahren Zwischenlagerung auf ein Tausendstel, und damit ein "tragbares Maß" /M4/ abgefallen.

Umgekehrt steigt dagegen die Radioaktivität des frisch abgetrennten U-233 durch Anwachsen der Th-228-Konzentration im Laufe von 10 Jahren stark an, um dann mit der Halbwertszeit von 71,7 a des Mutternuklids U-232 langsam abzufallen.

Es erscheint deshalb sinnvoll, die Refabrikation des Spaltstoffs U-233 möglichst unmittelbar nach der Wiederaufarbeitung in abgeschirmten Zellen anzuschließen (vgl. auch Fig. 3.1, Kapitel 3). Geeignete Verfahren der fernbedienten Partikelherstellung nach dem Sol-Gel-Prozeß sind im Oak Ridge National Laboratory /P1,H7,H10/ und in der Kernforschungsanlage Jülich /M4/ in der Entwicklung.