



KERNFORSCHUNGSANLAGE JÜLICH GmbH

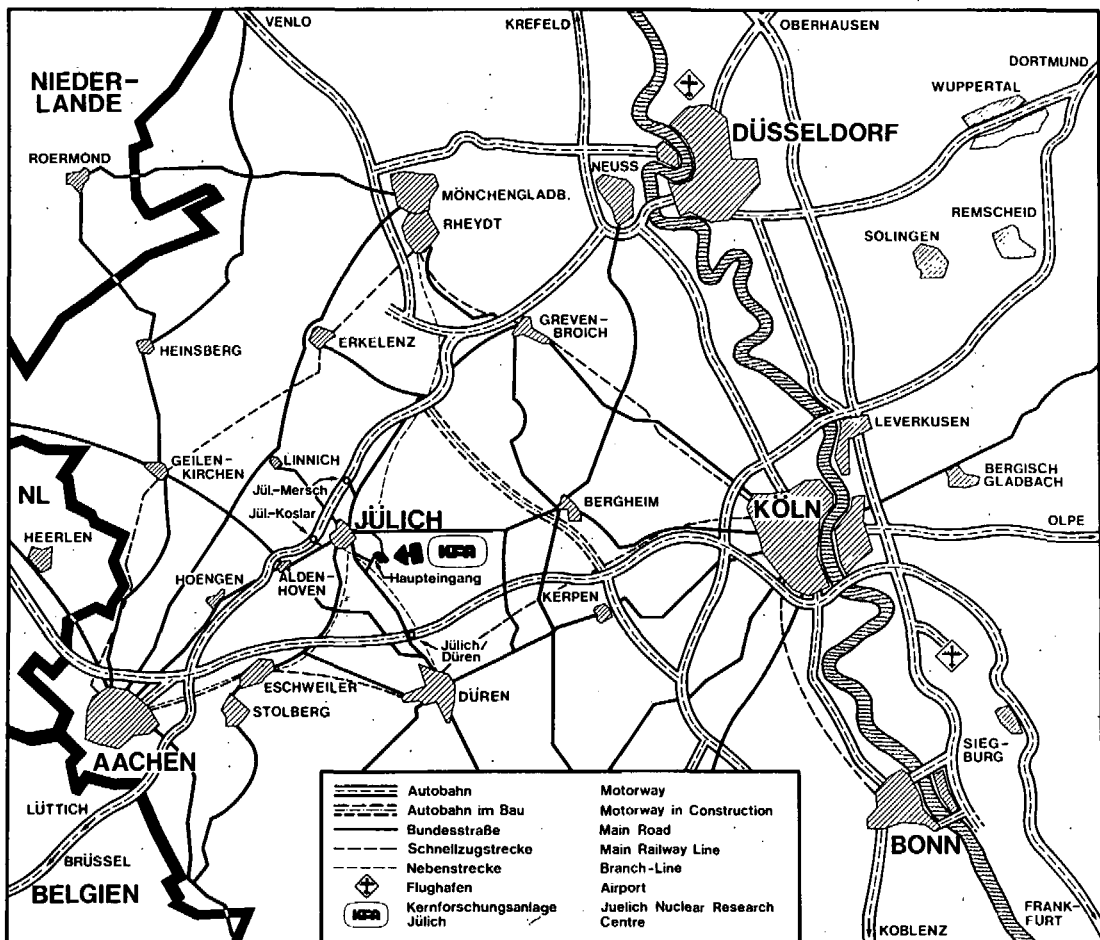
Institut für Chemische Technologie

**Entwicklung eines trocken-mechanischen
Graphitabtrennverfahrens und Beseitigung
des abgetrennten Kohlenstoffes für die
Wiederaufarbeitung kugelförmiger
HTR-Brennelemente**

von

H. Kronschnabel

**Jül - 1762
Januar 1982
ISSN 0366-0885**



Als Manuskript gedruckt

Berichte der Kernforschungsanlage Jülich – Nr. 1762

Institut für Chemische Technologie Jül – 1762

Zu beziehen durch: ZENTRALBIBLIOTHEK der Kernforschungsanlage Jülich GmbH

Postfach 1913 · D-5170 Jülich (Bundesrepublik Deutschland)

Telefon: 024 61 / 610 · Telex: 833 556 kfa d

**Entwicklung eines trocken-mechanischen
Graphitabtrennverfahrens und Beseitigung
des abgetrennten Kohlenstoffes für die
Wiederaufarbeitung kugelförmiger
HTR-Brennelemente**

von

H. Kronschnabel

DEVELOPMENT OF A DRY-MECHANICAL GRAPHITE SEPARATION
PROCESS AND ELIMINATION OF THE SEPARATED CARBON FOR
THE REPROCESSING OF SPHERICAL HTR FUEL ELEMENTS

by

Hartmut Kronschnabel

ABSTRACT

Due to the C-14 distribution the separation of the particle-free outer region of the spherical HTR fuel element with subsequent solidification of the separated carbon makes it possible to reduce by half the remaining C-14 inventory in the inner particle region to be further treated.

Separation of the particle-free outer region by a newly developed sphere-peeling milling machine, conditioning the graphite into compacts and in-situ cementation into a salt-mine are the basic elements of this head-end process variation. An annual cavern volume of approx. 2000 m³ will be needed to ultimately store the graphite of the particle-free outer region, which corresponds to a reprocessing capacity of 50 GW_e installed HTR power.

The brush-disintegration of the remaining inner particle region and the resulting peel-brush-crush-preparation are capable of separating 95 % of the graphite without any heavy metal losses. With the mentioned reprocessing capacity an annual cavern volume of approx. 16.500 m³ is required.

ENTWICKLUNG EINES TROCKEN-MECHANISCHEN GRAPHITABTRENNVER-
FAHRENS UND BESEITIGUNG DES ABGETRENNTEN KOHLENSTOFFES
FÜR DIE WIEDERAUFARBEITUNG KUGELFÖRMIGER HTR-BRENN-
ELEMENTE

von
Hartmut Kronschnabel

KURZFASSUNG

Aufgrund der C-14-Verteilung ermöglicht die Abtrennung der brennstofffreien Zone des kugelförmigen HTR-Brennelementes mit anschließender Verfestigung des abgetrennten Kohlenstoffes eine Reduzierung des in der weiter zu behandelnden Brennstoffzone verbleibenden C-14-Inventars auf die Hälfte.

Schalenabtrennung mittels einer Kugelschälfräse, Konditionierung des Graphits zu kompakten Preßlingen und In-situ Einzementierung in eine Salzkaverne sind die erforderlichen Einzelschritte dieser HEAD-END-Prozeßvariante, bei der für eine Wiederaufarbeitungskapazität von 50 GW_e installierter HTR-Leistung zur Endlagerung des Schalengraphits ein jährliches Kavernenvolumen von ca. 2000 m³ bereitgestellt werden muß.

Die aus der Bürst-Zerkleinerung der verbleibenden Brennstoffzone resultierende Schäl-Bürst-Brech-Aufbereitung ermöglicht eine 95 %ige schwermetallfreie Graphitabtrennung. Bei der erwähnten Wiederaufarbeitungskapazität wird ein jährliches Kavernenvolumen von ca. 16.500 m³ benötigt.

INHALTSVERZEICHNIS

	Seite
1. EINLEITUNG	1
1.1 Das kugelförmige HTR-Brennelement	1
1.2 Die Eingangsstufe, das HEAD-END, bei der Wiederaufarbeitung von HTR-Brennelementen	3
1.2.1 Einige HEAD-END-Verfahren	3
1.2.2 Das Wirbelschicht-Verbrennungs-HEAD-END	5
1.3 Zielsetzung und Abgrenzung der Arbeit	9
2. ABTRENNUNG DER BRENNSTOFFFREIEN BRENNELEMENT-ZONE	11
2.1 Potentielle Verfahren	12
2.1.1 Das Kugel-Läppen	12
2.1.2 Das Kugel-Befeilen	13
2.1.3 Das Kugel-Drehen	14
2.1.4 Das Kugel-Trommeln	15
2.2 Die Kugelschälfräse	18
2.2.1 Wirkungsweise und Arbeitsmechanismus	18
2.2.2 Experimentelle Eprobung des Versuchstyps	20
2.2.2.1 Beschreibung	20
2.2.2.2 Drehrichtungseinfluß und Drehzahlabhängigkeit	22
2.2.2.3 Einfluß der Federvorspannung	24
2.2.2.4 Füllgradabhängigkeit	25
2.2.2.5 Das Schälen beschädigter und deformierter Brennelement-Kugeln	27
2.2.3 Entwurf eines Prototyps	29
3. MÖGLICHKEITEN UND POTENTIAL DER GRAPHITABTRENNUNG DURCH ZUSÄTZLICHE TROCKEN-MECHANISCHE AUFARBEITUNG DER INNEREN BRENNSTOFFZONE MIT KONVENTIONELLEN AUFBEREITUNGSMASCHINEN	32
3.1 Die kontrollierte Zerkleinerung von geschälten HTR-Brennelement-Kugeln	33
3.1.1 Definitionen, Kennwerte und Bewertungsgrundlagen	34
3.1.1.1 Konventionelle Betrachtungsweise	34
3.1.1.2 Die BURN-LEACH-Analyse zur Bestimmung von SiC-Hüllbruchraten	36
3.1.2 Die Schlag- und Prallzerkleinerung in einer Hammermühle	39
3.1.3 Die Druckzerkleinerung in einem Backenbrecher	43

	Seite	
3.1.3.1	Bruchcharakteristik bei der Druckbeanspruchung	43
3.1.3.2	Wirkungsweise und Durchsatzsteigerung	44
3.1.3.3	Experimentelle Untersuchungen und Ergebnisse	45
3.1.3.4	Der Backenbrecher in Kombination mit einer Walzenmühle	47
3.1.4	Die Reibungszerkleinerung in einer Kugelmühle	48
3.1.4.1	Wirkungsweise	48
3.1.4.2	Experimentelle Untersuchungen und Ergebnisse	51
3.1.4.3	Durchsatzsteigerung und Dimensionierung	55
3.2	Die Klassierung und Sortierung von zerkleinerten geschälten HTR-Brennelement-Kugeln	57
3.2.1	Die Klassiermöglichkeit mit einer Taumelsiebmaschine und deren Erprobung	58
3.2.2	Die Sortiermöglichkeit mit einem Zick-Zack-Windsichter	63
3.2.2.1	Die Theorie der Windsichtung	63
3.2.2.2	Der Zick-Zack-Windsichter	67
3.3	Konventionelle Verfahren zur trocken-mechanischen Graphitabtrennung	69
3.3.1	Verfahren I	70
3.3.2	Verfahren II	72
4.	DIE BÜRST-ZERKLEINERUNG VON GESCHÄLTEN HTR-BRENNELEMENT-KUGELN	76
4.1	Grundlage, Wirkungsweise und Arbeitsmechanismus	76
4.2	Experimentelle Erprobung des Versuchstyps einer Kugelaufbürstmaschine	77
4.2.1	Beschreibung	77
4.2.2	Charakteristische Merkmale der Bürst-Zerkleinerung	81
4.2.3	Experimentelle Untersuchungen und Ergebnisse	86
4.2.4	Kritische Bemerkungen zu den durchgeführten Versuchen	92
4.3	Entwurf eines Technikumtyps einer Kugelaufbürstmaschine	92
4.4	Die Schäl-Bürst-Brech-Aufbereitung	96

	Seite
5. KLASSIFIZIERUNG UND KONDITIONIERUNG DES TROCKEN-MECHANISCH ABGETRENNTEN GRAPHITS UND DESSEN ENDLAGERUNG IN GROSSRÄUMIGEN SALZKAVERNEN	102
5.1 Klassifizierung des abgetrennten Graphits	103
5.1.1 Vereinfachtes Modell	104
5.1.1.1 Die Matrixgraphitkontamination	105
5.1.1.2 Die Kontamination in bzw. durch die mit abgetrennten Hüllbruchstücke	106
5.1.1.3 Die Kontamination durch mit abgetrennte Kernbruchstücke	107
5.1.2 Radioaktivität und Wärmeleistung	108
5.1.3 Qualitative Aspekte über das Verhalten bestrahlter Brennelemente	110
5.2 Konditionierung des abzulagernden Graphits	111
5.2.1 Zementieren des unbehandelten Graphits	113
5.2.1.1 Volumina und Massen	114
5.2.1.2 Druckfestigkeit	115
5.2.1.3 Brandverhalten des konditionierten Graphits	117
5.2.2 Zementieren des kompaktierten Graphits	118
5.3 Endlagerung des konditionierten Graphits in Salzkavernen (speziell unter dem Gesichtspunkt der Wärmeabfuhr)	120
5.3.1 Endlagerung der Abfallspezifikation A	125
5.3.2 Endlagerung der Abfallspezifikation B	125
5.3.2.1 Nach Lagerungsmethode I	125
5.3.2.2 Nach Lagerungsmethode II	126
5.3.3 Endlagerung des Graphits der brennstofffreien Zone	127
6. ZUSAMMENFASSUNG	129
7. NOMENKLATUR	134
8. LITERATURVERZEICHNIS	141

1. EINLEITUNG

1.1 Das kugelförmige HTR-Brennelement

Referenzbrennelement (BE) dieser Arbeit ist das kugelförmige HTR-Brennelement. Es besteht aus einer brennstofffreien Zone (BFZ), der äußeren 5 mm dicken Graphitschale und der Brennstoffzone (BZ) mit 5 cm Durchmesser, in der in einer Graphitmatrix beschichtete Kernbrennstoffteilchen (CP: coated particles) eingebettet sind.

Je nach Art der Partikeln unterscheidet man verschiedene Brennelementkonzepte.

Beim hier untersuchten Einpartikelkonzept bestehen die Brennstoffkerne aus einer Mischung von Uran- und Thoriumoxid ((U/Th)O₂). Diese Brennstoffkerne besitzen eine TRISO-Beschichtung, d. h. sie sind mit insgesamt vier - aber drei andersartigen - Schichten umhüllt: einer porösen Kohlenstoffschicht (Puffer), einer inneren Pyrokohlenstoffschicht (ILTI/PyC), einer dichten unbrennbaren Schicht aus Siliciumcarbid (SiC) und einer äußeren Pyrokohlenstoffschicht (OLTI/PyC).

Beim Zweipartikelkonzept liegen zwei unterschiedliche Partikelarten vor. Die Kerne der FEED-Partikeln⁽¹⁾ aus Urancarbid (UC₂) oder Urandioxid (UO₂) sind ebenfalls TRISO-beschichtet. Die Kerne der BREED-Partikeln⁽²⁾ aus Thoriumoxid (ThO₂) sind BISO-beschichtet, d. h. sie weisen eine Pufferschicht und eine PyC-Schicht auf.

Die in Abb. 1 aufgeführten Kennwerte der betrachteten Brennelementkonzepte sind aus den Spezifikationen des Herstellers entnommene bzw. in eigenen Versuchen ermittelte Durchschnittswerte.

Im folgenden wird ein kugelförmiges HTR-Brennelement bei Beladung mit (U/Th)O₂-TRISO-CP als Mischoxid-Brennelement (M.O.-BE) bzw. bei Beladung mit UC₂-TRISO-FEED-CP und ThO₂-BISO-BREED-CP als FEED-BREED-Brennelement (F.B.-BE) bezeichnet.

(1) FEED: von feed $\hat{=}$ Futter; Uran als Spalt- bzw. Brennstoff

(2) BREED: von breed $\hat{=}$ Brut; Thorium als Brutstoff

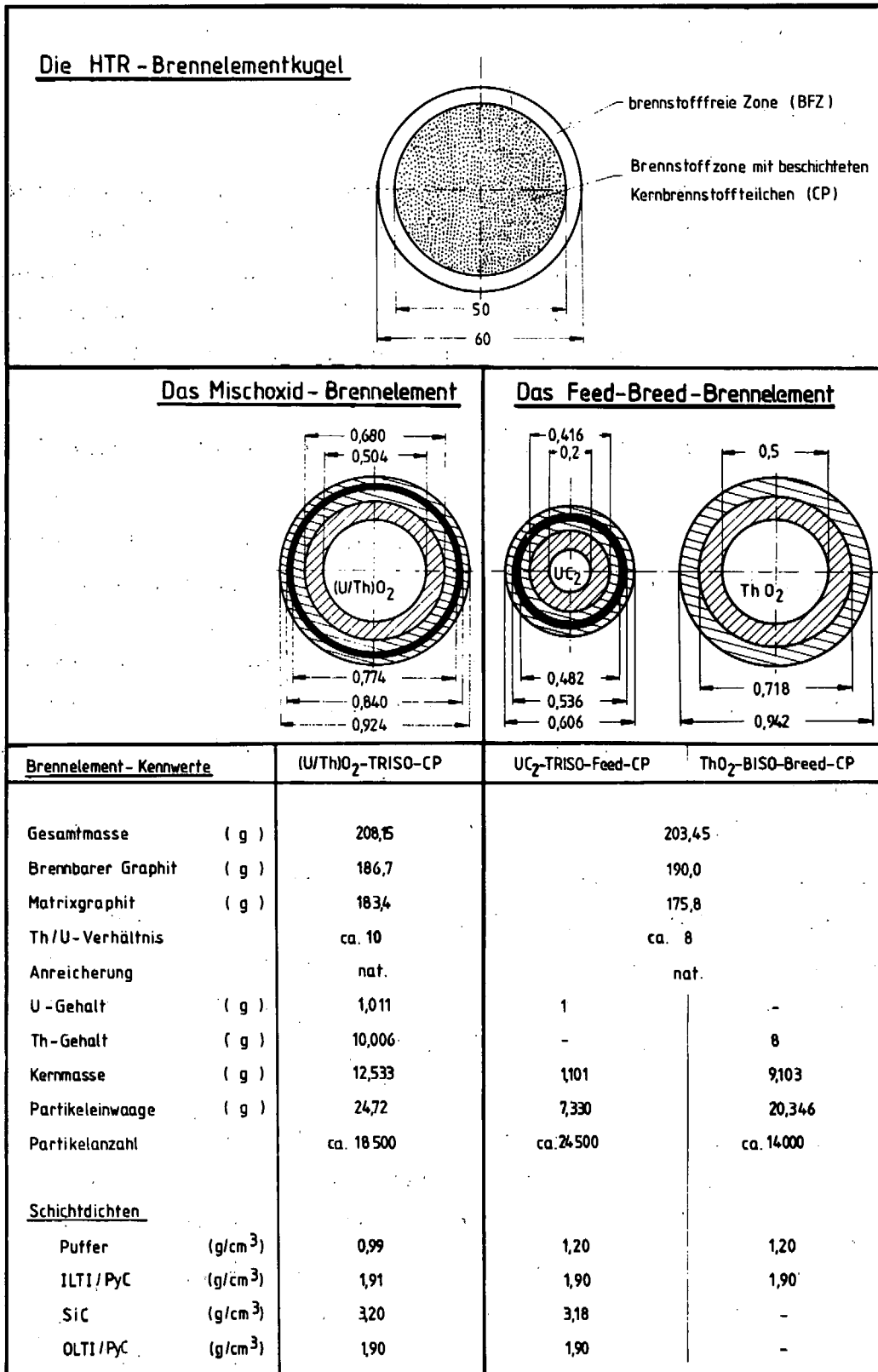


Abb. 1: Die HTR-Brennelementkugel und deren Kennwerte für die betrachteten Brennelementkonzepte

1.2 Die Eingangsstufe, das HEAD-END, bei der Wiederaufarbeitung von HTR-Brennelementen

Unter dem HEAD-END einer Wiederaufarbeitungsanlage (WAA) für HTR-Brennelemente ist die Vorbereitung der reaktorbestrahlten Brennelemente für den eigentlichen chemischen Trenn- bzw. Reinigungsprozeß der Spalt- und Brutstoffe von den Reststoffen, den Spaltprodukten, zu verstehen. Ziel der HEAD-END-Behandlung ist es, das Schwermetall (SM) und die Spaltprodukte in eine salpetersaure Lösung überzuführen. Dabei besteht die Hauptaufgabe darin, den Graphit, der etwa 90 - 95 % der Brennelementmasse ausmacht, zu beseitigen und die in ihm eingebetteten Kernbrennstoffteilchen freizulegen. Desintegration bzw. Zerkleinerung der Brennelemente, Trennung der Metall- und Graphitfraktion, Beseitigung des Graphit-Ballastes und chemische Auflösung des Schwermetalls sind die bestimmenden Prozeßschritte im HTR-Wiederaufarbeitungs-HEAD-END.

1.2.1 Einige HEAD-END-Verfahren

Eine umfangreiche bewertende Übersicht über die zahlreichen entwickelten und erforschten HTR-HEAD-END-Verfahren bieten Literaturstellen [1,2].

Ein Ausgangspunkt der HEAD-END-Entwicklung war die Hoffnung, daß es gelingen könnte, durch mechanisches Brechen und Aufmahlen der Brennelemente eine zufriedenstellende Trennung von Graphit und Schwermetall mittels Sieben, Windsichten, Flotieren etc. herbeizuführen. Zerkleinerungsaggregate wie Hammermühle, Backenbrecher und Walzenmühle liefern aber eine derart heterogene Korngrößenverteilung des Mahlproduktes mit einem mehr oder weniger hohen Kernbruchanteil der Brennstoffteilchen, so daß keine vollständige Trennung von Graphit und Schwermetall zustande kommt. So können nur 60 - 70 % des Mahlgutes als schwermetallfreier Graphit abgesiebt werden [3]. Die Trennung eines Walzenmühlengerücklaufproduktes in diversen Windsichter-Rohren liefert zwar eine deutliche Anreicherung des Schwermetalls im Grobgut, jedoch wurden diese Ergebnisse als technisch unbrauchbar interpretiert [4].

Vielmehr galt der abgetrennte Graphit als zusätzlicher Ballast, schien doch eine problemlose Graphit-Beseitigung durch das Verbrennungs-HEAD-END gegeben.

Als vom Prinzip her einfaches HEAD-END-Verfahren galt lange Zeit der GRIND-LEACH-Prozeß. Nach mechanischem Aufschluß des Brennstoffes wird dieser einem Auflösevorgang in hochkonzentrierter Salpetersäure unterzogen. Jedoch gestaltet sich der Lösevorgang recht zeitaufwendig, die Schwermetallausbeuten von bestrahltem Brennstoff sind relativ schlecht, und es fallen große Mengen verdünnter aktiver Lösungen und säurehaltiger Graphitschlämme an, die in geeigneter Weise konditioniert und abgelagert werden müssen.

Hauptproblem ist aber die Bildung von Polycarbonsäuren, die durch Salpetersäure-Graphit-Reaktionen entstehen. Durch starke Schaumbildung stören sie die Extraktion und erschweren die Filtriervorgänge [5-10].

Beim CHLORINEX-Verfahren [11], einem am weitesten fortgeschrittenen Chlorierungsverfahren, wird die Eigenschaft des Chlors ausgenutzt, mit Uran und Thorium (allerdings auch mit einigen Spaltprodukten) flüchtige Chloride zu bilden, welche sich anschließend durch fraktionierte Destillation trennen lassen. Da Chlor nicht die Hüllschichten der Partikeln durchdringt, müssen die Partikelschalen aufgebrochen werden. Diese Zermahlung kugelförmiger Brennelemente erfolgt quasi kontinuierlich in einer aus Hammermühle (zur Grobzerkleinerung) und Schlagscheibenmühle (zur Feinmahlung) bestehenden Anlage mit Umluftführung. Die Analyse des Mahlgutes zeigt eine Anreicherung der Schwermetallteilchen im Feinstbereich. Für die Chlorierung wird dadurch die Kinetik der gewünschten Reaktion verbessert, für eine trocken-mechanische Graphit-Schwermetall-Trennung ist gerade deshalb diese erprobte Mahltechnik ungeeignet.

Für das gesamte Verfahren erwiesen sich die "heiße" Verfahrenstechnik und die durch Korrosion auftretenden Werkstoffprobleme als äußerst schwierig und problematisch.

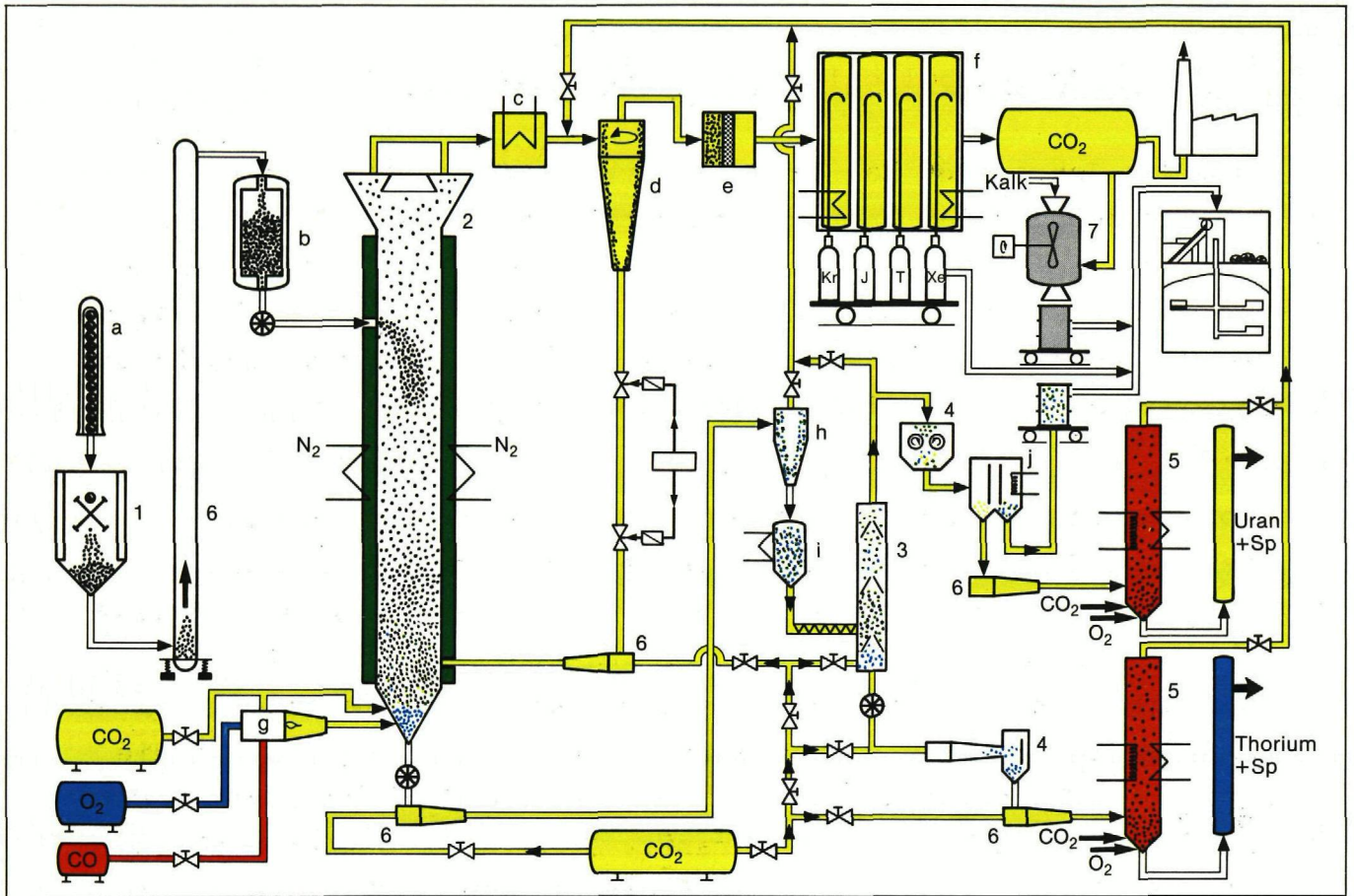
1.2.2 Das Wirbelschicht-Verbrennungs-HEAD-END

Seit dem Jahre 1966 hat sich die Erkenntnis durchgesetzt, daß die Verbrennung des enormen Graphitüberschusses von HTR-Brennelementen in einer Wirbelschicht der wohl beste HEAD-END-Prozeß zur Wiederaufarbeitung (WA) dieses Brennelementtyps darstellt. Die Verbrennung des Graphits als Trenn- und Beseitigungsschritt schien dessen problemlose Beseitigung zu gewährleisten [5,12-15,17].

Abb. 2 zeigt ein Anlagenfließbild eines Wirbelschicht-Verbrennungs-HEAD-ENDs für die Aufarbeitung eines Zweipartikelbrennstoffsystems, in dem sowohl die Uran- als auch die Thoriumpartikeln TRISO-Beschichtungen aufweisen [22]. Nach einer mechanisch kontrollierten Zerkleinerung der Brennelemente in einer Hammermühle (1) wird der Kohlenstoff des Mahlgutes, in dem die Partikeln möglichst unzerstört vorliegen sollen, in einem Hauptwirbelschichtreaktor (2) verbrannt. In bestimmten Intervallen erfolgt ein Abzug der am Boden sedimentierten Partikeln. Die spezifisch schwereren Thoriumpartikeln bilden schon während des normalen Betriebes am Boden des Reaktors eine Schüttung; da aber bei dieser Gasgeschwindigkeit die Uranpartikeln noch schweben, muß für deren Abzug die Anströmgeschwindigkeit im Reaktor gesenkt werden.

Da im Hauptwirbelschichtreaktor die Verbrennung des Kohlenstoffs an der intakten SiC-Schicht zum Erliegen kommt, muß noch der Kohlenstoff unterhalb dieser Schicht nach einem mechanischen Aufbruchvorgang in einem Nachverbrennungswirbelschichtreaktor verbrannt werden. Da zusätzlich Uran- und Thoriumkerne voneinander getrennt werden sollen (Isolierung des Neutronenabsorbers U-236), schließt sich der Hauptverbrennung ein kombinierter SiC-Brech- und Th-U-Kern-Trennschritt an.

Der Thoriumabzug wird in einem Windsichterverfahren (3) von Verunreinigungen getrennt und die SiC-Schicht der Partikeln in einer Partikelstrahlmühle (4) aufgebrochen [23,24]. Der Uranabzug stellt ein Gemisch aus Uran-Partikeln mit intakter SiC-Schicht, reinen Uran- und Thoriumkernen, Kernbruch beider Partikelarten, SiC-Hüllbruch und Restgraphit dar. Die intakten SiC-Schichten werden in einer Walzenmühle (4) gebrochen, ein



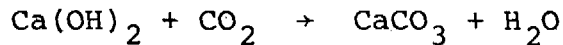
- | | |
|---|--|
| <p>1 Hammermühle</p> <p>2 Hauptwirbelschichtreaktor;
Graphitabtrennung durch Verbrennung</p> <p>3 Windsichter; Trennung von Uran- und Thoriumpartikel</p> <p>4 Aufbrechen der SiC-Schicht;
a) Uranpartikel durch Mahlen
b) Thoriumpartikel durch Aufprall gegen eine Wand</p> <p>5 Nachverbrennungsreaktor; Abtrennung der inneren Kohlenstoffschichten durch Verbrennung</p> <p>6 Fördereinrichtungen; nach 1 Schwingförderer sonst nur pneumatisch</p> <p>7 CO₂-Verfestigung in CaCO₃</p> | <p>a Annahmestation für Brennelemente</p> <p>b Bunker für Mahlgut</p> <p>c Wärmetauscher</p> <p>d Fliehkraftentstauber (Zyklon)</p> <p>e Feststofffilter; Feinstaubrückhaltung</p> <p>f Abtrennung von Spaltprodukten und Edelgasen aus dem Abgas</p> <p>g Startbrenner</p> <p>h Zyklon</p> <p>i Behälter für Schwermetallpartikel</p> <p>j Magnetscheider; trennt SiC-Hüllbruch von Uran- und Thoriumkernen</p> |
|---|--|

Abb. 2: Vereinfachtes Anlagenfließbild des HEAD-ENDS für die Aufarbeitung eines Zweipartikelbrennstoffsystems, in dem sowohl die Uran- als auch die Thoriumpartikel TRISO-beschichtet sind nach [22]

Windsichter oder eine Kombination aus Windsichter und Magnetscheider (j) bewerkstelligt die U-Th-Trennung, so daß schließlich der anhaftende Kohlenstoff jeder Kernbrennstoffart getrennt in einem Wirbelschichtreaktor (5) nachverbrannt werden kann, so daß graphitfreie Uran- und Thoriumfraktionen der chemischen Wiederaufarbeitung zugeführt werden können.

Experimentell gilt die Reinigung des Verbrennungsabgases von Krypton und Xenon sowie von Feinstäuben als erwiesen [12,25,26].

Da der vollständige Umsatz des Kohlenstoffs zu Kohlendioxid und dessen Emission eine stärkere als ursprünglich angenommene radiologische Umweltbelastung durch das freigesetzte radioaktive Nuklid C-14 verursacht, das während des Reaktorbetriebes hauptsächlich aus den stabilen Nukliden N-14 (n,p-Reaktion), O-17 (n, α -Reaktion) und C-13 (n, γ -Reaktion) gebildet wird, muß das gereinigte Abgas (zumindest für Großanlagen mit Wiederaufarbeitungskapazitäten einer installierten HTR-Leistung von über 35 GW_e) mit Calciumhydroxid zu Calciumcarbonat entsprechend der Reaktionsgleichung



umgesetzt und als fester radioaktiver Abfall endgelagert werden.

Anzahl der Brennelementkugeln	$2,65 \cdot 10^7$ BE/a
Graphitdurchsatz	5088 t/a
CO ₂ -Abgasmenge	$9,4 \cdot 10^6$ Nm ³ /a
gesamte C-14-Emission	5300 Ci/a
CaCO ₃ -Lagervolumen	ca. 38000 m ³ /a
CaCO ₃ -Lagermenge	ca. 60000 t/a

Abb. 3: Jährliche C-14-Emissionsbelastung und Mengenbilanz des Wirbelschicht-Verbrennungs-HEAD-ENDS samt CO₂-Fixierungsprozeß für eine Wiederaufarbeitungsanlage mit einer Kapazität von 50 GW_e installierter HTR-Leistung nach [27]

Aufgrund der kostspieligen Endlagerung der beträchtlichen Volumina (Abb. 3) versucht man, Alternativen bzw. Möglichkeiten zu entwickeln, diese Abfallmengen zu reduzieren:

1. Vergasung des Graphits (analog der Verbrennung); das Vergasungsprodukt wird gespalten und der resultierende feste Kohlenstoff entweder kompaktiert und endgelagert oder teilweise rezykliert [14,28,29,31-34].
2. Mechanische Vorabtrennung des Graphits mit direkter Endlagerung nach geeigneter Konditionierung [27-29].

Wie bereits erwähnt, hat die Forderung an das Zerkleinerungsverfahren nach Unversehrtheit der Kernbrennstoffteilchen besondere Bedeutung. Während es bei den Mischoxidpartikeln die durch Partikelbruch (auch schon durch SiC-Schalenbruch) stark erhöhte Abgaskontamination durch Kr-85, H-3, Ru-106, Cs-137, Ce-144 u. a. zu vermeiden gilt, wirkt dieser sich bei Brennstoffkernen aus UO_2 oder UC_2 noch erheblich nachteiliger aus [5]. Bei der Oxidation der infolge einer beschädigten oder überhaupt nicht mehr vorhandenen SiC-Schicht ablaufenden Kristallgitterumwandlung der UO_2 - bzw. UC_2 -Kerne in U_3O_8 brechen die Kerne auseinander, und es entsteht ein sehr feines Pulver, aus dem die Spaltprodukte viel stärker in die Gasphase verdampfen als dies bei intakten Brennstoffkernen der Fall ist; siehe Abb. 4.



Abb. 4: Infolge von Oxidation zu U_3O_8 zerfallene UO_2 -Brennstoffkerne (Aufnahme von K. HARTMANN, ICT der KFA Jülich)

Wie schnell die vollständige Oxidation von UO_2 - bzw. UC_2 -Brennstoffkernen und deren Kernbruch in Luft bei 840°C zu U_3O_8 (Sauerstoffkoeffizient 2,67) vor sich geht, zeigen die Kurven einer thermogravimetrischen Versuchsreihe in Abb. 5.

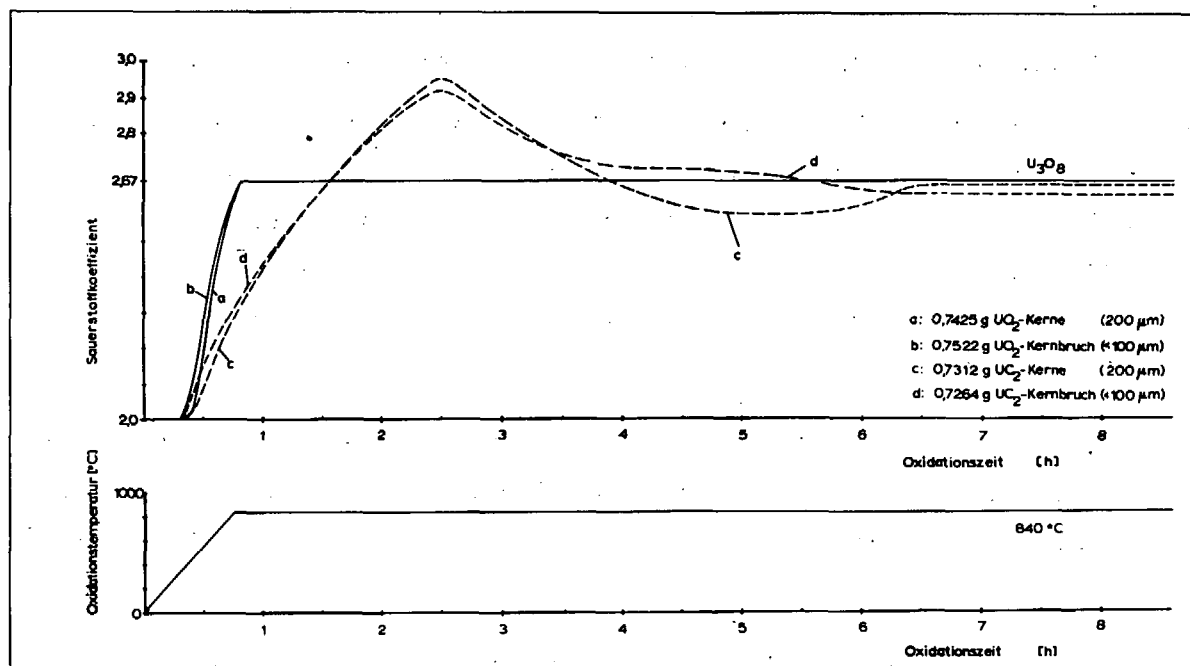


Abb. 5: Oxidation von UO_2 - und UC_2 -Kernmaterial in Luft bei 840°C zu U_3O_8 (Sauerstoffkoeffizient 2,67)

1.3 Zielsetzung und Abgrenzung der Arbeit

Aus den gemachten Ausführungen über den gegenwärtigen technischen Stand der HEAD-END-Verfahren sind zusammenfassend folgende Nachteile hervorzuheben:

- Der gewichtige Vorteil des Wirbelschicht-Verbrennungs-HEAD-ENDs, die problemlose Beseitigung der unhandlichen Graphitmengen, ist durch das C-14-Problem in Frage gestellt. Eine CO_2 -Verfestigung ist wegen der großen abzulagernden Volumina sehr kostspielig.
- Die Eignung konventioneller Zerkleinerungsmaschinen für die Brennelement-Mahlung beim Wirbelschicht-Verbrennungs-HEAD-END wurde bisher nicht systematisch genug

untersucht. Die in verschiedenen Laboratorien experimentell ermittelten Bruchraten sind äußerst schwierig zu vergleichen, da dieser Vergleich durch die Komplexität der zu den Versuchen eingesetzten unterschiedlichen Partikelsorten und Partikelbeschichtungen und den daraus resultierenden unterschiedlichen Bruchratendefinitionen erschwert wird.

- Beim prinzipiell einfachen GRIND-LEACH-Prozeß erschweren die anfallenden salpetersauren Graphit-schlämme die technische Wirtschaftlichkeit dieses Prozesses; vor allem aber treten im chemischen Prozeßteil durch Salpetersäure-Graphit-Reaktionen starke Störungen auf.

In dieser Arbeit sollen Möglichkeiten der Graphitabtrennung und der sicheren Beseitigung des abgetrennten Materials untersucht werden. Schwerpunktmäßig werden dazu folgende relevanten Aspekte abgehandelt:

- Die Abtrennung der brennstofffreien Brennelementzone (Kapitel 2).
- Ein systematischer Vergleich konventioneller Zerkleinerungsmaschinen bezüglich ihrer Eignung für die Brennelementmahlung beim Wirbelschicht-Verbrennungs-HEAD-END (Kapitel 3).
- Möglichkeiten und Potential der Graphitabtrennung mit konventionellen Aufbereitungsmaschinen (Kapitel 3).
- Entwicklung einer neuartigen Zerkleinerungsmethode und deren Potential (Kapitel 4).
- Beseitigung des abgetrennten Graphits (Kapitel 5).

Die praktische Tätigkeit wird dabei auf labormäßig durchgeführte Versuche mit unbestrahltem Material begrenzt, so daß möglichst viele quantitative und qualitative Abhängigkeiten erfaßt werden.

2. ABTRENNUNG DER BRENNSTOFFFREIEN BRENNELEMENTZONE

Das in dieser Arbeit angestrebte Ziel, ein Verfahren mit möglichst hoher Graphitabtrennrate bei minimalem Schwermetallverlust zu ermitteln, fordert eine ausführliche Betrachtung und Beurteilung der realisierbaren Techniken zum Abtrag der äußeren brennstofffreien Graphitschale, denn hier bietet sich die Möglichkeit, das Brennelementvolumen in einem ersten Verfahrensschritt um etwa 40 % zu verringern. Bei einer A-3-Matrixdichte von $1,73 \text{ g/cm}^3$ entspricht diese Volumenreduzierung einer Graphitabtrennung von ca. 42 %, wobei ein Schwermetallverlust völlig vermieden werden könnte (im folgenden sind, falls nicht anders hervorgehoben, alle Prozentangaben Massenprozentangaben).

Eine rein theoretische Behandlung dieses ersten Abtrennschrittes scheitert an der Vielfalt der nicht zu beantwortenden Problemkreise. So kann z. B. die Graphitabtragsrate und das Bruchverhalten der Brennelementkugel nicht abgeschätzt werden.

Nach einer Bewertung von möglichen und bereits bestehenden Vorrichtungen zum Entfernen der Graphitschale liegt der Schwerpunkt dieses Kapitels in der Beschreibung einer konstruierten Kugelschälfräse (KSF), deren Tauglichkeit anhand von zahlreichen Versuchen mit unbestrahlten Brennelementen bewiesen wurde.

Für eine kritische Betrachtung und Bewertung eines Verfahrens zur Abtrennung der brennstofffreien Brennelementzone sind folgende Ausgangspunkte von Bedeutung:

- Für Verfahren, die im heißen Zellenbereich arbeiten, gilt es, vollständig automatische Arbeitsabläufe mit möglichst geringem Wartungsaufwand zu erzielen. Je einfacher und robuster in ihrer Betriebsweise, desto störungsfreier wird eine Maschine arbeiten und zu langen Standzeiten gelangen.
- Eine Wiederaufarbeitungsanlage mit einer Kapazität äquivalent 5000 MW_e installierter HTR-Leistung muß bei einer Auslastung von 300 d/a eine Verarbeitungskapazität von ca. 370 Brennelement-Kugeln pro Stunde besitzen (nach Abb. 3).

- Es muß davon ausgegangen werden, daß zumindest ein Teil der Brennelemente keineswegs über eine geometrisch genaue Kugelgestalt mit makelloser Oberfläche verfügt. Während der Standzeit im Reaktor treten bei den Kugeln Dimensionsänderungen durch Neutronenbestrahlung und Gewichtsverluste durch Korrosion und Oberflächenschäden auf.

Auf den Kugeldurchmesser bezogen können Schrumpfungen mehr als 0,7 mm betragen [30]. Häufigste Schäden an der Oberfläche sind Abplatzungen in der Graphitschale und Kerben, jedoch beträgt im Mittel der gesamte Gewichtsverlust weniger als 1 Gramm [35].

2.1 Potentielle Verfahren

Vorwiegend in der optischen Industrie und in der Wälzlagerindustrie werden verschiedene Kugelherstellungs- und Kugelbearbeitungsverfahren angewandt, die sich prinzipiell zum Abtrag der Graphitschale eignen könnten.

2.1.1 Das Kugel-Läppen

Hierbei erfolgt der Materialabtrag mit losem, in einer Paste oder Flüssigkeit verteilten Korn, dem Lappgemisch, auf Zweischeibenlappmaschinen. Die Kugeln rollen zwischen den Lappscheiben in Rillenbahnen. Durch geeignete Wahl der Einflußgrößen (Anpreßdruck, Lappgeschwindigkeit, Beschaffenheit der Lappwerkzeuge etc.) könnte es gelingen, durch einen Zwangsumlauf der Brennelement-Kugeln, einen konzentrischen Abtrag zu erzielen. Der Einsatz des Kugel-Läppens hat sich bei harten Materialien zur Erzielung formgenauer Oberflächen und somit als Feinbearbeitungsverfahren mit geringem Materialabtrag durchgesetzt. Für die Wiederaufarbeitung von radioaktiven Substanzen erscheint dieses Prinzip vor allem durch die Verwendung des Lappgemisches ungeeignet, weil es zu Problemen der Konditionierung und Lagerung des aktivierten Gemisches führen und das abzula-

gernde Volumen vergrößern würde.

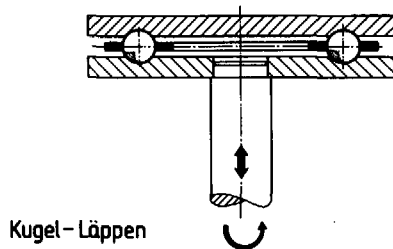


Abb. 6: Prinzipskizze einer Kugel-Läppmaschine

2.1.2 Das Kugel-Befeilen

Als erfolgreich könnte sich die Bearbeitung der HTR-Brennelemente mit einer Kugelbefeilmachine erweisen. Diese wird für die Fertigung von Wälzlagerkugeln eingesetzt. Sie besteht aus zwei gehärteten Stahlscheiben, von denen die eine umläuft und die andere feststeht. Diese feststehende Rillenscheibe hat eine spiralförmige Rille mit einer innen gelegenen Kugelzuführöffnung, durch die beim Betrieb gleichmäßig neue Kugeln einer Bearbeitungscharge eintreten. In der Rille sind Kerben eingebracht. Die in der Rille be-

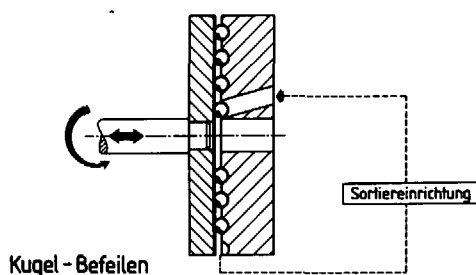


Abb. 7: Prinzipskizze einer Kugel-Befeilmachine

findlichen Kugeln rollen bei Drehung der angedrückten ebenen Scheibe, auf der konzentrisch Schneidkanten angeordnet sind und deren Drehachse parallel zur Achse der Rillenscheibe verläuft, entlang der Rille, wobei die Kerben Späne abheben. Nach Durchlauf der Kugeln fallen diese in eine Auffangvorrichtung und werden

wieder durch die Kugelführöffnung in den Arbeitsraum befördert. Der relativ komplizierte Bewegungsablauf und die zu jeder Einheit gehörende, teilweise aufwendige Förder- und Sortiervorrichtung bedingen einen hohen mechanischen Aufwand.

Kugelbefeilmaschine und Kugel-Läppmaschine könnten nach eingehender Erforschung der jeweiligen Verhaltensweisen bei Bearbeitung von HTR-Brennelement-Kugeln und entsprechender Einflußgrößenoptimierung den Anforderungen nach einem konzentrischen Schalenabtrag gerecht werden. Jedoch liegen kaum Betriebserfahrungen oder Untersuchungen dieser Maschinentypen für die Bearbeitung von Graphitkugeln vor.

2.1.3 Das Kugel-Drehen

Als weitere Möglichkeit bietet sich das Abdrehen der Schale auf einer Produktionsdrehbank mit einer Kugel-Dreheinrichtung an. Das Prinzip des Kugeldrehens besteht darin, daß sich der Werkzeugstahl mit dem Support auf einem Kreis bewegt, dessen Mittelpunkt mit dem der Kugel zusammenfällt. Die zu reduzierende Brennelementkugel wird in hohlen Einsätzen eingespannt. Einer ist in der Hauptspindel befestigt, der andere im Reitstock.

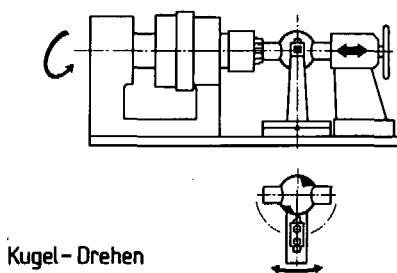


Abb. 8: Prinzipskizze einer Kugel-Drehbank

Das Abdrehen vollzieht sich bei zwei Einspannungen. Bei der ersten wird eine Kappe auf einem Bogen von etwa 100° abgedreht, danach wird die Kugel um 90° gedreht, jetzt auf der bearbeiteten Fläche eingespannt und der übrige Teil abgearbeitet.

Auf diese Weise wurden in den Heißen Zellen der KFA Brennelemente mit dem Ziel einer hohen geometrischen Abtragungsgenauigkeit bearbeitet. Der abgetragene Graphit wurde zwecks Nachweis eventueller Spalt- und Aktivierungsprodukte abgesaugt und durch einen Zyklon aufgefangen. Kugelbearbeitungszeiten von 20 Sekunden könnten erfahrungsgemäß erzielt werden.

Als schwierig erweist sich das Einspannen deformierter Kugeln, deren Mittelpunkt dann nicht mehr unbedingt mit dem des kreisenden Arbeitsstahles zusammenfällt [36].

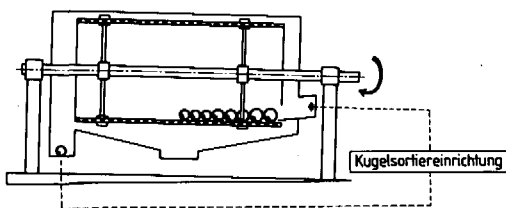
Eine andere Einspannungsmethode wird von der Firma NUKEM, Hanau, im Bereich der Brennelement-Kugelfertigung praktiziert. Die Kugel wird dabei pneumatisch an der Hauptspindel befestigt.

Nicht unbedingt erfolgreich dürfte diese Einspannungsart bei Brennelement-Kugeln mit Oberflächenschäden sein.

Unabhängig von dem Problem der Einspannung ist beim Kugeldrehen auf einer Drehmaschine immer ein Umspannen der zur Hälfte abgedrehten Kugel nötig. Berücksichtigt man die erforderliche Bearbeitungskapazität beim Heiß-Zellen-Betrieb, so wird dem Kugelabdrehen keine allzu große Chance eingeräumt [29].

2.1.4 Das Kugel-Trommeln

Die einfachste Möglichkeit zur Beseitigung der brennstofffreien Graphitschale schien das "Trommeln" der Brennelemente in einem um die horizontale Achse rotierenden Zylinder zu sein, dessen Mantelinnenfläche zur Erzielung eines Materialabtrages aufgeraut ist.



Kugel-Trommel

Mantellänge:	0,60 m
Mantelinnendurchmesser:	0,25 m
Neigungswinkel:	1,5 °
Lochdurchmesser:	8 mm
Lochdichte:	3000 m ⁻²

Abb. 9: Prinzipskizze einer Kugel-Trommel und deren geometrische Abmessungen

Um eine Bewertung dieses Verfahrens vornehmen zu können, wurde eine Trommelsiebmaschine dergestalt umgebaut, daß ein mit 8 mm-Bohrungen versehener Stahlmantel den ursprünglichen Siebmantel ersetzt. Die manuell nach innen geschlagenen scharfen Bohrlochränder erhöhen die Abtragsrate und bieten dem Schälgut die Möglichkeit, aus dem Arbeitsraum zu gelangen. Da die Kopffenden des Arbeitsraumes offen sind, verlängert eine Neigung der Rotationsachse von $1,5^\circ$ die durchschnittliche Aufenthaltsdauer der Kugeln gegenüber der horizontalen Anordnung. Am Kugeleintritt verhindert ein Leitblech, daß die Brennelemente unbearbeitet in den Schälgutaustragstrichter fallen.

Abb. 10 zeigt die geometrisch exakte Kugelgestalt eines derart geschälten Mischoxid-Brennelementes. Deutlich sind die halbkreisförmigen Bearbeitungsspuren des durch die Bohrlochgrate hervorgerufenen Materialabtrags erkennbar. Das Schälgut fällt mit einem mittleren arithmetischen Korndurchmesser von ca. $200\ \mu\text{m}$ relativ fein an, weist aber bevorzugt eine längliche Körnung auf.

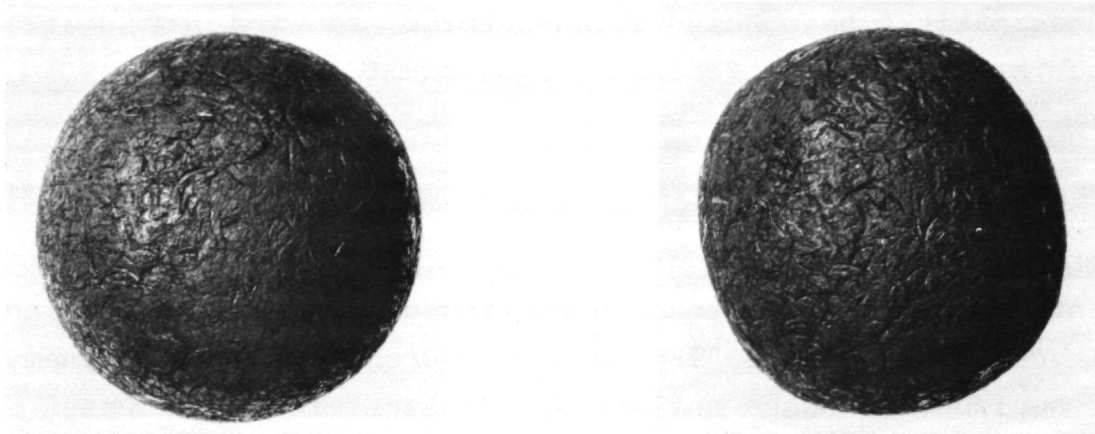


Abb. 10: Geschälte BE-Kugel

Abb. 11: Ungleichförmig geschälte BE-Kugel

Eine Auswertung der drei durchgeführten Versuchsreihen (Beladung der Trommel mit jeweils 10 Mischoxid-Brennelementen bei veränderter Trommeldrehzahl) läßt entscheidende Nachteile des "Kugeltrommelns" erkennen:

- Bei einer Versuchsdrehzahl von $40\ \text{min}^{-1}$ tritt bei einigen Brennelementen ein ungleichförmiger Materialabtrag auf, siehe Abb. 11. Diese Anomalie stellt

prinzipiell keinen Nachteil dar, sondern ist in der geringen Längsbewegung der Brennelemente bei dieser geringen Drehzahl begründet, weshalb einige Brennelemente am Leitblech des Kugeleintritts schleifen und ungleichmäßig beansprucht werden.

- Die Schälrate ist ungleichmäßig; das heißt, daß sich schon nach kurzer Zeit eine relativ starke Schwankung des Schälgrades bemerkbar macht. Nach 60 Minuten sind zwischen den zu einer Bearbeitungscharge gehörenden Brennelementen Massendifferenzen von mehr als 5 Gramm normal, so daß im automatischen Heiß-Zellen-Betrieb eine aufwendige Sortier- und kontinuierliche Umwälzvorrichtung betrieben werden müßte. Dabei kann nicht absolut ausgeschlossen werden, daß einige Brennelemente Durchmesser von weniger als 50 mm erreichen und dadurch die Brennstoffzone angegriffen wird.
- Abb. 12 zeigt die Massen der einzelnen Brennelemente in Abhängigkeit von der Schälzeit. Erkennbar ist die geringe Abtragsrate, so daß eine Trommel unrealistisch große Ausmaße annehmen würde. Bei einer Trommeldrehzahl von 80 min^{-1} beträgt die benötigte Bearbeitungszeit ca. 370 Minuten. Dieses entspricht einer Gesamt-abtragsrate von $2,2 \text{ gC/min}$.

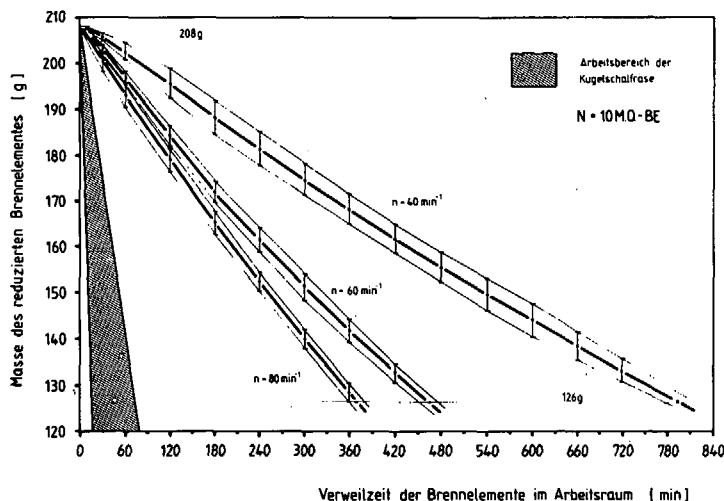


Abb. 12: Massen der Brennelemente in Abhängigkeit von der Schälzeit

Schränkt man die freie Beweglichkeit der Brennelemente, wie sie bei diesen Versuchen herrschte, ein und besetzt (gedanklich) die Hälfte der Innenoberfläche einer derartigen Trommel mit Brennelementen, so muß bei gleichbleibendem Durchmesser aufgrund der ermittelten Abtragsraten bei einer Schälkapazität von 500 Brennelementen pro Stunde die Trommel mindestens 20 Meter lang sein.

Eine höhere Arbeitsraumbeladung anzunehmen ist ungerechtfertigt, da die dann auftretende Kugelbewegung der Mahlkörperbewegung in einer Kugelmühle entspräche, bei der bestimmte Zonen bevorzugt bewegt und bearbeitet würden (siehe Abb. 35 u. 36).

Trotz der scheinbaren Einfachheit ist das Schälen von Brennelement-Kugeln in einer rotierenden Trommel aus dargelegten Gründen nicht durchführbar. Das schraffierte Dreieck in Abb. 12 kennzeichnet den Arbeitsbereich einer neuartigen Kugelschälfräse, deren günstige Eigenschaften sie für einen Heiß-Zellen-Betrieb favorisieren.

2.2 Die Kugelschälfräse

2.2.1 Wirkungsweise und Arbeitsmechanismus

Als Merkmal der entwickelten Maschine kann die rotatorische Hauptbewegung der Arbeitsscheibe angesehen werden. Diese Frässscheibe schält im Zusammenwirken mit der Reaktionsplatte die Brennelement-Kugeln ab, weshalb die Vorrichtung Kugelschälfräse (KSF) benannt wurde [37].

Beim Versuchstyp der Kugelschälfräse existiert nur ein Arbeitsraum, der durch zwei Scheiben begrenzt ist. Durch die Arbeitsscheibe und deren spezielle Gestaltung sowie durch die federnde Reaktionsplatte führen die sich im Arbeitsraum befindlichen Brennelemente zwischen den beiden Scheiben eine kombinierte Abroll- und Fallbewegung aus, bei der sie in einem Arbeitsvorgang abgeschält werden.

Dieser Bewegungsablauf wird durch die besondere Gestaltung der Arbeitsscheibe ermöglicht. Sie ist so gestaltet, daß nach dem Abtragsvorgang, bei dem eingeklemmte Kugeln zwischen Arbeits-

und Reaktionsscheibe abrollen, die Kugeln plötzlich freigegeben werden und die Möglichkeit erhalten, für den folgenden Abtragsvorgang in eine neue Ausgangsposition zu gelangen. Dadurch werden andere Stellen der Kugeloberfläche bearbeitet, und die Kugeln behalten ihre Gestalt bei. Abb. 14 zeigt eine derart geschälte Brennelement-Kugel.

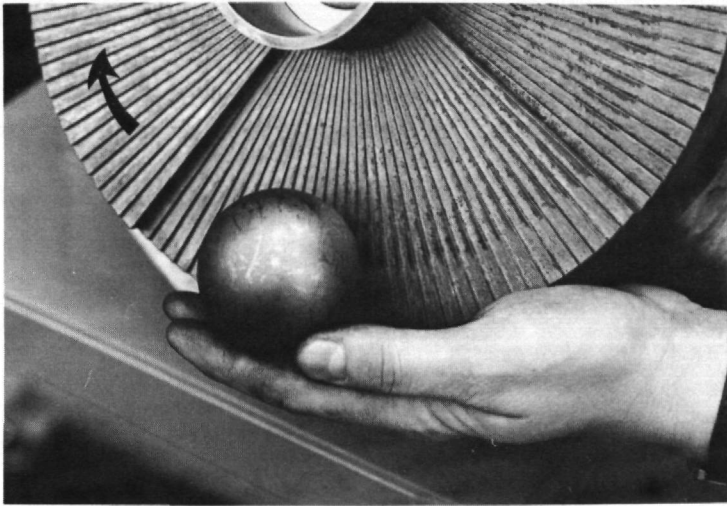


Abb. 13: Teilansicht der Arbeitsscheibe



Abb. 14: Geschälte BE-Kugel

Die Arbeitsscheibe ist, um den beschriebenen Mechanismus zu erzielen, nicht eben ausgeführt, sondern in vier Kreisausschnitte eingeteilt. In solch einem Ausschnitt ändert sich kontinuierlich die axiale Tiefe der Scheibe über den gesamten Radius, so daß bei einer Arbeitsscheibenumdrehung eine viermalige langsame Verengung mit einer plötzlichen Erweiterung des Arbeitsraumes vonstatten geht. Die Arbeitsscheibe muß sich deshalb in der in

Abb. 13 eingezeichneten Richtung drehen. Radial eingefräste Kerben erhöhen den Materialabtrag.

Das Gegenstück zu der sich drehenden Arbeitsscheibe ist die ebenfalls mit radialen Kerben versehene Reaktionsplatte. Sie ist axial federnd gelagert und reagiert bei entsprechendem Abstand beider Scheiben über die dazwischen befindlichen eingeklemmten Kugeln auf die kontinuierliche Arbeitsraumänderung, wobei die federnde Lagerung ein Ausweichen in axialer Richtung ermöglicht und dadurch einen notwendigen Arbeitsdruck aufbringt.

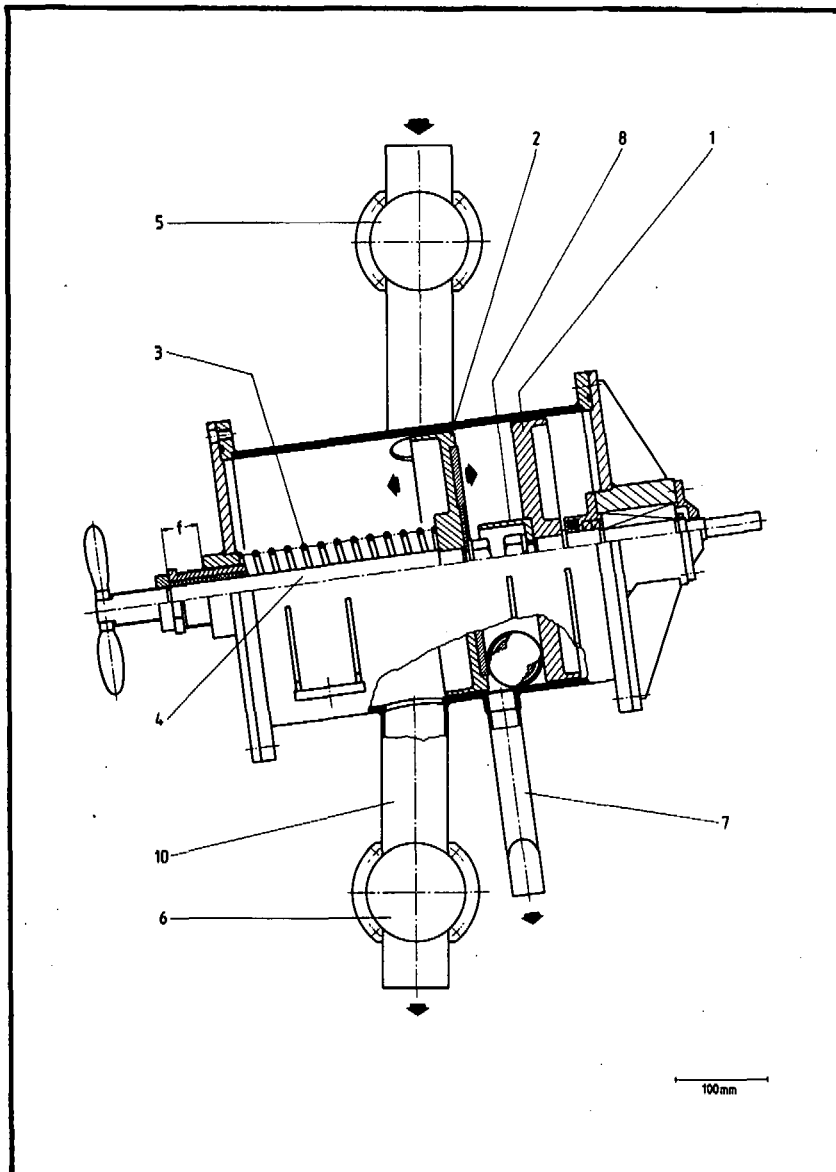
2.2.2 Experimentelle Erprobung des Versuchstyps

2.2.2.1 Beschreibung

Abb. 15 zeigt eine Prinzipskizze des Versuchstyps. In dem zylindrischen Stahlgehäusemantel sind drei Öffnungen vorhanden. Er besitzt außen aufgeschweißte Platten, die es ermöglichen, die gesamte Konstruktion mit etwas Neigung ($5-10^{\circ}$) auf ein Gestell zu setzen. Oben ist der Kugelführstutzen mit der Kugelschleuse (5) aufgeschweißt, unten - etwas in Richtung des Gefälles versetzt - entsprechend die Kugelabzugseinheit (6,10) angebracht. Diese Versetzung ist nötig, um zu verhindern, daß zugeführte Brennelemente direkt in das Abzugsrohr fallen und unbearbeitet abgezogen werden. Im unteren offenen Boden des Arbeitsraumes ist Siebmaschendraht eingesetzt, durch den das Schälgut fällt und in einem Behälter unter dem Austragsrohr (7) aufgefangen werden kann.

Das zylindrische Gehäuse ist mit zwei aufgeflanschten Stahldeckeln versehen, von denen der eine (in Abb. 15 der rechte) die Lagerungs- und Dichtungselemente der sich drehenden Arbeitsscheibe (1) aufnimmt. Am Ende der Antriebswelle begrenzt eine Messingbuchse (8) den Arbeitsraum.

Der andere Stahldeckel übernimmt Lagerungs-, Dichtungs- und Führungseinheiten der Reaktionsplattenführungswelle (4), an dessen innerem Ende die Reaktionsplatte (2) mittels einer Schraubverbindung aufgespannt ist.



- 1: Arbeitsscheibe
- 2: Reaktionsplatte
- 3: Druckfeder
- 4: Führungswelle
- 5: Kugelschleuse (BE-Zufuhr)
- 6: Kugelschleuse (BE-Abzug)
- 7: Schälgutaustrag
- 8: Begrenzungsbuchse
- 9: -
- 10: BE-Abzugsrohr

Abb. 15: Prinzipskizze des Versuchstyps einer Kugelschälfräse

Zwischen Reaktionsplatte und linkem Stahldeckel versucht die auf der Führungswelle eingespannte Druckfeder (3), den Raum zwischen Arbeitsscheibe und Reaktionsplatte so klein wie möglich zu halten und drückt bei entsprechender Auslegung auf die sich in diesem Raum befindlichen Kugeln. Die Federvorspannung kann durch eine

Gewindebuchse über den Abstand f geändert werden.

Beim Beladungsvorgang zieht man am linken Handgriff die Reaktionsplatte gegen die Federkraft in eine Stellung, bei der von oben Kugeln in das Gehäuse fallen können. Die Feder sorgt bei vollzogener Beladung für das Rückstellen der Reaktionsplatte. Beim folgenden Arbeitsvorgang werden die Brennelement-Kugeln so weit geschält, bis die Anschlagbuchse den Arbeitsdruck der Reaktionsplatte auf die Kugeln übernimmt und dadurch den Verkleinerungsvorgang beendet. Danach versetzt man die Reaktionsplatte in eine Lage, die es den geschälten Kugeln ermöglicht, aufgrund der Neigung des Gehäuses durch das Kugelabzugsrohr auszutreten.

2.2.2.2 Drehrichtungseinfluß und Drehzahlabhängigkeit

Die Bearbeitungs kinematik der Brennelemente schreibt die Drehrichtung der Arbeitsscheibe vor, siehe Abb. 13. Ein Verstoß gegen diese Drehrichtung bewirkt ein stoßartiges Herausschlagen von undefinierten Graphitbrocken aus der Bearbeitungsoberfläche (Abb. 16) durch die hervorragenden Materialkanten der Arbeitsscheibe, was bei Bearbeitung bestrahlter Brennelemente Kugelbruch fördern könnte. Wegen der drehbaren Lagerung verursacht die schlagartige Belastung beim Versuchstyp lediglich eine kurze Drehbewegung der Reaktionsplatte. Für die bei einem Prototyp abgeänderte Reaktionsplattenlagerung stellt diese entgegengesetzte Drehung jedoch eine dringend zu vermeidende Führungsstangenbeanspruchung dar, siehe Kapitel 2.2.3.

Die Drehzahl der Arbeitsscheibe beeinflusst die Abtragsraten stark. Wegen der Trägheit der Druckfeder klemmt diese mit zunehmender Drehzahl die Brennelemente seltener ein, so daß das Verhältnis von der Zeitdauer des abtragenden Abrollvorgangs zu der Zeitdauer der freien Bewegung zu ungunsten der ersten verschoben wird. Die Abrollbewegung geht in eine unbestimmte Flugbewegung über, bei der die Brennelemente ihre Bewegungsenergie von der Arbeitsscheibe erhalten und gegen die Reaktionsplatte geschleudert werden.

Pro Arbeitsscheibenumdrehung nimmt die Abtragsrate mit steigender Drehzahl ab, weswegen die Gesamtabtragsrate und die Abtragsrate

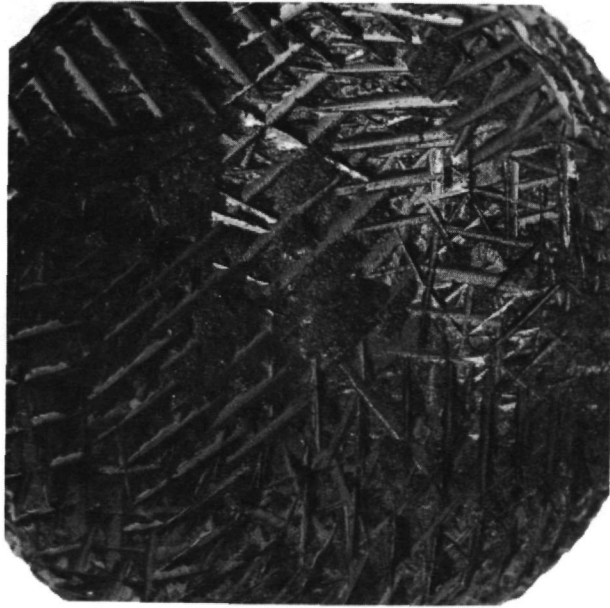


Abb. 16: Geschälte Brennelement-Kugel bei Verstoß gegen die vorgeschriebene Drehrichtung (2 x)

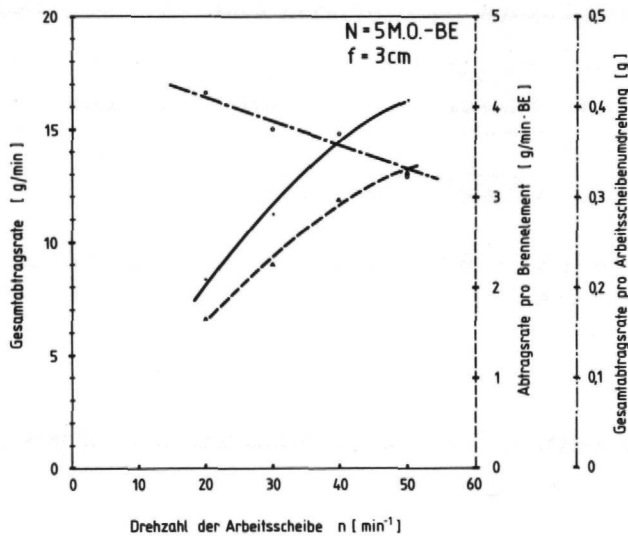


Abb. 17: Abhängigkeit verschiedener Abtragsraten von der Drehzahl der Arbeitsscheibe

pro Brennelement keine streng lineare Steigung mit der Drehzahl aufweisen: Eine Verdopplung der Drehzahl verkürzt bei sonst gleichen Parametern (Füllgrad, Federvorspannung) die Schälzeit nicht auf die Hälfte.

Wegen des "Beschusses" der Reaktionsplatte durch die Brennelemente sowohl zu Schälbeginn als auch mit fortschreitender Schäldauer und der Unfähigkeit der Druckfeder, die Reaktionsplatte entsprechend schnell zurückzustellen, wird die Wirkung der Arbeitsraumbegrenzungsbuchse bei Drehzahlen $> 40 \text{ min}^{-1}$ aufgehoben. Arbeitsmechanismus, Effektivität und Wirksamkeit der Begrenzungsbuchse erfordern aus dargelegten Gründen für den Betrieb der Kugelschälfräse die Einhaltung einer vorgeschriebenen Drehrichtung in einem langsamen Drehzahlbereich $\leq 40 \text{ min}^{-1}$.

2.2.2.3 Einfluß der Federvorspannung

Die eingespannte Druckfeder verringert während eines Bearbeitungsvorganges ihre Arbeitskraft entsprechend der Federkonstanten von $2,86 \text{ N/mm}$ um ca. $28,6 \text{ N}$. Daraus resultiert jedoch keine Verringerung der Abtragsrate über der Verweilzeit, vielmehr stellen sich die entsprechenden Kurven im linken Bild von Abb. 18 als Geraden dar. Die Tatsache des gleichmäßigen Materialabtrags bei ansonst gleichen Parametern eröffnet zusätzlich zu der Arbeitsraumbegrenzungsbuchse die weitere Möglichkeit, den Arbeitsvorgang bei einem gewünschten Schälggrad, d. h. nach einer bestimmten Schäldauer zu beenden.

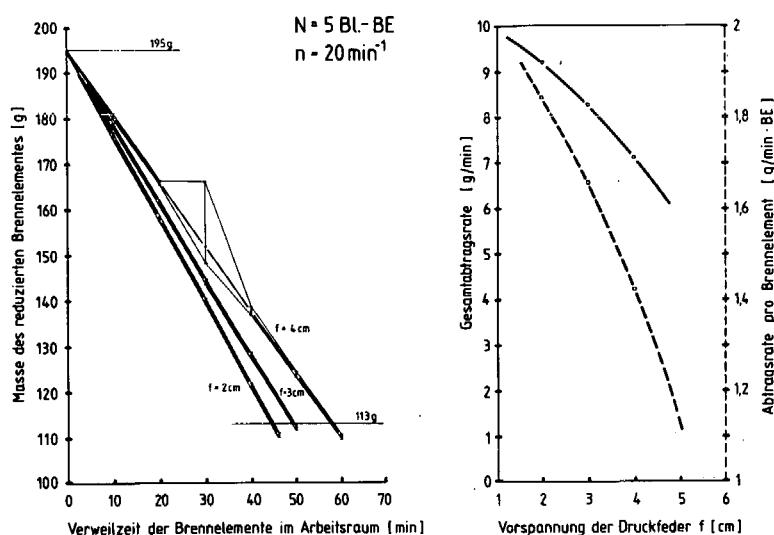


Abb. 18: Abhängigkeit der Abtragsraten von der Federvorspannung f

Den Vorteil der gleichmäßigen Bearbeitung, der im geringen Streubereich der Geraden für $f = 2$ cm und $f = 3$ cm zum Ausdruck kommt, scheint die Versuchsreihe mit $f = 4$ cm zu widerlegen, jedoch stellt dieser beobachtete Kugelausgleichsmechanismus eine dem Arbeitsmechanismus der Kugelschälfräse anhaftende positive Eigenschaft dar. (Nach Entnahme und Auswaage der Brennelemente fiel beim Beladen ein Brennelement direkt in das Kugelabzugsrohr. Die restlichen vier Brennelemente wurden entsprechend dem geringeren Beladungsgrad verstärkt bearbeitet. Die Massendifferenz von mehr als 15 Gramm wurde aber im folgenden Bearbeitungsintervall voll ausgeglichen, indem die größere Kugel bevorzugt geschält wurde.) Aus der Annahme, daß ein Brennelement für kurze Zeit die gesamte Federkraft aufnimmt, ergibt sich bei Schälbeginn für $f = 2$ cm eine maximale Brennelementbelastung von ca. 250 N. Aufgrund der großen Differenz zu der mittleren Zerdrückkraft von bestrahlten Brennelementen von ca. 22 kN [30] ist die Abtragsrate künftig über einen erhöhten Arbeitsdruck steigerbar, ohne daß Brennelementbruch zu erwarten ist.

2.2.2.4 Füllgradabhängigkeit

Der Füllgrad N gibt an, wieviel Brennelemente während eines Schälvorganges gleichzeitig bearbeitet werden. Bei gegebener Geometrie können höchstens 20 Brennelemente pro Arbeitsraum geschält werden, jedoch erweist sich eine geringere Beladung der Kugelschälfräse wegen der damit verbundenen höheren Gesamtabtragsrate als günstiger.

Kurve a für Mischoxid-Brennelemente und Kurve b für FEED-BREED-Brennelemente in Abb. 19 zeigen für $N = 2-3$ ein Gesamtabtragsmaximum von ca. 16-17 gC/min äquivalent ca. 12 BE/h. Bei höherem Füllgrad fällt die Gesamtabtragsrate stetig ab und nimmt für hohe Werte ($N > 8$) einen konstanten Wert an.

Dieser Kurvenabfall kann durch die Beschaffenheit der Arbeitsscheibe erklärt werden: Statistisch betrachtet sind beim Schälen höchstens drei Brennelemente zwischen Arbeits- und Reaktions-scheiben eingeklemmt, so daß jedes zusätzliche Brennelement erst dann bearbeitet wird, wenn eines von den eingeklemmten ent-

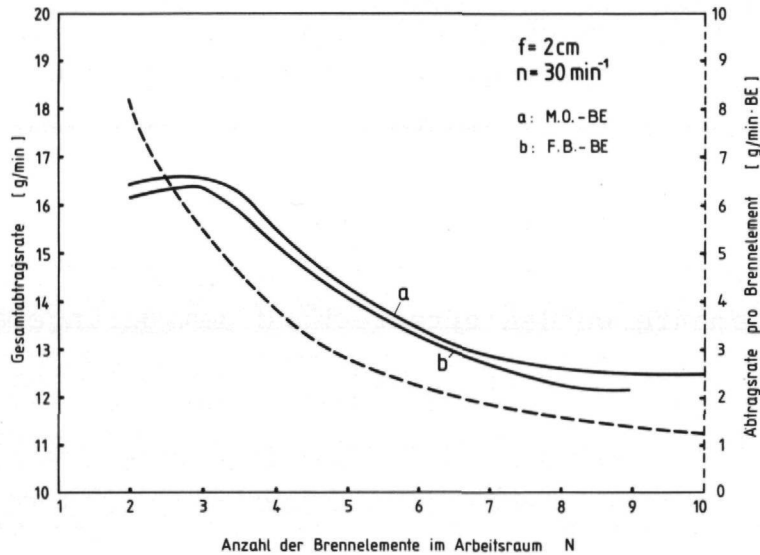


Abb. 19: Abhängigkeit der Abtragsraten von Füllgrad N



Abb. 20: Mit $N = 1$ geschälte BE-Kugel

sprechend dem Arbeitsmechanismus freigegeben worden ist. Je mehr Brennelemente im Arbeitsraum, desto mehr befinden sich in der unproduktiven Fallbewegung.

Die gegenseitige Beeinflussung der Brennelemente wirkt sich ab einem bestimmten Beladungsgrad ($N > 8$) in einer Stabilisierung der Gesamtabtragsrate aus.

Wegen dem niedrigen optimalen Füllgrad ist es für eine Kapazitätserweiterung dieses Versuchstyps nicht sinnvoll, den Arbeits-

raum über den Durchmesser zu vergrößern; vielmehr ist eine Hintereinanderreihung mehrerer kleiner Arbeitsräume angebracht.

Abb. 20 zeigt ein Brennelement, daß sich bei hoher Federvorspannung ($f = 2 \text{ cm}$) alleine im Arbeitsraum befand. Die vollständige Unterdrückung der freien Bewegungsphase hat eine resultierende unkugelige Gestalt des geschälten Brennelementes zur Folge. Für die Bearbeitung eines einzelnen Brennelementes ist die Kugelschälfräse nicht geeignet.

2.2.2.5 Das Schälen beschädigter und deformierter Brennelement-Kugeln

Um die Eignung der Kugelschälfräse für das Schälen deformierter Brennelement-Kugeln zu untersuchen, wurde ein Brennelement zu der in Abb. 21 oben links dargestellten Form bearbeitet ($N = 1$, $n = 30 \text{ min}^{-1}$, $f = 2 \text{ cm}$). Es sollte ein durch Korrosion, Schrumpfung oder aufgrund mechanischer Belastung beschädigtes Element simulieren.



Abb. 21: Teilweise deformierte Brennelemente vor (obere Reihe) und nach (untere Reihe) dem Schälvorgang

Nach Bearbeitung der oberen drei Kugeln aus Abb. 21 resultieren die darunter zu erkennenden geschälten Brennelemente. Optisch ist nicht mehr zu bestimmen, welche der unteren Kugeln die vormals deformierte war. Verantwortlich für diesen Effekt ist der schon beschriebene Ausgleichsmechanismus, durch den selbst un-kugelige, mit Oberflächenschäden versehene Elemente bei Anwesenheit anderer abzuschälender Kugeln zu geometrisch runden Kugeln geschält werden. Wegen dieser Eigenschaft können sämtliche unzerbrochenen abgebrannten Brennelemente bearbeitet werden, wodurch ein maximaler Abtrag ermöglicht wird.

Bei sämtlichen Versuchen wurde gegen Ende des Schälvorganges das Schälgut, dessen Korngrößenverteilung, dargestellt im RRS-Körnungsnetz (siehe Abb. 25), aus Abb. 22 ersichtlich ist, gesondert aufgefangen und verascht. Die Veraschungsrückstände von $< 2 \cdot 10^{-4}$ g/BE wurden visuell unter einem Mikroskop auf SiC-Schalenbruch untersucht, der in keinem Fall zu erkennen war. Die Rückstände setzten sich aus Materialabtrag der Werkzeugoberfläche und aus Verunreinigungen zusammen. Wegen dem vernachlässigbarem Wert erschien eine weitere Analyse unzweckmäßig. Die Schüttdichte des Schälgutes wurde zu ca. $0,72 \text{ g/cm}^3$ bestimmt.

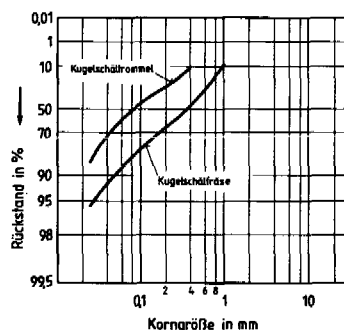


Abb. 22: Korngrößenverteilungsdichte des Schälgutes von Kugelschälfräse und Kugelschältrammel (RRS-Körnungsnetz)

Abb. 23 zeigt die experimentell ermittelten durchschnittlichen Massen samt der dazugehörigen Standardabweichungen für die durchgeführte Abtrennung der brennstofffreien Brennelementzone. Diese

Werte sind den folgenden Kapiteln zugrundegelegt, da alle später diskutierten Graphitabtrennverfahren durch einen einleitenden Schälvorgang gekennzeichnet sind.

	M.O.-BE	F.B.-BE
Anzahl der geschälten Brennelemente	116	50
mittlere Brennelementmasse m_{BE}	208,15 g	203,45 g
Standardabweichung σ	0,34	0,19
mittlere geschälte Brennelementmasse m_{BE0}	125,85 g	120,94 g
Standardabweichung σ_0	1,26	1,42
Abtrennrage G	44,1 %	43,4 %

Abb. 23: Experimentell ermittelte Durchschnittsmassen und Standardabweichungen für die Abtrennung der brennstofffreien Brennelementzone mit der Kugelschälfräse

2.2.3-----Entwurf eines Prototyps

Wie in Kapitel 2.2.2.4 dargelegt, kann eine Kapazitätsvergrößerung des Versuchstyps einer Kugelschälfräse (experimentell nachgewiesene Schälkapazität von 12 BE/h) nur darin bestehen, mehrere relativ kleine Arbeitsräume hintereinanderzureihen. Abb. 24 zeigt die Prinzipskizze eines Entwurfs der weiter entwickelten Kugelschälfräse mit fünf Arbeitsräumen, jedoch ist nach gegenwärtigem Erkenntnisstand kein Grund ersichtlich, nicht zehn oder mehr Arbeitsräume in einem Gehäuse unterzubringen. Vier solcher Kugelschälfräsmaschinen mit jeweils 10 hintereinandergereihten Arbeitsräumen können bei einem Raumbedarf von zusammen $2 \times 2 \times 1 \text{ m}^3$ ca. 500 BE/h abschälen. Selbstverständ-

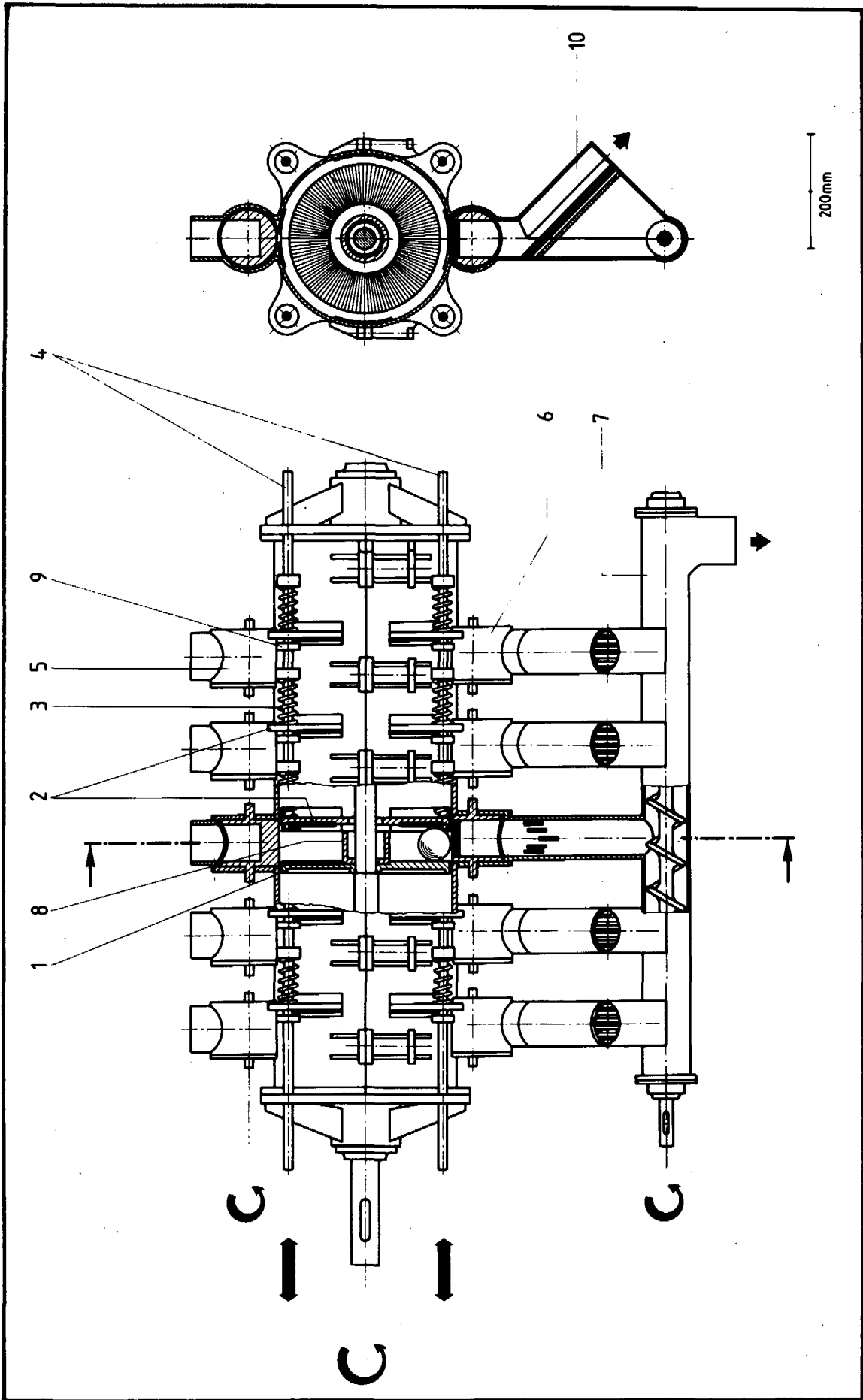


Abb. 24: Prinzipskizze des Prototyps einer Kugelschälfräsmaschine mit 5 Arbeitsräumen (Erläuterungen im Text)

lich kann diese Maschine auch mit nur einem Arbeitsraum ausgeführt werden. Beiden Ausführungen (Versuchs- und Prototyp) liegt derselbe Abschälmechanismus zugrunde.

Das zylindrische Gehäuse besteht aus Mantelober- und Mantelunterteil, die miteinander verschraubt sind und den beiden aufgeflosschten Deckeln. In der Gehäusemantelung befinden sich pro Arbeitsraum vier Öffnungen, durch die jeweils vier verstärkte Führungsösen einer Reaktionsplatte herausragen. Im Querschnitt der Abb. 24 ist die Form der abgeänderten Reaktionsplatte mit den durch den Gehäusemantel herausgezogenen, nasenartigen Führungselementen erkennbar.

Die Reaktionsplatten (2) hängen in diesen Führungsösen an vier Führungs- bzw. Steuerstangen (4) und besitzen in der Mitte Bohrungen für den Durchtritt der Antriebswelle. Die Stangen lagern gleitend in den Deckeln und sind in ihrer Längsachse verschiebbar, besitzen jeweils pro Reaktionsplatte einen zusätzlichen festen Anschlag (9) und nehmen die Druckfedern auf. Auf eine Reaktionsscheibe wirken also vier dieser Druckfedern, die zwischen den nasenartigen Führungsösen und in Längsrichtung verstellbaren Verdickungen an den Führungsstangen (z. B. feststellbare Muttern) eingespannt sind. Über diesen Verstellmechanismus wird die benötigte Federvorspannung reguliert.

Auf der durchgehenden Antriebswelle sind die Arbeitsscheiben (1) und Arbeitsraumbegrenzungsbuchsen (8), z. B. über eine Nasenkeilverbindung, angebracht.

Durch diese konstruktiven Änderungen ergibt sich eine kompakte Anordnung, bei der Kugelzuführ- (5) und Kugelabzugsschleuse (6) direkt über bzw. unter den jeweiligen Arbeitsräumen angeschweißt werden, wobei der drehbare Zylinder der Kugelabzugsschleuse mit Bohrungen versehen ist, damit das Schälgut während des Arbeitsvorgangs nach unten fällt und über eine Schnecke (7) weitergefördert wird. Von diesem zylindrischen Drehkörper ist ein Kreisabschnitt mit dem Radius des Arbeitsraumes abgedreht, so daß er während des Schälvorgangs nicht in den Arbeitsraum hineinragt, sondern sich dessen Scheibenform einfügt.

Beim Beladungsvorgang werden die Reaktionsplatten soweit nach rechts in ihre Anfangslage versetzt, daß die benötigte Arbeits-

raumgröße entsteht. Das geschieht durch die Steuerstangen, die durch einen Verstellmechanismus soweit nach rechts geschoben werden, bis die zusätzlichen Anschläge (9) die Reaktionsscheiben in ihre Ausgangslage gedrückt haben.

Anschließend werden durch die Kugelfuhrschleusen die Arbeitsräume beladen und die Steuerstangen in ihre Arbeitsstellung gefahren und befestigt, die dadurch gekennzeichnet ist, daß die zusätzlichen Anschläge wie die Begrenzungsbuchsen wirken. Nach dem Arbeitsvorgang vollführen die Steuerstangen dieselbe Bewegung. Der Kugelabzug erfolgt analog vor der Kugelfuhr in der Ausgangsposition der Reaktionsscheiben. Die Kugeln werden durch Stäbe aus dem Schälgutaustragsrohr herausgeleitet und treten durch das Kugelabzugsrohr (10) aus.

Anstelle der Kugelschleusen können auch Schieber angebracht werden, jedoch ist die Kugelteilung dann über eine Meßstrecke zu verwirklichen.

3. MÖGLICHKEITEN UND POTENTIAL DER GRAPHITABTRENNUNG DURCH ZUSÄTZLICHE TROCKEN-MECHANISCHE AUFARBEITUNG DER INNEREN BRENNSTOFFZONE MIT KONVENTIONELLEN AUF- BEREITUNGSMASCHINEN

Zusätzlich zur Abtrennung der brennstofffreien Brennelementzone besteht die Möglichkeit einer weiteren Graphitabtrennung darin, die innere Brennstoffzone der Brennelement-Kugeln kontrolliert zu zerkleinern und dieses Produkt einem Sortierprozeß zu unterziehen.

In diesem Kapitel werden zuerst ausgewählte konventionelle Aufbereitungsmaschinen einer eingehenden Beurteilung unterzogen. Sofern für das Verständnis notwendig, erfolgt für die einzelne Komponente eine Beschreibung ihrer Wirkungsweise mit dem Ziel, die für die vorliegende Aufgabenstellung veränderten Anforderungen hervorzuheben. Experimentelle Laborergebnisse und Konsequenzen werden besonders unter dem Gesichtspunkt eines realistischen Brennelementdurchsatzes diskutiert. Wegen der Wichtigkeit des Zerkleinerungsprozesses auch im Hinblick auf das Wirbelschicht-Verbrennungs-HEAD-END wird diesen Untersuchungen relativ viel

Raum gewidmet.

Schließlich wurden für zwei aufgrund der gewonnenen Erkenntnisse sinnvoll erscheinende Kombinationen aus Zerkleinerungs- und Trennmaschinen in Abhängigkeit geeigneter Betriebsparameter Diagramme erstellt, die eine vergleichende Aussage über den möglichen Graphitabtrenngrad und den dabei zu erwartenden Schwermetallverlust bei gegebenem verfahrenstechnischen Aufwand erlauben.

3.1 Die kontrollierte Zerkleinerung von geschälten HTR-Brennelement-Kugeln

Unter mechanisch kontrollierter Zerkleinerung der Brennelemente sind Verfahren zu verstehen, bei denen die Kernbrennstoffteilchen (inclusive der SiC-Schicht) nicht zerstört werden. Im Gegensatz dazu existiert das Feinmahlen der Brennelemente, bei dem man gezielt Schwermetallpartikeln und -kerne quantitativ aufschließt und bei dem wegen dem dabei entstehenden Schwermetall-Feinstaubanteil eine mechanische Trennung von Graphit und Schwermetall grundsätzlich unmöglich wird.

Das günstigste Zerkleinerungsverfahren wäre ein Prozeß, bei dem die Kernbrennstoffteilchen sauber und intakt so freigelegt würden, daß sich eine scharfe quantitative Graphit-Brennstoffpartikel-Trennbarkeit auf ebenfalls trocken-mechanischem Wege anschließen könnte. Diese idealisierte Forderung konnte bisher nicht erfüllt werden.

Entsprechend den verschiedenen dominierenden Zerkleinerungsmechanismen wie Schlag- und Prall-, Druck- und Scherbeanspruchung wurden Hammermühle, Backenbrecher und Kugelmühle in Laborversuchen mit unbestrahlten geschälten Brennelementen getestet. Ergänzende Literaturlauswertungen vervollständigen die dabei gewonnenen Ergebnisse.

Trotzdem besteht in der Beurteilung der Zerkleinerungsverfahren eine enorme Unsicherheit bezüglich des Verhaltens bestrahlten Materials. Eine Optimierung der Zerkleinerungsstufe zu minimalem Bruch kann letztlich nur in vergleichenden Heiß-Zellen-Versuchen durchgeführt werden.

3.1.1 Definitionen, Kennwerte und Bewertungsgrundlagen

3.1.1.1 Konventionelle Betrachtungsweise

Im Gegensatz zu bisherigen Untersuchungen über die Zerkleinerung ganzer Brennelement-Kugeln [4,5,13] wurde entsprechend dem verfahrenstechnischen Ziel einer möglichst schwermetallfreien Graphitabtrennung als Aufgabegut für Hammermühle und Backenbrecher die in der Kugelschälfräse geschälten Brennelement-Kugeln gewählt. Neben einer veränderten Geometrie und Oberfläche hat durch den ersten Bearbeitungsschritt eine Verschiebung des Graphit-Schwermetall-Verhältnisses von ca. 16 auf ca. 9 stattgefunden.

In beiden Fällen ergibt sich als Zerkleinerungsprodukt ein Mischkollektiv, das sich aus den Komponenten der in Form und Größe unterschiedlichen Graphitkörner, der mehr oder weniger zerstörten Brennstoffpartikeln und einem verwachsenen Mischkorn beider Komponenten zusammensetzt.

Statistische Methoden ermöglichen derartige Kollektive zu beschreiben, wobei man sich meistens auf ein Auftrennen des Mahlgutes mittels Siebanalyse nach DIN 4188 in Kornklassen beschränkt. Zweckmäßigerweise gibt die Masse der Körner ihre Menge in einer bestimmten Korngrößenklasse an. Die so erhaltene Korngrößenverteilungsdichte y_i gibt den Massenanteil der Korngrößenklasse in Prozent p_i dividiert durch die entsprechende Klassenbreite Δd_i in Abhängigkeit von der Korngröße an.

$$y_i = \frac{p_i}{\Delta d_i} \quad [\% / \mu\text{m}]$$

Als mittlere arithmetische Korngröße d_{ma} des gesamten Kollektivs wird das arithmetische Mittel der einzelnen Klassenmittelwerte verstanden

$$d_{ma} = \frac{\sum_{i=1}^n p_i \cdot d_{ia}}{\sum_{i=1}^n p_i} = \frac{1}{100} \sum_{i=1}^n p_i \cdot d_{ia} \quad [\mu\text{m}]$$

$$\text{mit } d_{ia} = \frac{1}{2} (d_{io} + d_{iu})$$

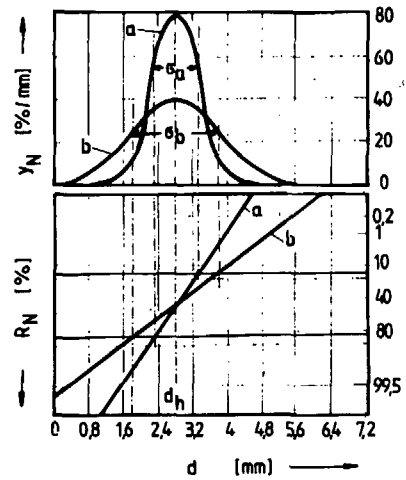
d_{io} , d_{iu} : obere bzw. untere Klassengrenze

Die Normalverteilung

$$y_N = \frac{100}{\sigma \sqrt{2\pi}} \cdot \exp \left[-\frac{(d-d_h)^2}{2 \sigma^2} \right]$$

$$R_N = 100 - \int_0^{\infty} y_N \cdot dd$$

d_h = häufigste Korngröße
 $\sigma = 1/2(d_2 - d_1)$ = Standardabweichung
 d_1 = Korngröße bei $R_N = 84,1\%$
 d_2 = " " $R_N = 15,9\%$

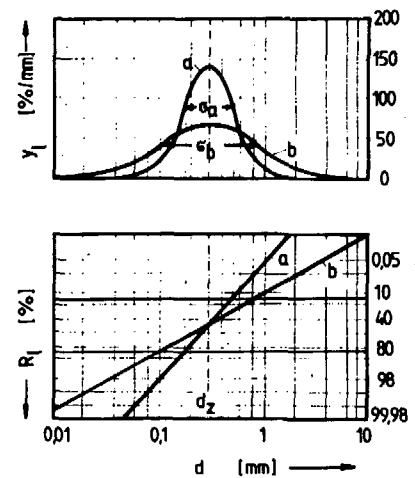


Die logarithmische Normalverteilung

$$y_l = \frac{100}{\sigma_l \sqrt{2\pi}} \cdot \exp \left[-\frac{(\log d - \log d_z)^2}{2 \sigma_l^2} \right]$$

$$R_l = 100 - \int_0^{\infty} y_l \cdot dd$$

d_z = Korngröße bei $R_l = 50\%$
 $\sigma_l = 1/2 \log (d_2 / d_1)$



Die Rosin-Rammler-Sperling-Verteilung (RRS)

$$y_{RRS} = 100 \cdot \frac{n}{d'^n} \cdot d^{n-1} \cdot \exp \left[-\left(\frac{d}{d'}\right)^n \right]$$

$$R_{RRS} = 100 \cdot \exp \left[-\left(\frac{d}{d'}\right)^n \right]$$

n = Gleichmäßigkeitszahl
 d' = Korngröße bei $R_{RRS} = 36,82\%$

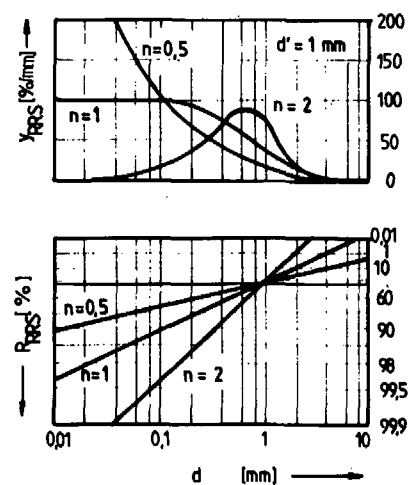


Abb. 25: Beschreibung von Korngrößenverteilungen (Korngrößenverteilungsdichte und Rückstandssummenverteilung)

Das Zerkleinerungsverhältnis k als Maß für die durch einen Zerkleinerungsvorgang veränderte Korngrößenzusammensetzung ist definiert als das Verhältnis von mittlerer arithmetischer Korngröße des Aufgabegutes A zu mittlerer arithmetischer Korngröße des Zerkleinerungsgutes Z :

$$k = \frac{d_{ma}(A)}{d_{ma}(Z)}$$

Die entsprechenden Flächen unter der Kurve der Korngrößenverteilungsdichte bzw. deren Summierung geben an, wieviel Massenprozent des Kollektivs größer oder kleiner als eine bestimmte Korngröße sind. In der verfahrenstechnischen Praxis hat sich jedoch die Durchgangssummenverteilung bzw. die Rückstandssummenverteilung als geeigneter erwiesen, weil an diesen Körnungskennlinien direkt der prozentuale Massenanteil eines bestimmten Korngrößenbereichs abgelesen werden kann.

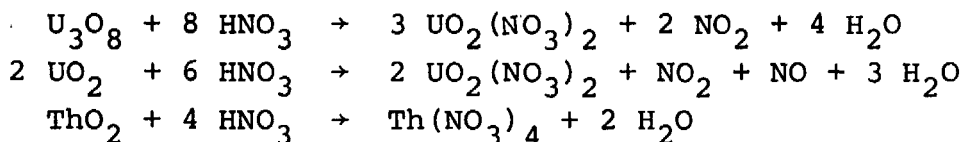
Wegen der relativen Unanschaulichkeit der Summenverteilungskurven werden diese nur dann benutzt, wenn ein stofflich homogenes Kornkollektiv vorliegt. Bei den hier auftretenden Mischkollektiven eignet sich die Korngrößenverteilungsdichte besser, da aus ihr eher ersichtlich wird, in welchem Korngrößenintervall sich die spezifisch schwereren Kernbrennstoffteilchen befinden.

3.1.1.2 Die BURN-LEACH-Analyse zur Bestimmung von SiC-Hüllbruchraten

Während in der konventionellen Zerkleinerungstechnik die Bewertung von Zerkleinerungsmaschinen mit Hilfe von Energieverbrauchs- und Zerkleinerungskennwerten durchgeführt wird, muß bei der vorliegenden Aufgabe der durch den Zerkleinerungsvorgang bewirkte Partikelbruch in die Betrachtung einbezogen werden. Unter Partikelbruch wird in dieser Arbeit der Bruch der SiC-Hülle TRISO-beschichteter Kernbrennstoffteilchen verstanden. Die Bestimmung der SiC-Hüllbruchrate von $(U/Th)O_2$ -TRISO-CP und UC_2 -TRISO-FEED-CP erfolgte nach der BURN-LEACH-Methode. Abb. 26 und 27 zeigen die Vorgehensweise bei der SiC-Hüllbruchratenanalyse.

Zur Bestimmung des Graphitanteils im Analysengut m_1 wird dieser hinreichend lange 24 - 36 h in einem Muffelofen bei 800°C verbrannt. Die Massen der äußeren PyC-Schichten der TRISO-CP und die BISO-Beschichtungen der ThO_2 -Kerne verbrennen ebenfalls. Deswegen wird als Bezugsgröße zur Bestimmung der Graphitabtrennrage G der gesamte verbrennbare Anteil einer Brennelement-Kugel nach Abb. 1 zugrundegelegt (M.O.-BE: 186,7 g; F.B.-BE: 190,0 g). Zusätzlich verbrennen bei Partikeln mit defekter SiC-Hüllschicht auch die inneren Beschichtungen, wobei die UC_2 -Kerne zu U_3O_8 -Pulver zerfallen.

Beim anschließenden Auflösevorgang des Verbrennungsrückstandes m_2 in siedendem THOREX-Reagenz (13 M HNO_3 ; 0,05 M HF ; 0,1 M $\text{Al}(\text{NO}_3)_3$ -Lösung) über 24 h lösen sich die freigelegten Uran- und Thoriumoxide gemäß den Summenformeln



unter Bildung der entsprechenden Nitrate auf [1,6]. Die Kinetik dieses Auflösevorganges hängt stark vom Thoriumgehalt des Kernmaterials, von der jeweiligen Brennstoffcharge und ihrer Vorgeschichte (z. B. Sintertemperatur der Kerne) ab. Wegen einer ausreichenden mittleren Auflösezeit von 7 h, die an unbeschädigten Mischoxid-Kernen und einer angestrebten Th-Endkonzentration von 1 Mol Th^{4+}/l ermittelt wurde [38], kann davon ausgegangen werden, daß sich nach 24 h die Uran- und Thoriumoxide quantitativ gelöst haben, zumal in diesem Fall zum Teil ein die spezifische Reaktionsoberfläche vergrößernder ThO_2 -Bruch vorlag und die Reaktion mit Säureüberschuß (Th-Endkonzentration 0,6 - 0,7 Mol Th^{4+}/l) durchgeführt wurde.

Für die Auflösung der Mischoxid-Veraschungsprodukte in Erlenmeyerkolben mit aufgesetzten Intensivrückflußkühlern genügte zur Verhinderung der Siedeverzögerung der Einsatz von Magnetrührstäbchen (Länge 25 mm, Durchmesser 6 mm), da die dadurch hervorgerufene Beschädigung intakter SiC-Schichten mit < 0,1 % genügend klein war. Der entsprechende Wert lag für Feed-Par-

tikel bei ca. 16 - 18 %. Dagegen erwies sich das Lösen von FEED-BREED-Veraschungsprodukten in Rundkolben, bei dem über die gesamte Versuchszeit ein Inertgas durch eine Siedekapillare eingeblasen wurde, mit einer SiC-Hüllbruchrate der Feed-Partikeln < 0,5 % als wesentlich geeigneter.

Die Sortierung der getrockneten und veraschten Auflösungsrückstände m_3 in intakte, bis auf die SiC-Schicht abgebrannte TRISO-Partikeln m_4 und gebrochene SiC-Schalen m_5 wurde im Zick-Zack-Sichter (siehe Kapitel 3.2.2) vorgenommen.

Die Masse der gelösten Mischoxid-Kerne entspricht der Differenz $m_2 - m_3$, wogegen die Bestimmung des gelösten Uran- bzw. Thoriumanteils beim FEED-BREED-System durch Titration mit $Ce(SO_4)_2$ bzw. ÄDTA erfolgte. Die Kernmasse der unzerstörten Partikeln wurde rechnerisch über einen Korrekturfaktor bestimmt. Die Bestimmungsgleichungen für die SiC-Hüllbruchraten von $(U/Th)O_2$ -TRISO-Partikeln bzw. UC_2 -TRISO-FEED-Partikeln sind Abb. 26 bzw. 27 zu entnehmen.

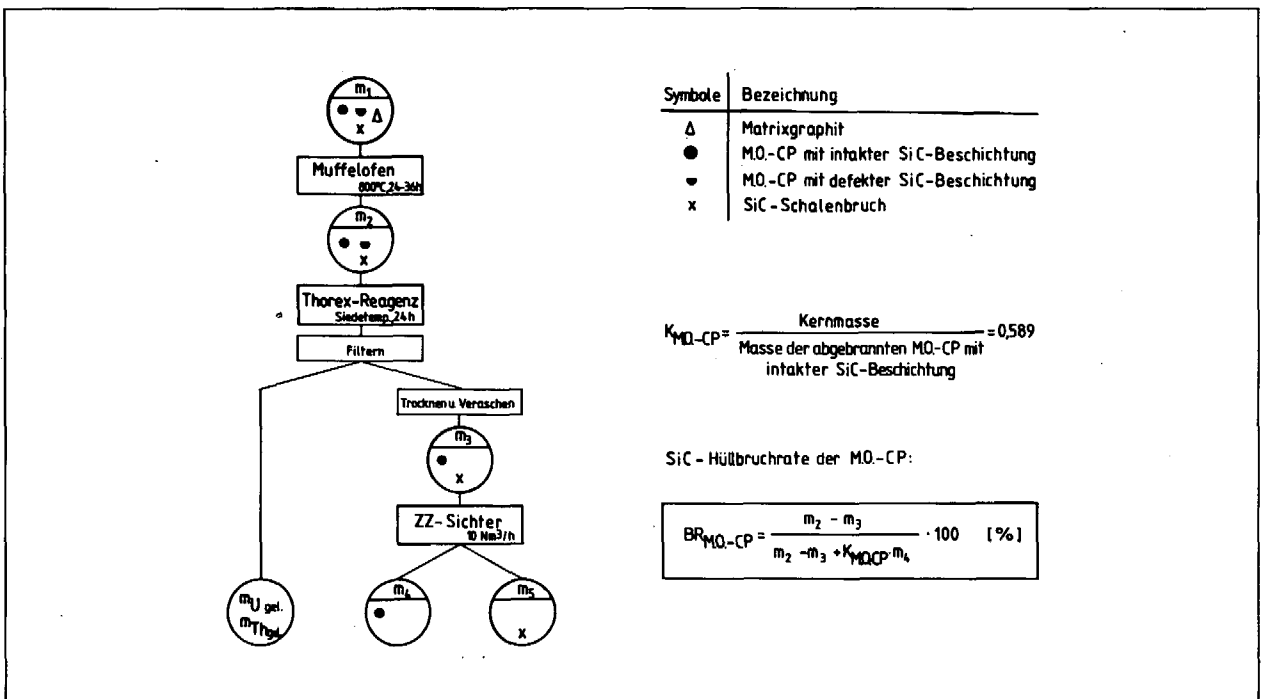


Abb. 26: BURN-LEACH-Analyse zur Bestimmung der SiC-Hüllbruchrate von $(U/Th)O_2$ -TRISO-CP (M.O.-CP)

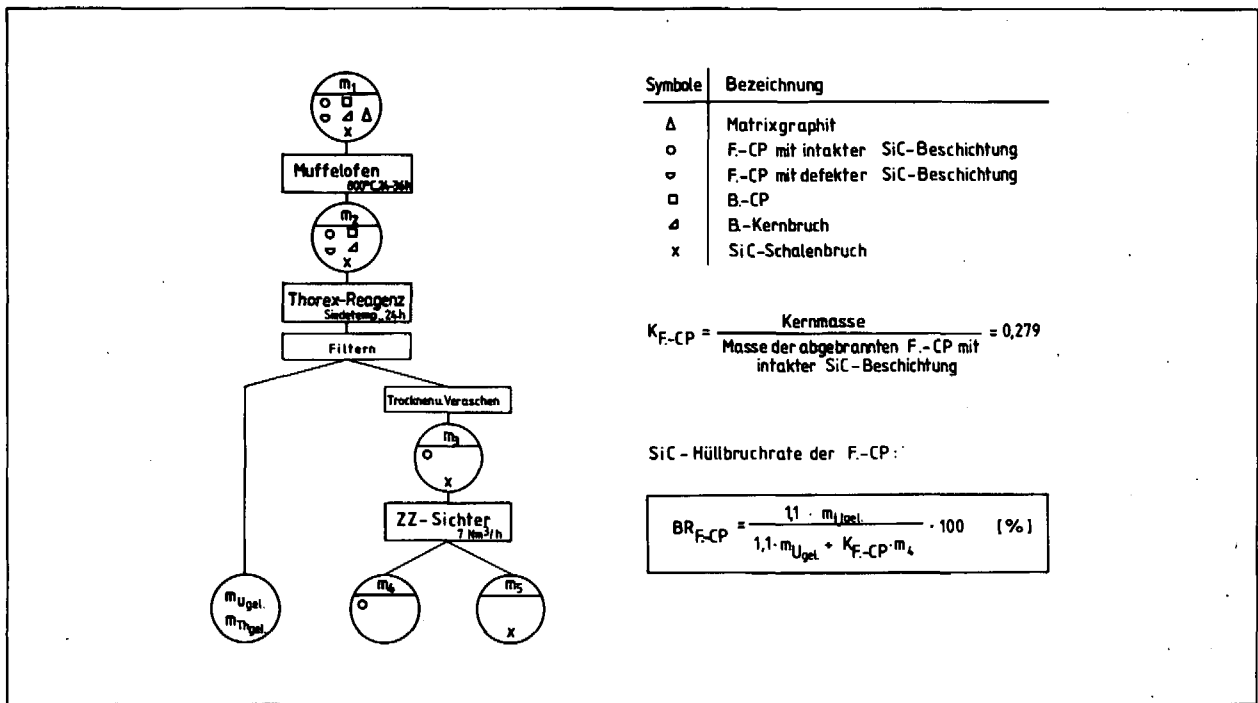


Abb. 27: BURN-LEACH-Analyse zur Bestimmung der SiC-Hüllbruchrate von UC₂-TRISO-FEED-CP (F.-CP)

3.1.2 Die Schlag- und Prallzerkleinerung in einer Hammermühle

Die Hammermühle (HM) arbeitet nach dem Prinzip der Schlag- und Prallzerkleinerung. (Die Abgrenzung zwischen Prall- und Schlagbeanspruchung ist dadurch gegeben, daß bei ersterer die zum Zerkleinern der Partikeln zur Verfügung stehende Formänderungsarbeit ohne Formzwang durch Stoßvorgänge übertragen wird, während sich beim Schlag das Korn gegen eine Festfläche abstützt [39,40].) Die Hammermühle besteht aus einem schnellumlaufenden Rotor mit beweglichen Hämmern, die beim Umlauf durch Fliehkräfte radial ausgerichtet werden. Bei Siebhammermühlen schließt ein auswechselbares Siebblech den Arbeitsraum ab. Die Haupteinflußfaktoren auf die Zerkleinerungsarbeit sind Siebeinsatzgeometrie und Umfangsgeschwindigkeit des Rotors [41]. Allgemein kann ausgesagt werden, daß mit abnehmendem Sieblochdurchmesser und mit zunehmender Umlaufgeschwindigkeit die Feinheit des Mahlgutes bei gleichfalls steigendem Energiebedarf zunimmt, wobei im Feinbereich die Teilchen-

größe der RRS-Verteilung folgt [42].

Untersuchungen einer Hammermühle vom Typ HM2 der Firma Siebtechnik bestätigen diese grundsätzlichen Abhängigkeiten [5]: Mit wachsender Schlitzbreite des Längsschlitzsiebes von 1,5 auf 3 mm vergrößert sich die mittlere Korngröße von 450 μm auf 2300 μm , während sich der Partikelbruch von 34/26 % auf 1,2 % verringert. Die Bruchrate eines Mahlproduktes (6,7 %), bei dem ein Querschlitzsieb mit einer Schlitzbreite von 2,5 mm eingesetzt wurde, liegt trotz besserem Zerkleinerungsgrad ($d_{\text{ma}} = 840 \mu\text{m}$) niedriger als bei einem vergleichbaren Versuch mit einem Längsschlitzsieb gleicher Schlitzbreite (Bruchrate 7,4 %; $d_{\text{ma}} = 940 \mu\text{m}$). Diese Tatsache kann durch das unterschiedliche Verhältnis von Lochfläche zur Gesamtfläche des Siebeinsatzes und der daraus resultierenden unterschiedlichen Verweilzeit des Mahlgutes im Mahlraum erklärt werden, welches bei den Querschlitzsieben mit ca. 1:2 deutlich größer ist als bei Längsschlitzsieben mit ca. 1:10...15.

Bei Erprobung derselben Hammermühle, deren technische Daten in Abb. 28 ersichtlich sind, wurden deshalb nur die zwei Querschlitzsiebe mit den kleinsten Schlitzbreiten von 2,5 und 4 mm eingesetzt. Abb. 29 zeigt die Korngrößenverteilungsdichte y in doppelt-logarithmischem Maßstab und die mittleren arithmetischen Korngrößen d_{ma} für sechs Versuchsreihen, bei denen jeweils drei geschälte Brennelemente zerkleinert wurden. Die Zerkleinerungsverhältnisse liegen im Bereich $k = 95 - 110$ (2,5 mm) bzw. $k = 55 - 60$ (4 mm). Obwohl Hammermühlen vorwiegend im Bereich $k = 10 - 15$ betrieben werden, bietet diese Ausführung trotz des ungewöhnlich hohen Zerkleinerungsverhältnisses den Vorteil eines hohen Brennelementdurchsatzes von 360 - 720 BE/h.

Da nach Definition die Korngrößenverteilungsdichtekurven eine Verteilung der Körnermassen angeben, werden im Vergleich zu den Zerkleinerungskollektiven unbeladener Brennelemente (Bl.-BE; von: "blindem" Brennelement) bei Zerkleinerungsprodukten mit Brennstoffpartikeln die oberen Kurvenmaxima in den Bereich der Partikelgröße, d. h. in Richtung niedrigerer Korngrößen verschoben, weshalb die Berechnung der arithmetischen mittleren Korngröße kleinere Werte ergibt. Die punktierte Kurve im unteren rechten Quadrat der Abb. 29 zeigt die Korngrößenverteilung für ein unge-

Mahlkammer: Durchmesser	34 cm
Breite	18 cm
Hammer Länge	11,5 cm
Breite	5,0x18 cm ²
Form	rechteckig
Masse	0,8 kg
Anzahl	12
Drehzahl	1440 U/min
Antriebsleistung	5,5 kW
maximale Aufgabegröße	60 mm
feinstmögliche Siebeinlage	1,5 mm Längsschlitz/2,5 mm Querschlitz
Durchsatz	360 - 720 BE/h

Abb. 28: Technische Daten der Hammermühle, Typ HM2 der Firma Siebtechnik

schältes Brennelement.

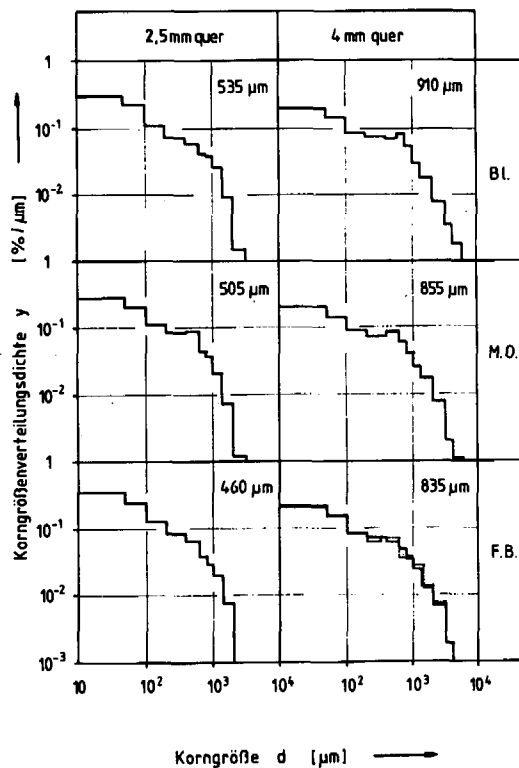


Abb. 29: Korngrößenverteilungsdichte und mittlere arithmetische Korngröße für das in der Hammermühle erzeugte Mahlgut geschältes Brennelement-Kugeln

Für diese Mahlprodukte sind in Abb. 30 die SiC-Hüllbruchraten in Abhängigkeit von der mittleren arithmetischen Korngröße aufgetragen.

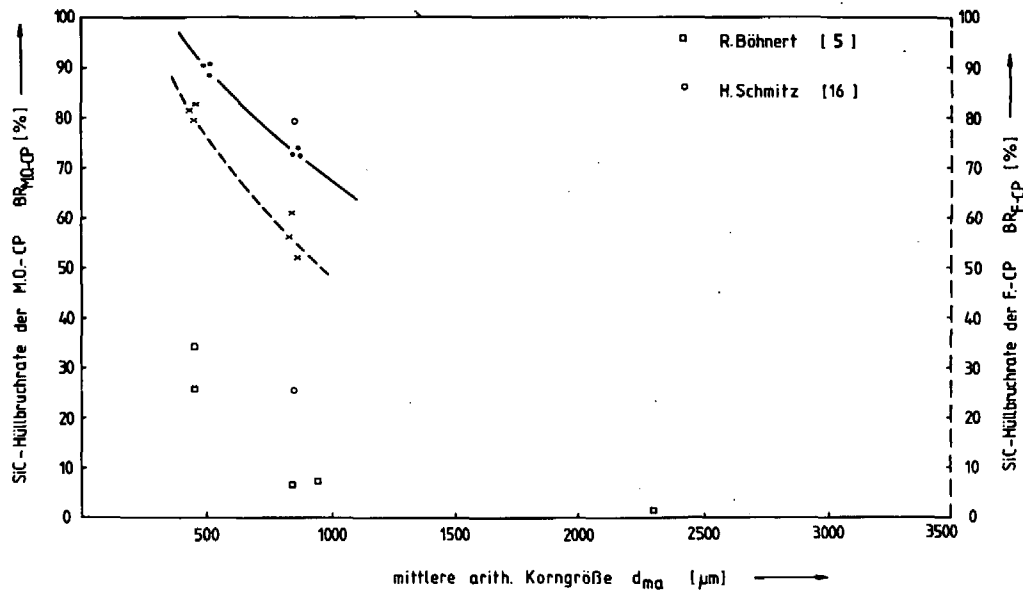


Abb. 30: SiC-Hüllbruchraten in Abhängigkeit von der durch den Zerkleinerungsprozeß in der Hammermühle erzeugten mittleren arithmetischen Korngröße

Eine visuelle Ermittlung der Mischoxid-Kernbruchrate für das gröbere Mahlprodukt mit Hilfe eines Stereomikroskopes ergab einen Wert von ca. 26 % [16]. Ausgehend von diesen Werten und von der Tatsache, daß sie an unbestrahlten Brennelementen ermittelt wurden, muß man konservativ davon ausgehen, daß durch die Schlag- und Prallzerkleinerung in einer Hammermühle die SiC-Schichten der TRISO-Partikeln bestrahlter Brennelemente quantitativ zerstört werden. Zumindest werden jedoch die in [5] ermittelten Werte erheblich überschritten, bei denen es sich vermutlich um Kernbruchraten von Mischoxid-Partikeln handelt.

Der Einsatz einer Hammermühle im Wirbelschicht-Verbrennungs-HEAD-END ist deshalb wegen dem relativ hohen Brennelementdurchsatz nur bei einer Feinmahlung von Mischoxid-Brennelementen vorteilhaft, bei der dann in nur einem Verbrennungsreaktor (keine Nachverbrennung) eine erhöhte Abgaskontamination in Kauf genommen wird.

3.1.3 Die Druckzerkleinerung in einem Backenbrecher

Bei der Druckzerkleinerung erfolgt die Energieeinleitung auf das zu zerkleinernde Gut über eine Normalkraft. Wesentlich ist dabei neben dem Formzwang die relativ niedrige Beanspruchungsgeschwindigkeit.

3.1.3.1 Bruchcharakteristik bei der Druckbeanspruchung

Abb. 31 zeigt eine repräsentative Kraft-Weg-Kurve und die beobachteten Bruchphänomene bei der Druckbeanspruchung unbestrahlter Brennelement-Kugeln. Als Bruchlast wurde in 14 Versuchen mit einer hydraulischen Presse ein mittlerer Wert von 22,6 kN bei willkürlicher Orientierung der Kugel bezüglich ihrer Preßrichtung ermittelt.

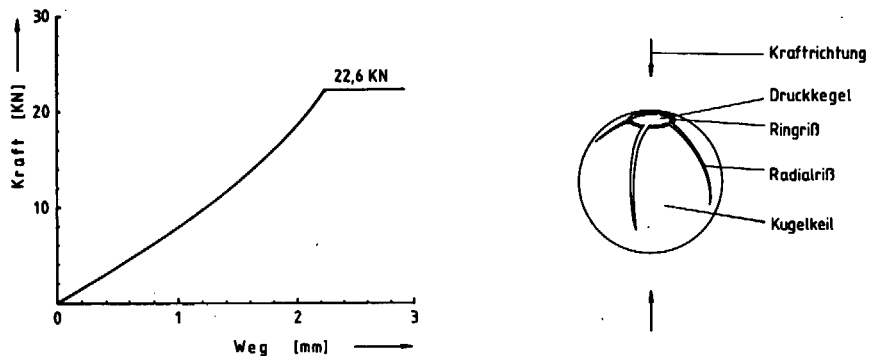


Abb. 31: Kraft-Weg-Kurve und Bruchcharakteristik bei der Druckbeanspruchung

Der auftretende Sprödbbruch erfolgt unter Wirkung einer Zugspannung, deren Maximum am Rande der Kontaktfläche zwischen Platten und Kugel auftritt und wo sich primäre Ringrisse bilden [43,44]. Diese breiten sich nach innen aus und bewirken ein Zerplatzen der Kugel in zwei Druckkegel und 3 - 4 apfelsinenscheiben-

förmige Kugelkeile. Diese eigenen Beobachtungen über den charakteristischen Primärbruchverlauf bei der Druckzerkleinerung bestätigen die in [45] veröffentlichten Detailfotos der Bruchstücke.

3.1.3.2 Wirkungsweise und Durchsatzsteigerung

Beim Backenbrecher (BB) wird das Aufgabegut zwischen einer festen Brechbacke, die im Brechergehäuse sitzt, und der beweglichen Brechbacke zerkleinert. Der untersuchte Backenbrecher, vom Typ BB1/A der Firma Retsch, dessen technische Daten in Abb. 32 aufgeführt sind, ist ein Kurbelschwingbrecher. Die Schwinge ist unmittelbar an der Kurbel der Antriebswelle aufgehängt, weshalb die bewegliche Brechbacke im oberen Teil eine elliptische, am Austragspunkt nahezu eine auf- und abwärtsgehende lineare Bewegung beschreibt [39].

Der prinzipielle Vorteil dieser Bauart liegt darin, daß zusätzlich zu dem vorherrschenden Druckzerkleinerungsmechanismus im unteren Teil bei fortgeschrittenem Zerkleinerungsgrad eine reibende Wirkung auf das Mahlgut ausgeübt wird.

Die Brechflächen sind mit Zähnen versehen, wobei der Einzugswinkel β der Backen den Reibungswinkel zwischen dem zu zerkleinernden Gut und den Brechbacken nicht überschreiten darf. Gewöhnlich hat sich ein Winkel zwischen $16 - 22^\circ$ bewährt [39]. Wegen dem geringen Reibungskoeffizienten für Graphit werden für Brennelement-Kugeln diese Werte mit $13,5 - 15^\circ$ unterschritten.

Wie aus Abb. 32 zu erkennen, unterscheiden sich die Angaben des Herstellers über den erzielbaren Durchsatz erheblich von den experimentell ermittelten. Zur Durchsatzbestimmung von Brechern existiert eine vereinfachte empirische Beziehung, die den Firmenangaben zugrundeliegt [39]:

$$\dot{Q} = 5 \cdot K \cdot s \cdot b \cdot 10^{-4} \quad [\text{t/h}]$$

mit s : geöffnete Austragsspaltweite in mm

b : Austragsspaltbreite in mm

K : Faktor, der von b abhängig ist

$$K = 1,1 - 1,6$$

Diese Formel gilt für Schüttdichten von ca. $1,6 \text{ t/m}^3$ und für gewöhnliche Zerkleinerungsverhältnisse von $k = 5 \div 7$. Die Tatsache, daß im vorliegenden Fall bei einer einstufigen Zerkleinerung geschälter Brennelemente $k = 25 \div 60$ beträgt, hat einen erheblich geringeren Durchsatz von 50 - 100 BE/h zur Folge.

Eine Durchsatzsteigerung ist nach obiger Gleichung einmal über eine Verbreiterung der Brechbacken und zum anderen durch ein Hintereinanderreihen zweier Brecher zu erzielen. Jedoch entsteht bei Druckzerkleinerung bei gröberer Stufung mehr Feinanteil - also auch mehr Bruchanteil - als bei feinerer [46].

Maulweite		60x60 mm
Durchsatz	\dot{Q}	50-100 kg/h (lt. Hersteller) 50-100 BE/h
Austragsspaltweite	s	1-20 mm
	s_1	0,4-1,6 mm
	s_2	1,3-2,5 mm
	s_3	2,6-3,8 mm
Hub am Austragungsspalt		1,2 mm
Hubzahl		280 min^{-1}
Einzugswinkel	β	$12-14^\circ$
Gewicht		110 kg
Antriebsleistung		0,74 kW

Abb. 32: Technische Daten des Backenbrechers, Typ BB1/A der Firma Retsch

3.1.3.3 Experimentelle Untersuchungen und Ergebnisse

Abb. 33 zeigt analog zu Abb. 29 die Korngrößenverteilungsdichte und die berechneten mittleren arithmetischen Korngrößen für unbeladene-, Mischoxid- und FEED-BREED-Brennelemente und für drei verschiedene Austragsspaltweiten, siehe Abb. 32.

Um qualitative Unterschiede verschiedener Zerkleinerungsmechanismen zu erkennen, sind nur diejenigen Mischkollektive vergleichbar, bei denen die mittlere arithmetische Korngröße in etwa gleich groß ist (Hammermühle mit 4 mm Querschlitzsieb und Backenbrecher mit Austragsspaltweite s_1).

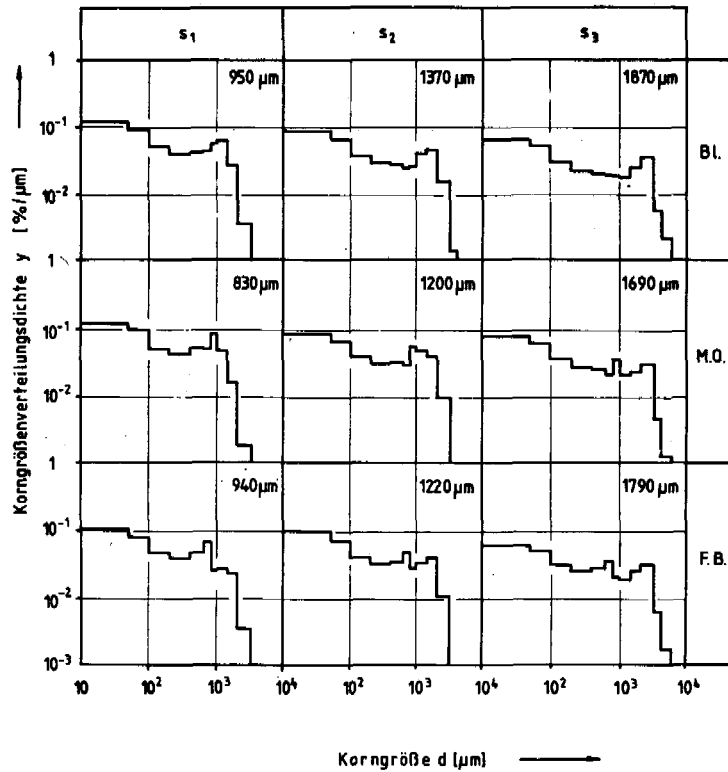


Abb. 33: Korngrößenverteilungsdichte und mittlere arithmetische Korngröße für das im Backenbrecher erzeugte Mahlgut geschälter Brennelement-Kugeln

Wegen des Formzwanges bei der Backenbrecher-Zerkleinerung läßt diese keine Bruchstücke größer als die offene Austragsspaltweite zu, wohl aber die Hammermühlen-Zerkleinerung, bei der die obere Korngröße durch den Siebeinsatz bestimmt wird. Gleichzeitig liegt beim Backenbrechermahlgut ein verminderter Feinanteil vor, und die Maxima der Korngrößenverteilungsdichten im Bereich der Partikelgröße treten deutlicher hervor.

In Abb. 34 sind die SiC-Hüllbruchraten für die Backenbrechermahlprodukte in Abhängigkeit vom mittleren arithmetischen Durchmesser dargestellt.

Über einen relativ großen Bereich steigt für Mischoxid-Partikeln mit sinkendem mittleren arithmetischen Durchmesser des Mahlgutes der SiC-Hüllbruch nur geringfügig an. Erst wenn der Zerkleinerungsgrad so hohe Werte angenommen hat, daß d_{ma} im Bereich der Mischoxid-Partikelgröße liegt, steigt die SiC-Hüllbruchrate zwangsläufig mit wachsendem Zerkleinerungsgrad steil an.

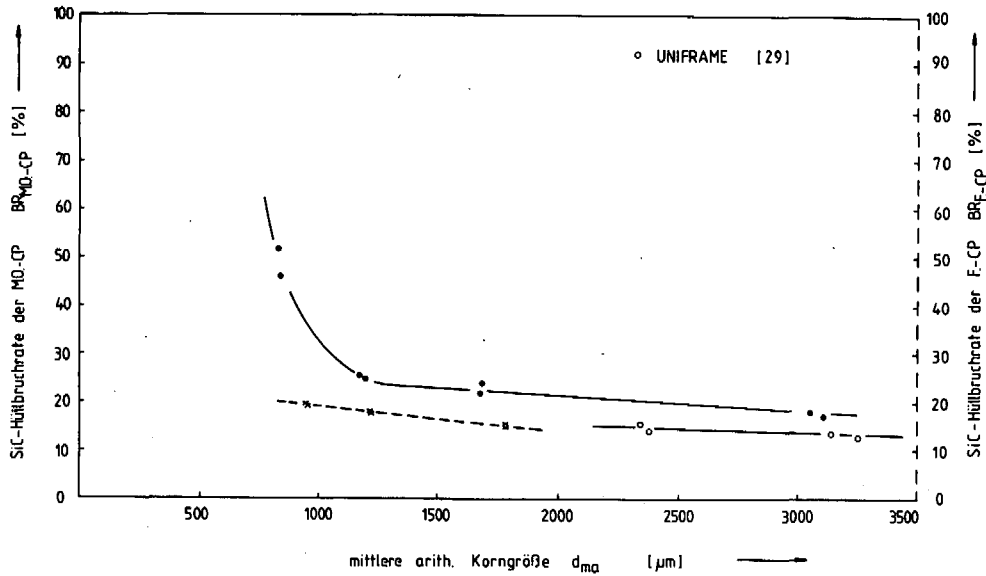


Abb. 34: SiC-Hüllbruchraten in Abhängigkeit von der durch den Zerkleinerungsprozeß im Backenbrecher erzeugten mittleren arithmetischen Korngröße

Für FEED-Partikeln wurde im untersuchten Bereich ebenfalls nur eine schwache lineare Abhängigkeit festgestellt. Da dieses Intervall jedoch oberhalb der FEED-Partikelgröße liegt, ist analog zu dem Kurvenverlauf der SiC-Hüllbruchrate der Mischoxid-Partikeln mit sinkender mittlerer arithmetischer Korngröße des FEED-BREED-Mahlgutes ein ebenfalls steiler Anstieg der FEED-SiC-Hüllbruchrate zu erwarten. Die ermittelten Hüllbruchratenverläufe bestätigen den Backenbrecher als relativ partikelschonende Zerkleinerungsmaschine.

3.1.3.4 Der Backenbrecher in Kombination mit einer Walzenmühle

Desweiteren bietet der Backenbrecher den konstruktiven Vorteil, daß unter dem Backenbrecher eine Walzenmühle als zusätzliche Zerkleinerungsstufe plaziert werden kann. Solche Kombinationen wurden erfolgreich getestet und eignen sich besonders zum gezielten Kernaufschluß, bei dem die SiC-Schalen bewußt aufgebrochen werden, um entweder den darunter liegenden Kohlenstoff in einem Nachverbrennungsofen zu entfernen (Wirbelschicht-Verbrennungs-

HEAD-END) oder wie bei der Feinmahlung das Schwermetall direkt durch einen chemischen Trennvorgang (z. B. GRIND-LEACH-Prozeß) zu entfernen.

Eine solche Kombination aus Backenbrecher und Walzenmühle ist auch das in den USA entwickelte UNIFRAME-Zerkleinerungssystem, bei dem sogar zwei Backenbrecher und eine Walzenmühle übereinander angeordnet sind und das die Aufgabe hat, prismenförmige Blockbrennelemente zu zerkleinern [47,48]. Diese Maschine wurde 1980 im Rahmen der JFPD Preliminary Tests⁽¹⁾ relativ erfolgreich für HTR-Brennelement-Kugeln getestet [29].

Nachuntersuchungen im ICT der KFA Jülich [49] ergaben eine tolerierbare Übereinstimmung mit den in [29] dokumentierten Werten. Durch eine Überkornzerkleinerung der abgesiebten Grobfraction wird der Schalenbruch von $BR_{M.O.-CP} \approx 14\%$ bei $d_{ma} = 3150 \mu m$ auf $BR_{M.O.-CP} \approx 15\%$ bei $d_{ma} = 2350 \mu m$ unwesentlich angehoben. Die entsprechende Gerade ist ebenfalls in Abb. 34 eingetragen und stimmt gut mit den eigenen Werten überein.

In einem Kurzzeitversuch wurde mit der UNIFRAME eine Durchsatzrate von 200 BE/min demonstriert.

3.1.4 Die Reibungszerkleinerung in einer Kugelmühle

3.1.4.1 Wirkungsweise

Eine Kugelmühle (KM) besteht aus einem zylindrischen Gefäß, das mit Mahlkörpern (Kugeln) und dem zu zerkleinernden Material gefüllt ist. Ein Antrieb dreht das Gefäß um dessen horizontale Achse, wobei je nach ihren Bewegungsverhältnissen die Mahlkugeln durch eine schlagende und/oder reibende Wirkung eine Zerkleinerung des Mahlgutes hervorrufen. Haupteinflußfaktoren auf die Mahlkörperbewegung sind Kugelfüllgrad, Mahlgutfüllgrad und Drehzahl der Mühle:

(1) JFPD: Joint Fuels Processing Demonstration (gemeinsames Programm der USA und BRD zur Entwicklung und Errichtung einer HEAD-END-Pilotanlage)

$$\text{Kugelfüllgrad} \quad \epsilon_K = \frac{\text{Kugelschüttvolumen}}{\text{Mühlenvolumen}}$$

$$\text{Mahlgutfüllgrad} \quad \epsilon_M = \frac{\text{Mahlgutschüttvolumen}}{\text{Mühlenvolumen}}$$

Die kritische Drehzahl N_{Kr} , bezogen auf den größten Laufkreisdurchmesser der Mahlkugeln, gibt jene Drehzahl an, bei deren Überschreitung die äußere Kugelschicht an der Trommelwand anliegt. Ihre Bestimmungsgleichung wird abgeleitet aus dem Kräftegleichgewicht von Schwer- und Zentrifugalkraft in radialer Richtung:

$$K_r = m_K \cdot R \cdot \omega^2 - m_K \cdot g \cdot \cos \gamma$$

mit K_r : Resultierende aus Schwer- und Zentrifugalkraft in N

m_K : Mahlkugelmasse in g

R : größter Laufkreisdurchmesser in m

γ : in Bewegungsrichtung der Mahlkugeln gemessener Drehwinkel

g : Schwerebeschleunigung ($9,81 \text{ m/s}^2$)

ω : Winkelgeschwindigkeit in s^{-1}

Hieraus folgt für die kritische Drehzahl, bei der im höchsten Punkt der Bewegungsbahn der Mahlkugeln ($\gamma=0$) die Zentrifugalkraft betragsmäßig mindestens gleich der radialen Komponente der Schwerkraft sein muß ($K_r \geq 0$) mit $\omega_{Kr} = 2 \cdot \pi \cdot N_{Kr}$:

$$N_{Kr} = \frac{1}{2\pi} \cdot \sqrt{\frac{g}{R}} \quad [\text{s}^{-1}]$$

In folgenden Fotos sind durch die relativ lange Belichtungszeit (1/125 s) verschiedene Mahlkörperbewegungszustände zu erkennen.

Abb. 35 zeigt, daß bei niedrigen Drehzahlen und hohem Kugelfüllgrad ausschließlich eine rollende Bewegung der Mahlkörper erfolgt. Eine derartige Betriebsweise der Laborkugelmühle erwies sich für alle erprobten Mahlkörper als unwirksam.

Bei höheren Drehzahlen tritt zusätzlich zur Rollbewegung ein Mahlkörperfall auf, siehe Abb. 36. Die dadurch hervorgerufene Schlagbeanspruchung wurde in den experimentellen Untersuchungen

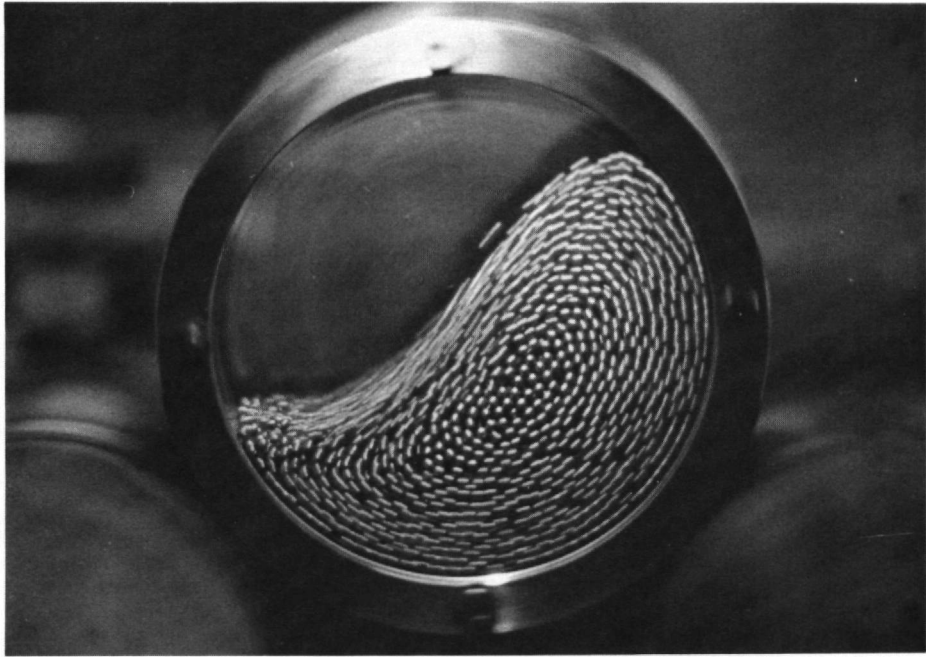


Abb. 35: Mahlkörperbewegung in der Kugelmühle
 $\epsilon_K = 0,5; \epsilon_M = 0; n = 0,5 N_{Kr}$

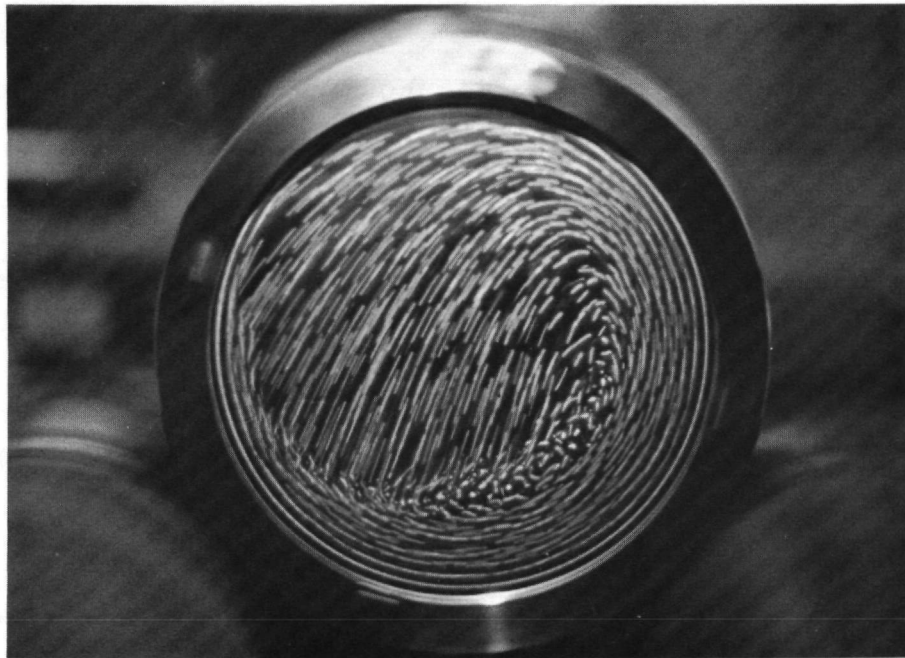


Abb. 36: Mahlkörperbewegung in der Kugelmühle
 $\epsilon_K = 0,5; \epsilon_M = 0; n = N_{Kr}$

gezielt vermindert, indem im Gegensatz zur herkömmlichen Betriebsweise ($\epsilon_K \sim 0,3; \epsilon_M \sim 0,15$) von Kugelmühlen, bei der das Mahlgut maximal das Lückenvolumen der losen Kugelschüttung ein-

nimmt [40], in den meisten Fällen erheblich mehr Mahlgut in die Mühle eingefüllt wurde. Die so entstandene Pufferschüttung des Mahlgutes in der Aufschlagszone der Mahlkörper reduzierte die Schlagwirkung.

Da die Kugelmühle eigentlich nur ein Behälter ist, in dem Mahlkörper und Mahlgut umgewälzt werden, stellt sie deshalb eine relativ energieverwendende unwirksame Zerkleinerungsmethode dar [50]. Ihr alleiniger Einsatz zur Brennelement-Kugelzerkleinerung erscheint wegen der großen zu bearbeitenden Mengen unmöglich. Zusätzlich müßten in diesem hypothetischen Fall für das Zustandekommen eines Mahleffektes die Mahlkugeln eine zum Primärbruch der Brennelement-Kugeln entsprechend hohe Energie besitzen, der seinerseits nur durch eine dominierende Schlagbeanspruchung erzielt werden könnte. Diesbezüglich zerkleinert aber eine Hammermühle effektiver.

3.1.4.2 Experimentelle Untersuchungen und Ergebnisse

Ziel der durchgeführten Experimente war, die Beurteilung der Tauglichkeit einer Kugelmühle als Sekundärzerkleinerungsverfahren einer Grobfraction eines primären Zerkleinerungsgutes zu ermöglichen. Dazu mußten Art und Größe der Mahlkugeln dem Aufgabegut angepaßt und optimale Betriebsbedingungen gefunden werden.

Der zylindrische Mahlbehälter aus Stahl besitzt bei einem Innendurchmesser von 90 mm und einer Länge von 157 mm ein Fassungsvermögen von 1 l. Seine Stirnwände bestehen aus abschraubbaren Plexiglasscheiben. Um ein unnötiges Rückrutschen der Behälterfüllung zu verhindern, wurde bei den ersten Versuchen die Innenmantelfläche mit Siebdraht verschiedener Maschenweite ausgekleidet. Im allgemeinen befanden sich zwischen Innenwand und Siebmaschendraht vier Distanzringe mit einem Innendurchmesser von 82 mm, so daß ein Raum entstand, in dem Mahlgut einer maximalen Korngröße vom eigentlichen Mahlraum abgeseibt wurde.

Der Antrieb des auf einem Rollenbock liegenden Mahlbehälters erfolgt über ein stufenlos regelbares Verstellgetriebe.

In Abb. 37 sind die mittleren Massen m_K eines Mahlkörpers, deren spezifische Dichte ρ_K und Schüttdichte ρ_{SK} und die Porosität ϵ für verschiedene Mahlkörperfüllungen eingetragen. Die Porosität ist definiert als das Hohlraumvolumen dividiert durch das gesamte Volumen einer Schüttung. Zusätzlich enthält Abb. 37 für jede Mahlkugelart Angaben über die kritische Drehzahl und die kritische Geschwindigkeit (bezogen auf $R = 45$ mm).

Mahlkugelart			1	2	3	4
Material			Steatit	Blei-Leg.	Stahl	Stahl
Durchmesser	d_K	mm	10	2	10	15
mittlere Masse eines Mahlkörpers	m_K	g	2,00	0,0398	4,05	13,76
spez. Dichte	ρ_K	g/cm ³	3,82	9,50	7,74	7,79
Schüttdichte	ρ_{SK}	g/cm ³	2,28	4,98	4,63	4,67
Porosität	ϵ		0,40	0,42	0,40	0,40
kritische Drehzahl	N_{Kr}	min ⁻¹	149,6	142,6	149,6	154,5
kritische Umfangsgeschwindigkeit	v_{Kr}	cm/s	70,5	67,2	70,5	72,8

Abb. 37: Daten verschiedener Mahlkugelarten

Die Vorauswahl der Mahlkugelart erfolgte unter dem Gesichtspunkt, daß ihre maximale kinetische Energie nicht die Energie überschreiten darf, die zur Zerstörung der SiC-Hüllschicht der Partikeln notwendig ist. Diese Minimalenergie beträgt für bestrahlte UO₂-TRISO-Partikeln mit abgebrannter äußerer PyC-Schicht bei der Prallzerkleinerung ca. $3,6 \cdot 10^{-3}$ J [24].

Lediglich Mahlkugelart 4 könnte unter optimalen Bedingungen diesen Wert erreichen. (Wegen des auftretenden Schlupfes zwischen Behälterinnenwand und Mahlkörpern erreichen diese nie die Umfangsgeschwindigkeit der Innenwand.)

Als Aufgabegut diente Grobgut eines mit einer Spezialfräse zerkleinerten FEED-BREED-Blockbrennelementes [51], dessen Schüttdichte bei einer mittleren arithmetischen Korngröße $d_{ma} \approx 2036$ μ m ca. $1,2$ g/cm³ betrug.

In Abb. 38 sind Versuchsparameter und Ergebnisse einiger repräsentativer Mahlversuche angegeben. Um die Vielfalt der möglichen

lfd. Nr.	Versuchsparameter					Versuchsergebnisse			
	Mahlkugelart nach Abb. 37	Kugelfüllgrad ϵ_K	Mahlgutfüllgrad ϵ_M	Maschenweite des Siebdrahtes [mm]	mit/ohne Distanzringe	mittl. arith. Korngröße d_{ma} [μm]	Zerkleinerungsverhältnis k	Graphit [%]	Feingutaustrag Verbrennungsrückstand [%]
1	1	0,2	0,2	2	m	1580	1,29	3,52	0,28
2	2	0,2	0,2	2	m	1798	1,13	2,01	0,34
3	3	0,2	0,2	2	m	1472	1,38	7,77	0,15
4	4	0,2	0,2	2	m	1151	1,77	12,40	0,18
5	4	0,2	0,2	2	o	682	2,99	45,30	3,62
6	4	0,3	0,1	1	m	1081	1,88	24,60	1,30
7	4	0,3	0,1	1	o	638	3,19	52,50	7,60
8	4	0,1	0,1	1	m	1277	1,59	17,49	0,24
9	4	0,1	0,2	1	m	1292	1,58	11,96	0,13
10	4	0,1	0,3	1	m	1583	1,29	8,71	0,11
11	4	0,1	0,4	1	m	1683	1,21	7,13	0,06
12	4	0,2	0,1	1	m	1342	1,52	18,50	0,49
13	4	0,2	0,2	1	m	943	2,16	19,07	0,14
14	4	0,2	0,3	1	m	1211	1,68	15,11	0,13
15	4	0,2	0,4	1	m	1134	1,80	18,86	0,16
16	4	0,3	0,1	1	m	1115	1,83	26,95	0,99
17	4	0,3	0,2	1	m	1100	1,85	22,50	0,45
18	4	0,3	0,3	1	m	1271	1,60	18,20	0,28
19	4	0,3	0,4	1	m	989	2,06	25,61	0,29

Abb. 38: Versuchsparameter und Ergebnisse der Mahlversuche mit der Kugelmühle

Einflußgrößen einzuschränken, wurde das Versuchsprogramm reduziert, indem stets eine Trommeldrehzahl von 145 min^{-1} und eine Versuchsdauer von 2 Stunden beibehalten wurde.

Um Ergebnisse über eine mögliche Graphitabtrennung zu gewinnen, wurde nach der Siebanalyse das Mahlgut im Zick-Zack-Windsichter (siehe Kapitel 3.2.2) bei $10 \text{ Nm}^3/\text{h}$ Anströmgeschwindigkeit gesichtet und anschließend verascht.

Wegen den geringen unverbrennbaren Bestandteilen im Feingut des Sichters und um den experimentellen Aufwand in Grenzen zu halten, wurde auf eine quantitative U/Th-Analyse verzichtet. Vergleichsweise stellen diese Veraschungsrückstände dennoch ein Maß für die Partikelbeanspruchung und den zu erwartenden Schwermetallverlust dar.

Wie aus den Versuchen 1 - 4 erkennbar, sind bei gegebenen Parametern die masseärmeren Mahlkugelarten nicht in der Lage, einen entscheidenden Zerkleinerungsbeitrag zu erzielen. Aufgrund ihrer niedrigen Bewegungsenergie findet eine selektive Zerkleinerung der besonders kleinen Graphitkörner statt, die bei der sortierenden Windsichtung sowieso erfaßt würden, während die Brennstoffpartikeln und Aufgabekörner $> 2000 \mu\text{m}$ kaum zerkleinert werden. Selbst bei Kugelart 4 tritt dieser Verfestigungseffekt bei größeren Körnern auf. Wegen dem damit verbundenen zunehmenden Partikelbruch und dem kinematisch ungünstigen Mahlraum-/Mahlkugeldurchmesser-Verhältnis wurde auf eine Erprobung größerer bzw. massereicherer Mahlkugeln verzichtet.

Aus den hohen Werten für die Verbrennungsrückstände der Versuche 5 - 7 ist zu schließen, daß bei Einsatz der Kugelart 4 auch Brennstoffpartikeln beschädigt werden. Vor allem erweisen sich die Distanzringe als sehr wirkungsvoll (vergleiche Versuche 4 mit 5 und 6 mit 7). Ohne Klassierbetrieb ergibt sich ein hoher abtrennbarer Feinanteil, jedoch sind die Partikeln über die gesamte Versuchszeit der Mahlkörperbeanspruchung ausgesetzt; durch die Distanzringe wird der Feinanteil geringer und es bildet sich ein intensiveres Maximum der Korngrößenverteilungsdichte aus.

Die Siebung des Mahlgutes während des Mahlens verhindert unnötige Partikelbeanspruchung und verringert den Schwermetallverlust.

Eine Verkleinerung der Maschenweite des Siebdrahtes wirkt sich tendenziell wie ein Betrieb ohne Siebklassierung aus, vergleiche Versuch 4 und 5 mit 6 und 7.

Der Einfluß des Kugelfüllgrades und Mahlgutfüllgrades ist den Versuchen 8 - 19 zu entnehmen.

Da mit steigendem Mahlgutfüllgrad bei gleichbleibendem Kugelfüllgrad weniger Zerkleinerungsenergie pro Mahlgutmaseinheit angeboten wird, sinkt das Zerkleinerungsverhältnis und die auf das Chargeninventar bezogene Feingutmenge. Andererseits wird dadurch die Wahrscheinlichkeit für die Mahlkugeln erhöht, Energie an Mahlgutteilchen abzugeben. Wegen verminderter Mahlkugel-Mahlkugel-Reaktion resultiert daraus eine effektivere Zerkleinerung.

Für $\epsilon_K = 0,1$ dominiert eindeutig die erstbeschriebene Abhängigkeit, denn auf die Mahlkugelfüllung bezogen ist das 1 - 4fache Mahlgutvolumen eingefüllt. Für $\epsilon_K = 0,2$ und $0,3$ existiert wegen dem gegenläufigen Effekt ein Maximum bei jeweils $\epsilon_M = 0,4$. Eine weitere Mahlgutbeladung würde die Bewegungsfreiheit der Mahlkugeln einschränken und ihre Zerkleinerungswirkung aufheben.

Die Verbrennungsrückstandsmassen fallen generell mit steigendem Mahlgutfüllgrad ab, was auf den "Puffereffekt" des Mahlgutes in der Aufschlagszone der Mahlkugeln zurückzuführen ist.

Zusammenfassend werden die Versuchsergebnisse folgendermaßen interpretiert: Der Einsatz einer Kugelmühle ist prinzipiell für eine schonende partielle Zerkleinerung einer vorzerkleinerten Mahlgutfraktion geeignet. Durch Optimierung der Betriebsparameter - besondere Beachtung verdient dabei die Klassierung während des Mahlvorganges und die hohe Mahlgutbeladung - und anschließende Windsichtung des Zerkleinerungsgutes gelingt es, ca. 25 % des eingesetzten Graphits abzutrennen. Die Schwermetallverluste dürften dabei 0,5 % nicht überschreiten.

3.1.4.3 Durchsatzsteigerung und Dimensionierung

Die Projektion dieser Laborversuche auf einen realistischen Brennelementdurchsatz ist nicht unproblematisch.

Vor allem muß dabei der Forderung nach einer kritisch sicheren Anordnung Rechnung getragen werden, bei der jedoch der Störfall Wassereinbruch ausgeschlossen werden kann. Mühlen mit 100 cm Durchmesser sollten dieser Forderung genügen [33,52].

Bei einer Mahlanlage mit einer Kapazität von ca. 500 geschälten Brennelementen pro Stunde, bestehend aus einem Backenbrecher, einer Taumelsiebmaschine und einer Kugelmühle, in der die abgeseibte Grobfraktion $> 1000 \mu\text{m}$ des Backenbrechergutes weitergemahlen wird, ergeben sich in Abhängigkeit vom Zerkleinerungsgrad des Backenbrechers ($s_1 < s_2 < s_3$) die in Abb. 39 aufgeführten Abmessungen der Kugelmühle ($D/L = 0,5$; $\epsilon_M = 0,4$). In der letzten Spalte sind die durch die Kugelmühle erzielbaren absoluten Graphitabtrennraten G bezüglich des gesamten Prozesses angegeben (Ergebnisse des Versuchs 19 zugrundegelegt).

Backenbrecher- spaltweite nach Abb. 32	Mahlgutinventar bei 2 h Chargen- betrieb [kg]	Mühlenabmessungen			Graphitab- trennraten G [%]
		D [cm]	L [cm]	V [l]	
s_1	43	38,6	77,1	90	4,9
s_2	73	45,9	91,8	152	8,4
s_3	85	48,2	96,4	176	9,7

Abb. 39: Abmessungen der Kugelmühle als Sekundärzerkleinerungsstufe eines Backenbrechergrobgutes $> 1000 \mu\text{m}$ (500 BE/h)

Wegen des beobachteten Verfestigungseffektes bei großen Aufgabeteilchen muß zusätzlich zu der schon problematischen Absiebung ein weiterer Austragsmechanismus vorgesehen werden, wenn ein umständlicher Chargenbetrieb vermieden werden soll. Desweiteren treten bei größeren Mühlendurchmessern und Kugelfüllgraden $> 0,3$ nicht zu vernachlässigende Flächenpressungen durch die Mahlkörperfüllung auf, deren Auswirkungen im Laborexperiment nicht untersucht werden konnten.

Der Einsatz einer Kugelmühle ist durch eine Menge noch zu lösender verfahrenstechnischer Probleme gekennzeichnet. Sie ermöglicht zwar eine partikelschonende Zerkleinerung, aber nur eine sehr be-

grenzte Möglichkeit der Graphitabtrennung. Nach gegenwärtigem Erkenntnisstand wird der Kugelmühle keine allzu gute Chance eingeräumt.

3.2 Die Klassierung und Sortierung von zerkleinerten geschälten HTR-Brennelement-Kugeln

Bezüglich einer Auftrennung von zerkleinerten geschälten HTR-Brennelement-Kugeln in verschiedene Fraktionen existieren bei vorliegender Aufgabenstellung zwei verschiedenartige Aufgabenstellungen.

Zum einen kann beim Mahlprozeß die Möglichkeit geboten werden, ein bestimmtes Überkorn nochmals dem Zerkleinerungsprozeß zuzuführen, um ein engeres Korngrößenspektrum des Mahlgutes zu erhalten (z. B. integrierte Siebeinsätze bei der Hammermühle, Kugelmühle und UNIFRAME). Kennzeichnend ist dabei die Trennung des Kollektives in Korngrößengebiete (Klassierung).

Zum anderen muß schließlich eine Stofftrennung des Graphits und der schwermetallangereicherten Wertgutfraktion erfolgen (Sortierung).

Wegen der Forderung nach einem trocken-mechanischen Gesamtprozeß verbleiben von den gängigen Trennmethoden für feste Stoffe lediglich das Sieben und das Windsichten, auf die im folgenden speziell unter Berücksichtigung vorliegender Einsatzbedingungen eingegangen wird.

Kennwerte zur Charakterisierung von Trennverfahren:

Jede Trennung wird durch die Trennkurve $T(d)$ vollständig beschrieben. Diese gibt für jede Korngröße denjenigen Anteil des Aufgabegutes an, der bei der Trennung in das Grobgut gelangt ($0 \leq T(d) \leq 1$).

Die Trenngrenze d_{50} als Lageparameter der Trennkurve entspricht derjenigen Korngröße, die bei der Trennung jeweils zur Hälfte in die grobe und die feine Fraktion gelangt ($T(d_{50}) = 0,5$).

Die Trennschärfe $\kappa_{25/75}$ charakterisiert die Steilheit der Trennkurve in ihrem mittleren Bereich:

$$\kappa_{25/75} = \frac{d_{25}}{d_{75}} \leq 1$$

Je mehr $\kappa_{25/75}$ sich dem Wert 1 nähert, desto schärfer ist die Trennung. (Es sei hier auf den ebenfalls gebräuchlichen Kehrwert $\kappa_{75/25}$ dieser Definition verwiesen, der demzufolge stets ≥ 1 ist.)

3.2.1 Die Klassiermöglichkeit mit einer Taumelsiebmaschine und deren Erprobung

Das Überkorn eines Mahlprodukts, z. B. bestehend aus einigen Partikeln mit anhaftendem Matrixgraphit, sedimentiert im abschließendem Sichtprozeß im Grobgut (siehe 3.2.2). Dieser Graphit ist für die Abtrennung verloren. Deswegen sollte der Graphit-Schwermetall-Sortierung ein enges Korngrößenspektrum zugeführt werden.

Der Backenbrecher ergibt in Kombination mit einer Siebmaschine eine sinnvolle Anordnung zur Erzeugung eines trennscharfen Mahlgutes.

An die Siebklassierung werden neben der Heiß-Zellen-Tauglichkeit zusätzliche Anforderungen gestellt. Neben einem hohen Siebgütegrad (charakterisiert durch das Fehlkorn im Grobgut) wird gleichzeitig ein möglichst hoher kontinuierlicher Durchsatz bzw. eine hohe Siebleistung verlangt. Einzelne Brennstoffpartikeln sollen nicht nochmals dem Zerkleinerungsprozeß zugeführt werden. Da mit länger werdender Verweilzeit der Körner auf dem Siebboden der Siebgütegrad zu- und die Siebleistung abnimmt, widersprechen sich diese beiden Forderungen. Desweiteren darf keine Verstopfung der Sieböffnungen durch Körner mit Trennkorngröße auftreten. Siebhilfen müssen sich durch hohe Standzeiten auszeichnen. Als am wirksamsten haben sich walzenförmige Bürsten erwiesen, die an Dreharmen geführt von unten am Sieb abrollen und deren in die Sieböffnung eindringenden Borsten die Siebfläche freihalten [53].

Feste Siebe bzw. Roste genügen diesen Forderungen nicht (Ausnahme: Siebeinsatz der Hammermühle). Beim hochentwickelten UNIFRAME-Zerkleinerungssystem mußte bei den JFPD-Preliminary-Tests das vorhandene Sieb zu bestimmten Zeiten von Hand gereinigt werden [29].

Die Bewegungskinetik kommerzieller Wurf- und Plansiebe, bei denen der Antrieb mit zur Resonanzmasse gehört, kann wegen Frequenzüberlagerung der federnden Lagerung mit der Antriebsdrehzahl empfindlich durch das Produktgewicht gestört werden [47].

Die erprobte Taumelsiebmaschine (TSM), vom Typ ATS 600 der Fa. Allgaier, arbeitet im niederfrequenten Bereich und führt durch einen festmontierten Antrieb eine zwangsgesteuerte Bewegung aus, wobei sich der Planbewegung in horizontaler Achse eine Vertikalbewegung der Siebdecks überlagert, deren Amplitude (Taumelhub) in radialer Richtung zunimmt. Das Siebgut wird zentral aufgegeben, wo es sich aufgrund der dort dominierenden Planbewegung schichtet und die wesentlichen kleineren Materialkörner sofort durch die Siebmaschen treten. Das restliche Korn bewegt sich spiralförmig in den Außenbereich der kreisförmigen Siebfläche bis es schließlich, von einer Führungsspirale geleitet, das Siebdeck durch eine Austrittsöffnung radial verläßt. Wegen steigendem Flächenzuwachs, abnehmendem Feingutanteil und verstärktem Wurfsiebeffekt wird mit fortschreitender Aufenthaltszeit die Siebung intensiver [54-56].

Die zwangsgesteuerte Bewegung der Siebdecks wird konstruktiv durch die ETR-Verstellungsbaugruppe erzielt. Mit ihr lassen sich der Exzenterradius, die Tangential- und die Radialneigung des Hauptzapfens und somit der Siebdecks einstellen [57]. Dabei gehört zu jeder Drehzahl der Hauptwelle ein optimaler Exzenterradius. Tangential- und Radialneigung bestimmen über die Größe des Taumelhubes, Siebgüte und Durchsatzleistung der Maschine.

Als Versuchsgut standen ca. 40 kg eines mit einer Spezialfräse [51] zerkleinerten FEED-BREED-Blockbrennelementes zur Verfügung. Die Dosierung der Taumelsiebmaschine erfolgte über eine Vibrationsrinne, deren Eichkurve bezüglich des vorhandenen Zerkleinerungsgutes in etwa den beiden in Abb. 40 entnehmbaren Materialdosierungsgleichungen gehorcht.

Insgesamt können also bei dieser Siebmaschine fünf Betriebsparameter verändert werden.

In Abb. 42 sind Betriebsparameter und Ergebnisse einer orientierenden Versuchsreihe aufgeführt, bei der die Taumelsiebmaschine im 2-Deckbetrieb drei Siebfraktionen erstellte. Untersucht wurde die

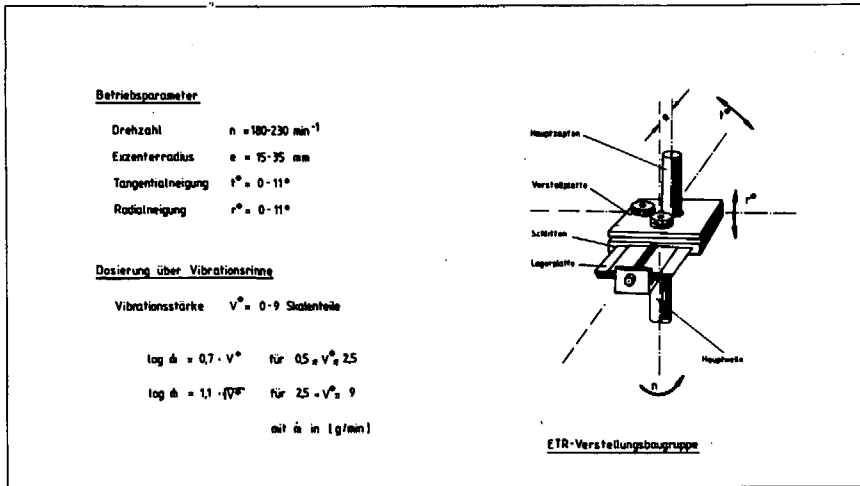


Abb. 40: Betriebsparameter und ETR-Verstellungsbaugruppe der Taumelsiebmaschine und Materialdosierungsgleichungen der Vibrationsrinne

Siebdeckdurchmesser	0,6 m
Siebfläche	0,284/0,568 m ²
Anzahl der Siebdecks	2
Siebhilfe	Bürstenreinigung
Antriebsleistung	0,24 kW
Gewicht	150 kg
Platzbedarf	0,36 m ²

Abb. 41: Technische Daten der Taumelsiebmaschine, Typ ATS 600 der Firma Allgaier [57]

Einsatzmöglichkeit eines 200 μm und 800 μm Siebdecks. Um eine Beeinflussung des jeweiligen Ergebnisses durch den vorherigen Versuch auszuschließen, erfolgte vor jeder 5 min-Versuchssiebung eine 15 min-Dauersiebung mit denselben Parametern. Kritisch wird hier auf die große Streuung der insgesamt abgeseibten Massen bei gleicher Vibrationsstärke der Dosierrinne hingewiesen. Vermut-

lfd. Nr.	Betriebsparameter					Versuchsergebnisse				
	Exzenter- radius e	Tangential- neigung t*	Radial- neigung r*	Vibrations- stärke v*	Grobfraktion >800 µm	Mittelfraktion 800 µm > d > 200 µm	Feinfrakt. <200 µm	ḡ _{ges}		
	mm	grd	grd	Sk.teile	ḡ g/min	Fehl- korn %	ḡ g/min	Fehl- korn %	ḡ g/min	ḡ g/min
1	25	2	2	5	338	10,5	117	0,7	48	503
2	20	2	2	5	221	10,1	80	0,6	33	334
3	30	2	2	5	89	12,2	19	1,0	16	124
4	25	2	2	5	94	13,2	24	1,3	5	123
5	25	2	2	5	82	12,9	11	0,7	18	111
6	25	5	2	5	332	13,4	76	1,4	26	434
7	25	8	2	5	335	14,1	61	5,0	46	422
8	25	2	5	5	104	11,5	29	1,3	16	149
9	25	2	8	5	321	7,7	87	0,3	25	433
10	25	2	2	6	530	11,4	140	0,3	42	712
11	25	2	2	7	673	9,3	233	0,7	117	1023
12	25	2	8	6	378	8,4	98	0,9	66	542
13	25	2	8	7	604	7,4	222	0,3	119	945

Abb. 42: Betriebsparameter und Ergebnisse der Siebversuche mit der Taumelsiebmaschine

liche Ursache dafür ist die Brückenbildung des Zerkleinerungsgutes im trichterförmigen Materialbunker der Dosiervorrichtung.

Die Fehlkornanteilbestimmung der beiden größeren Fraktionen als Maß für die Trennschärfe (Siebgüte) erfolgte durch eine 10 min-Kontrollsiebung mit einer Siebanalysenmaschine.

Erstaunlicherweise zeichneten sich die letzten Versuche bei relativ hoher Durchsatzleistung durch eine günstige Siebgüte aus. Erwartungsgemäß ergab sich für die mittlere Siebfraction ein wesentlich geringerer Fehlkornanteil als für die Grobfraction, da durch das 200 µm-Sieb lediglich 10 % der Aufgabemenge durchzutreten hatte. Die Massenverhältnisse des Aufgabegutes verhielten sich wie:

$$m_{d>800 \mu\text{m}} / m_{800 \mu\text{m} \geq d \geq 200 \mu\text{m}} / m_{d \leq 200 \mu\text{m}} = 6 / 3 / 1$$

Wegen der geringen Aussagekraft der in Abb. 42 dokumentierten Versuchsserie wurde abschließend ein 1 h-Dauerbetrieb der Taumelsiebmaschine untersucht. Insgesamt ca. 42 kg des Versuchsgutes wurden unter Bedingungen wie die des Versuches 13 der Abb. 42 kontinuierlich gesiebt. Die benötigte Siebdauer betrug ca. 54 Minuten und die Massen der drei Siebfractionen verhielten sich dabei wie:

$$m_{d>800 \mu\text{m}} / m_{800 \mu\text{m} \geq d \geq 200 \mu\text{m}} / m_{d \leq 200 \mu\text{m}} = 6,75 / 2,13 / 1,12$$

Nach der experimentell beschränkten Erprobung bestätigte eine visuelle Betrachtung der Siebdecks nach vorherigem 30 min-Leerlaufbetrieb die Wirksamkeit der Bürstreinigung, in deren Wirkungsbereich kaum Körner die Siebmaschen besetzten. Die Standzeiten der Siebeinsätze und der Bürstreinigung liegen nach Erfahrungen des Herstellers bei graphitartigem Siebgut bei mindestens sechs Monaten, in der Regel bei über einem Jahr. Die Taumelsiebmaschine selbst ist verschleißarm. Es kann mit einer Lebensdauer von ca. 20 Jahren gerechnet werden [58].

Nach eigenem Erkenntnisstand - gewonnen durch Kurzzeitversuche - und nach Angaben des Herstellers über die vorliegenden Erfahrungen bei kohleartigem Siebgut erscheint ein Heiß-Zellen-Betrieb des nächstgrößeren Bautyps (ATS 900) geeignet, das Überkorn

eines Backenbrecherzerkleinerungsgutes abzusieben. Unter Voraussetzung von Proportionalität zwischen Siebfläche und Siebleistung muß bei einer Siebleistung von 115 kg/h ($\hat{=}$ 950 geschälten Brennelementen pro Stunde) mit einem Fehlkornanteil um 10 % gerechnet werden.

3.2.2 Die Sortiermöglichkeit mit einem Zick-Zack-Windsichter

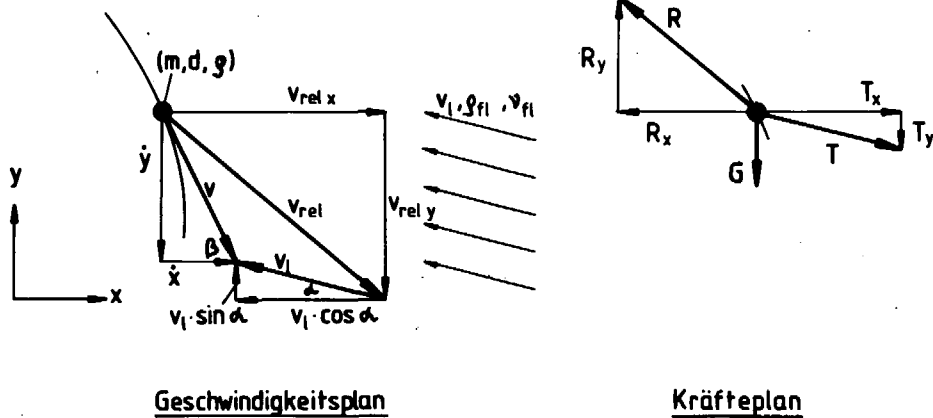
Technologisches Ziel der Windsichtung ist die Stofftrennung der zerkleinerten geschälten Brennelement-Kugeln in eine möglichst schwermetallfreie Graphitfraktion und eine entsprechend angereicherte Wertgutfraktion.

3.2.2.1 Die Theorie der Windsichtung

Hierunter wird die Berechnung der Teilchenbewegung im Sichtraum verstanden. Die Bewegungsgleichung eines kugelförmigen Teilchens im Strömungsfeld einer ebenen parallelen Strömung, z. B. in Luft, ist in Abb. 43 abgeleitet. Es gelten folgende Voraussetzungen:

- In Windsichtern, d. h. bei gasförmigen Strömungsmedien, ist die der Schwerkraft entgegengerichtete Auftriebskraft wegen $\rho_{\text{Teilchen}} \gg \rho_{\text{Strömungsmedium}}$ vernachlässigbar.
- Die Teilchenkonzentration ist gering, so daß diese sich gegenseitig nicht beeinflussen.
- Die Teilchen besitzen Kugelform. Es kommen die dafür gültigen Widerstandsgesetze zur Anwendung.

Die Bewegungsgleichung entspricht einem System von gekoppelten Differentialgleichungen 2. Ordnung, welches z. B. mit elektronischen Analogrechnern elegant gelöst werden kann [59]. Die numerische Lösung ist mit Hilfe des RUNGE-KUTTA-NYSTRÖM-Verfahrens [60] und einem programmierbaren Taschenrechner relativ leicht durchzuführen.



Kräftegleichgewicht:

$$m\ddot{x} - R_x = 0$$

$$-m\ddot{y} + R_y - mg = 0$$

Strömungskraft:

$$R = c_w \cdot \frac{\rho_{fl}}{2} \cdot v_{rel}^2 \cdot \frac{\pi \cdot d^2}{4}$$

$$R_x = - \frac{v_{rel x}}{v_{rel}} R$$

$$R_y = - \frac{v_{rel y}}{v_{rel}} R$$

Bewegungsgleichung:

$$\ddot{x} = -c_w (Re) \cdot v_{rel} \cdot v_{rel x} \cdot \frac{3}{4} \cdot \frac{\rho_{fl}}{s} \cdot \frac{1}{d}$$

$$\ddot{y} = -c_w (Re) \cdot v_{rel} \cdot v_{rel y} \cdot \frac{3}{4} \cdot \frac{\rho_{fl}}{s} \cdot \frac{1}{d} - g$$

mit

$$v_{rel x} = \dot{x} - v_1 \cdot \cos \alpha$$

$$v_{rel y} = \dot{y} - v_1 \cdot \sin \alpha$$

$$v_{rel}^2 = v_{rel x}^2 + v_{rel y}^2$$

Widerstandsbeiwert:

$$c_w = \frac{24}{Re} (1 + 0,15 Re^{0,687}) \quad \text{für } Re < 990$$

$$= 0,44 \quad \text{für } Re \geq 990$$

Reynoldszahl:

$$Re = \frac{v_{rel} d}{\nu_{fl}}$$

Anfangsbedingung:

$$x = y = 0 ; \dot{x} = v_0 \cdot \cos \beta_0 ; \dot{y} = v_0 \cdot \sin \beta_0$$

Luftwerte:

$$\rho_{fl} = 1,205 \cdot 10^{-3} \text{ g/cm}^3 \quad (20^\circ\text{C} ; 1,0133 \text{ bar})$$

$$\nu_{fl} = 0,15 \text{ cm}^2/\text{s}$$

Abb. 43: Bewegungsgleichung eines kugelförmigen Teilchens in einer ebenen Parallelströmung

Abb. 44 zeigt derart berechnete Bahnkurven für Mischoxid-Kerne, Mischoxid-Partikeln und für eine Schar von Graphitteilchen ($\rho_{\text{Graphit}} = 1,7 \text{ g/cm}^3$). Luft strömt mit der Geschwindigkeit v_1 unter dem Winkel α zur Horizontalen in einen ebenen Sichtraum. In dieses Strömungsfeld treten alle Teilchen an einem festen Punkt am oberen Rand der Strömung mit gleicher Anfangsgeschwindigkeit v_0 unter dem Winkel β_0 zur Horizontalen ein. Im Gegenstromumlensichter ist dieser Mechanismus realisiert.

Unter den gemachten Voraussetzungen und Anfangsbedingungen ergibt sich eine deutliche Anordnung der Graphitteilchen nach der Korngröße. Strömungsmäßig verhalten sich Mischoxid-Partikeln und Graphitteilchen mit einem Durchmesser von ca. $1450 \mu\text{m}$ ähnlich. Rein rechnerisch besteht die Möglichkeit, alle kleineren Graphitteilchen abzutrennen.

Die Betrachtung der jeweiligen Endfallgeschwindigkeiten liefert ein weiteres Kriterium für die Trennbarkeit eines Körnerkollektives. Je größer die Differenz der Endfallgeschwindigkeiten zweier Teilchen, desto schärfer vermag deren Trennung zu sein.

Das erstellte Rechenprogramm berechnet für $v_1 = v_0 = 0$ die Koordinaten für den freien Fall eines Teilchens, aus denen nach der Beschleunigungszeit die Endfallgeschwindigkeit folgt.

Die durchgezogene Kurve der Abb. 45 zeigt diese Werte für Graphitteilchen in Abhängigkeit von deren Korngröße. Für die durchschnittlichen Daten der TRISO-Partikeln wurden jeweils drei Rechnungen durchgeführt (Kern; bis auf die SiC-Schicht abgebrannte Partikeln; Partikeln mit äußerer PyC-Schicht); für BISO-Partikeln lediglich zwei.

Zwischen Partikeln mit und ohne äußerer PyC-Schicht besteht kaum ein Unterschied in ihrem Strömungsverhalten. Beim Windsichten von FEED-BREED-Zerkleinerungsgut muß schon bei Anströmgeschwindigkeiten um 4 m/s mit FEED-Partikel-Verlust gerechnet werden.

Eine weiterführende deterministische Behandlung der Graphitabtrennung erschien nicht vorteilhaft. Da diese nur von unbeschädigten Partikeln und Kernen und homogenen Graphitteilchen ausgeht, bleiben Mischkörner und Kernbruchteilchen, die letztlich den Schwermetallverlust im abgetrennten Graphit hervor-

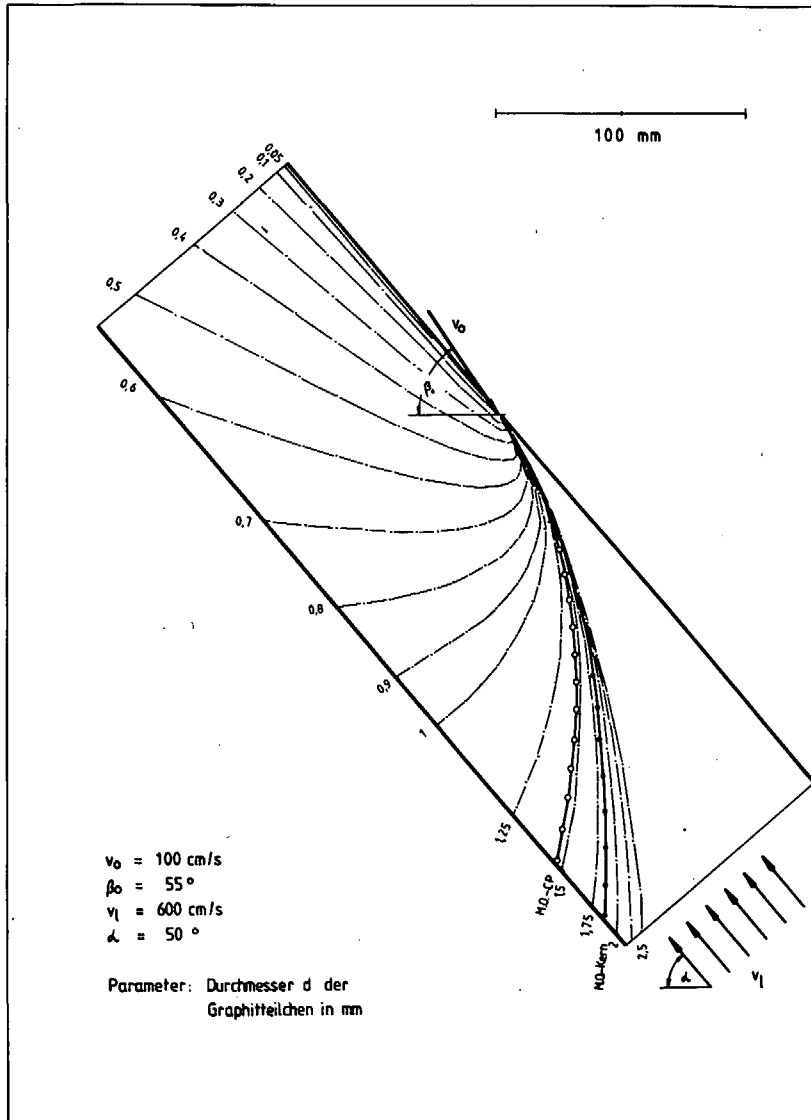


Abb. 44: Berechnete Bahnkurven für Mischoxid-Partikeln und Graphitteilchen bei der Gegenstromumlenksicherung

rufen, unberücksichtigt.

Aus der theoretischen Betrachtung der Windsichtung ergibt sich die wiederholte Forderung nach einem Zerkleinerungsvorgang, bei dem die Brennstoffpartikeln als obere Größenfraktion anfallen, während der Matrixgraphit eine diskrete homogene Feingutfraktion bildet und bei dem keine verwachsenen Mischkörner auftreten. In diesem Idealfall eignet sich bezüglich der Windsichtung jedes Sichtprinzip.

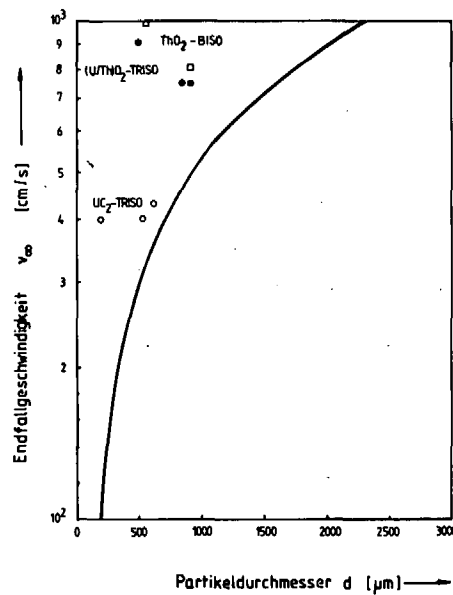


Abb. 45: Berechnete Endfallgeschwindigkeit von Partikeln und Graphitteilchen im Schwerkraftfeld

3.2.2.2 Der Zick-Zack-Windsichter

Der eingesetzte Zick-Zack-Windsichter (ZZ.-WS), Typ Multi-Plex-Labor Zick-Zack-Sichter MZM 1-40 der Firma Alpine, hat sich in zahlreichen Untersuchungen zur FEED-BREED-Partikeltrennung bewährt [61].

Die hohe Trennschärfe des Zick-Zack-Windsichters wird aufgrund der vielstufigen Sichtung und der Rückführung der Fehlkornmenge zu immer neuen Trennvorgängen erreicht [62]. Sie kann durch Erhöhung der Gliederzahl eingestellt werden, wobei folgende Faustregel gilt [63]:

$$\kappa_{25/75}^{-1} = \kappa_{75/25} \approx \kappa_{0; 75/25} \cdot \exp\left(\frac{2}{Z}\right)$$

mit $\kappa_{0; 75/25}$: Trennschärfenkennwert der Einzelsichtung
 Z : Gliederzahl

Die Qualität der Trennung im Laborbetrieb kann im Produktionsmaßstab ohne weiteres realisiert werden, jedoch ist die Aufgabemenge je Querschnittseinheit des Sichters für Großsichter teil-

weise erheblich niedriger [64]. Für die Dimensionierung eines Sichters gilt näherungsweise [62]:

$$\dot{Q} = F' \cdot \frac{v_1}{v_\infty} \cdot v_\infty \cdot \xi \quad [\text{kg/s}]$$

- mit F' : Sichtkanalquerschnitt in $\text{m}^2 = f$ (Baugröße)
 v_1 : mittlere Anströmgeschwindigkeit in m/s
 v_∞ : Endfallgeschwindigkeit des Trennkorns in m/s
 v_1/v_∞ : Geschwindigkeitskennzahl = f (Bauart)
 ξ : Feststoffbeladung der Sichtluft in kg/m^3

Setzt man die in Abb. 46 aufgelisteten, jeweils konservativen Kennwerte des Zick-Zack-Windsichters ein und ersetzt die Endfallgeschwindigkeit des Trennkorns durch die im Schichtkanalquerschnitt herrschende Sichtgeschwindigkeit, so ergibt sich eine Beziehung für den Massendurchsatz in Abhängigkeit vom Anströmvolumen im Sichter:

$$\dot{Q} = 2,08 \cdot 10^{-4} \cdot \dot{V} \quad [\text{kg/s}]$$

- mit \dot{V} : Anströmvolumen in Nm^3/h

Mit Hilfe dieser Gleichung kann für eine bestimmte Durchsatzmenge die notwendige Anzahl baugleicher Zick-Zack-Windsichter abgeschätzt werden, die z. B. bei nur geringem Platzbedarf parallel betrieben werden können [65].

Das Zerkleinerungsgut von 500 geschälten Brennelement-Kugeln besitzt eine Masse von ca. 60 kg, die bei einem Anströmvolumen von $10 \text{ Nm}^3/\text{h}$ in 8 Zick-Zack-Windsichtern beschriebenen Typs verarbeitet bzw. getrennt werden kann. Dementsprechend wurde in den labormäßig durchgeführten Graphitabtrennversuchen, auf deren Ergebnisse im folgenden eingegangen wird, eine Vibrationsstärke der Dosierrinne von $V^* = 4$ Skalenteilen eingestellt, was nach den Materialdosierungsgleichungen aus Abb. 40 einer Dosierung von ca. 10 kg/h entspricht.

Gliederzahl	Z	18
Trennbereich	v_1	1-10 m/s
	d	0,1-6 mm bei $\rho \approx 2,5 \text{ g/cm}^3$
Trennschärfe	κ 25/75	0,77 für Z=10 [66] 0,85 für Z=18 [61]
horizontaler Sichtkanalquerschnitt	F'	16 cm ²
Geschwindigkeitskennzahl	v_1/v_∞	1,5-2 [62]
Feststoffbeladung	ξ	0,02-0,05 bei Analysenbetrieb 0,5-1,5 bei Produktionsbetrieb
Dosierung		Vibrationsdosierrinne
Anströmvolumen	\dot{V}	$\dot{V}=5,76 \cdot v_1 \text{ [Nm}^3/\text{h]}$

Abb. 46: Technische Daten des Zick-Zack-Windsichters, Typ Multi-Plex-Labor Zick-Zack-Sichter MZM 1-40 der Firma Alpine

3.3 Konventionelle Verfahren zur trocken-mechanischen Graphitabtrennung

Durch Einsatz der vorgestellten Aufbereitungsmaschinen ergeben sich aufgrund der gewonnenen Erkenntnisse zwei sinnvoll erscheinende Kombinationen aus Zerkleinerungs- und Trennmaschinen. Durchgeführte Laborexperimente erlauben einen Vergleich der möglichen Graphitabtrennrates G und der dabei zu erwartenden Schwermetallverluste s_m , u bzw. t .

Jede aufgenommene Kurve resultiert aus der Verarbeitung von 6 Brennelementen. Durch verschiedene Zerkleinerungsgrade und Variation des Anströmvolumens im Zick-Zack-Windsichter wurden die verfahrenstechnisch relevanten Betriebsparameter erfaßt.

Für das Mischoxid-Brennelement erfolgte die Bestimmung des Schwermetallverlustes s_m mittels der BURN-LEACH-Methode durch Differenzwägung, siehe Abb. 26. Für das FEED-BREED-Brennelement wurden die gelösten U- bzw. Th-Bestandteile durch Titration bestimmt, was eine Differenzierung in Uranverlust u und Thoriumverlust t er-

mögliche.

3.3.1 _____ Verfahren I

Die verfahrenstechnisch einfachste Anordnung, die Kombination von Kugelschälfräse, Hammermühle und Zick-Zack-Windsichter ist dem vereinfachten Verfahrensfließbild der Abb. 47 zu entnehmen.

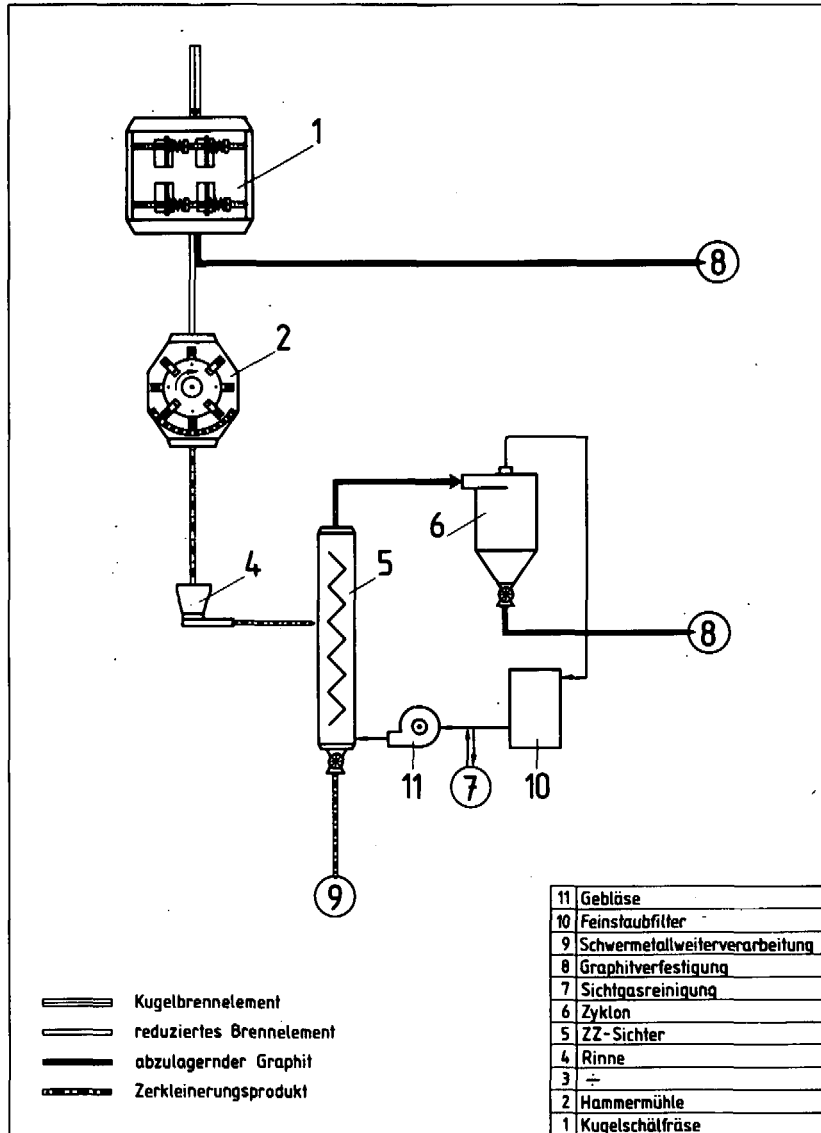


Abb. 47: Vereinfachtes Verfahrensfließbild I zur trockenmechanischen Graphitabtrennung

Analog zu Kapitel 3.1.2 wurde

- a. das 2,5 mm Querschlitzsieb,
- b. das 4 mm Querschlitzsieb

in die Hammermühle eingesetzt.

Abb. 48 und 49 stellen die zu erwartenden Graphitabtrennraten G mit den ermittelten Schwermetallverlusten sm , u und t in Abhängigkeit vom Siebeinsatz der Hammermühle und Anströmvolumen

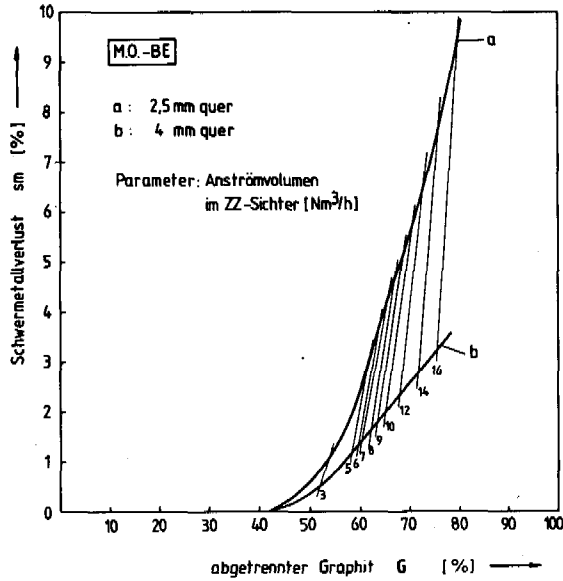


Abb. 48: Graphitabtrennrate und Schwermetallverlust für Mischoxid-Brennelemente

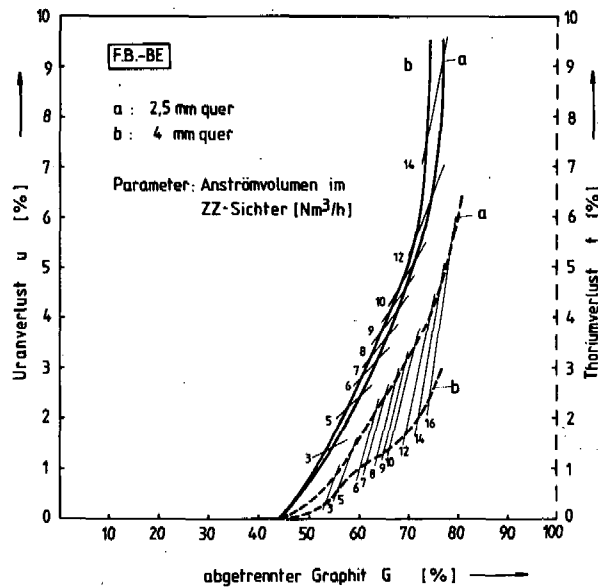


Abb. 49: Graphitabtrennrate und Uran- bzw. Thoriumverlust für FEED-BREED-Brennelemente

im Zick-Zack-Windsichter für beide Brennelementkonzepte dar. Wegen des primären Schälvorganges beginnen für $s_m = u = t = 0$ die Kurven nach Abb. 23 bei $G = 44,1 \%$ bzw. $G = 43,4 \%$.

Beim Mischoxid-Brennelement erweist sich der 4 mm Querschlitzzeinsatz als am günstigsten. Der Schwermetallverlust liegt für eine 70 %-ige Graphitabtrennung bei ca. 2,6 % im Vergleich zu ca. 5,5 % beim 2,5 mm Querschlitzsieb. Da die Steigung der Kurven ein Maß für die Schwermetallkontamination durch die Kernbruchanteile im abgetrennten Graphit darstellt, ermöglicht dieses Ergebnis die Feststellung, daß der Feinanteil der gebrochenen Brennstoffkerne mit kleiner werdender Schlitzbreite des Siebeinsatzes überproportional zunimmt.

Der Thoriumverlust bei FEED-BREED-Brennelementen verhält sich qualitativ wie der Schwermetallverlust bei Mischoxid-Brennelementen, jedoch liegen die absoluten Werte niedriger. Unbestrahlte ThO_2 -Kerne der BREED-Partikeln sind also gegenüber der Prallbeanspruchung in einer Hammermühle resistenter als die $(\text{U/Th})\text{O}_2$ -Kerne der Mischoxid-Partikeln.

Wie schon betont, sind für die FEED-Partikeln wegen geringerer Endfallgeschwindigkeit die größeren Verluste zu erwarten. Bei Anströmvolumina von $14 \text{ Nm}^3/\text{h}$ wurden bereits vollständige FEED-Partikeln im abgetrennten Graphit gefunden. Die Uranverluste unterscheiden sich für die verschiedenen Zerkleinerungsgrade kaum. So beträgt beim 4 mm Querschlitzsieb und bei 70 %-iger Graphitabtrennung, wozu ein Anströmvolumen von $12 \text{ Nm}^3/\text{h}$ benötigt wird, der Uranverlust ca. 5 % und der Thoriumverlust ca. 1,8 %. Für das 2,5 mm Querschlitzsieb ergibt sich analog ein Uranverlust von ca. 5,1 % und ein Thoriumverlust von ca. 3,2 %, doch braucht das Sichtgut nur mit $9 \text{ Nm}^3/\text{h}$ angeströmt zu werden.

3.3.2 Verfahren II

Dieses Verfahren II nach vereinfachtem Fließbild der Abb. 50 unterscheidet sich vom vorherigen durch den Einsatz von Backenbrecher zur Zerkleinerung der geschälten Brennelemente und Taumelsiebmaschine zur Erstellung einer erneut zu zerkleinernden Über-

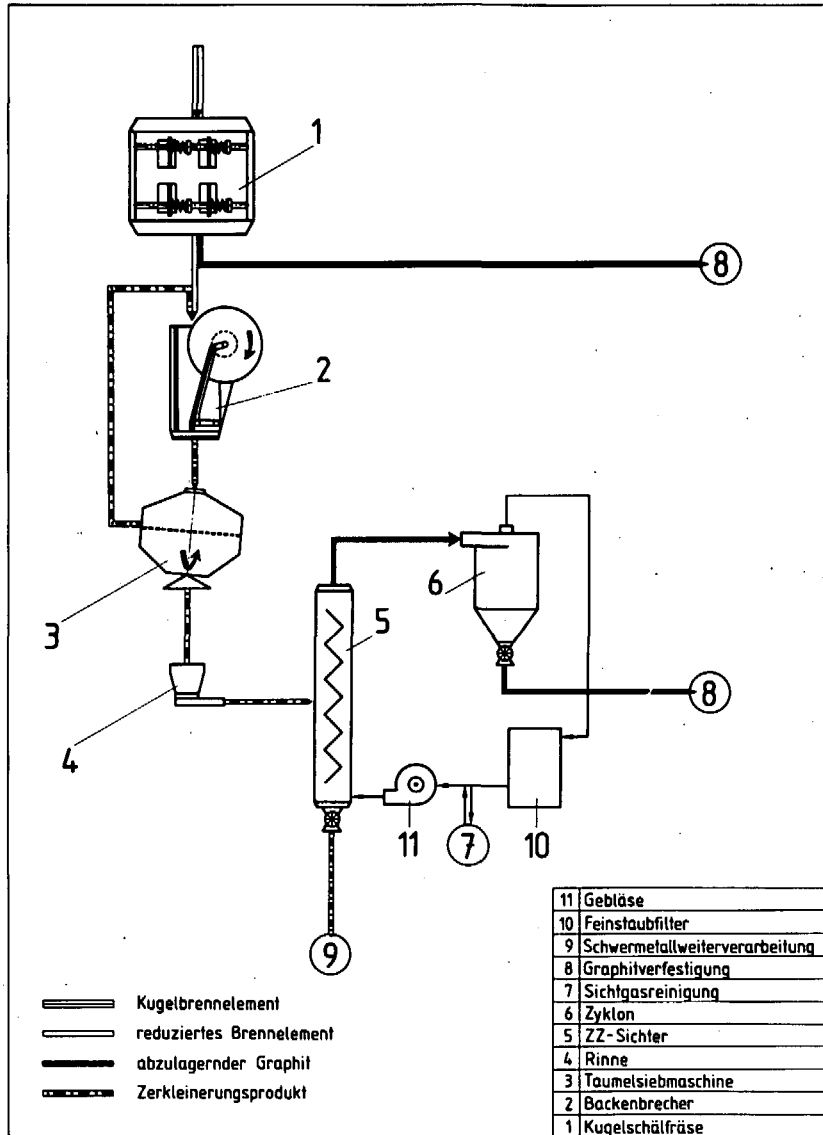


Abb. 50: Vereinfachtes Verfahrensfließbild II zur trockenmechanischen Graphitabtrennung

kornfraktion.

Um einerseits bei gleichem Zerkleinerungsgrad ein vergleichbares Graphitabtrennpotential zu besitzen und andererseits keine einzelnen Partikeln zum Backenbrecher zurückzuführen, erfolgte die Siebklassierung durch Siebdecks mit

- a. 1 mm Maschenweite,
- b. 1,4 mm Maschenweite.

Abb. 53 enthält Angaben über die maximalen Massenströme der Überkornrückführung einer Aufarbeitungskapazität von 500 BE/h, die unter folgenden Annahmen berechnet wurden:

- 500 BE/h $\hat{=}$ 63 kg geschälter M.O.-BE/h bzw. 60,5 kg geschälter F.B.-BE/h.
- Backenbrecherbetrieb bei minimaler Spaltweite s_1 , so daß nach Abb. 33:
 - 34 % > 1000 μ m bzw. 13 % > 1400 μ m für M.O.-BE,
 - 43 % > 1000 μ m bzw. 20 % > 1400 μ m für F.B.-BE.
- 10 % Fehlkornanteil in der Überkornfraktion.
- Vom zurückgeführten Grobgut werden lediglich die oben aufgeführten Anteile auf die entsprechenden Korngrößen zerkleinert (pessimistische Annahme), so daß die maximalen Massenströme sich als Grenzwert einer unendlichen geometrischen Reihe ergeben
($\lim_{n \rightarrow \infty} a \cdot q + a \cdot q^2 + a \cdot q^3 + \dots + a \cdot q^{n-1} = \frac{a}{1-q} - a$ für $q < 1$).

Die ermittelten Kurvenverläufe für Verfahren II in Abb. 51 bzw. 52 bestätigen teilweise die zu Verfahren I gemachten Aussagen. So ergaben sich z. B. absolut die niedrigsten Thoriumverluste, d. h. auch für die Backenbrecher-Zerkleinerung erwiesen sich die BREED-Partikeln als die stabilsten.

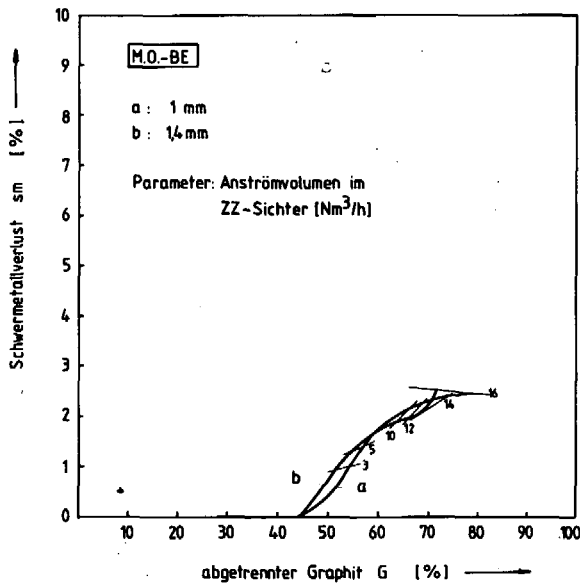


Abb. 51: Graphitabtrennrate und Schwermetallverlust für Mischoxid-Brennelemente

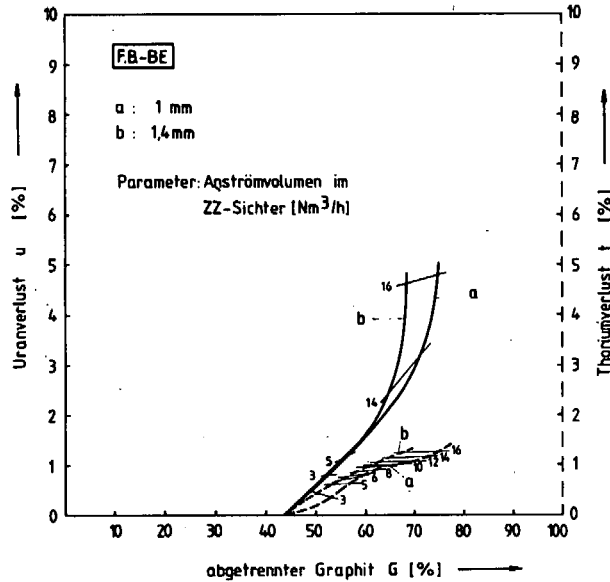


Abb. 52: Graphitabtrennrage und Uran- bzw. Thoriumverlust für FEED-BREED-Brennelemente

kg/h	M.O.-BE	F.B.-BE
1 mm Maschenweite	37,6	54,3
1,4 mm Maschenweite	10,5	17,0

Abb. 53: Max. Massenströme der Überkornzerkleinerung einer Aufarbeitungskapazität von 500 BE/h

Als bemerkenswertester Unterschied zum Verfahren I ist Verfahren II durch geringere Verlustwerte gekennzeichnet. Je mehr Graphit abgetrennt wird, desto deutlicher macht sich diese Differenz bemerkbar. Bei $G = 70\%$ sind für Mischoxid-Brennelemente ca. 2,5 % Schwermetallverlust, für FEED-BREED-Brennelemente ca. 1,2 % bzw. 1,3 % Thorium- und ca. 3 % Uranverlust zu erwarten, wobei sich der letzte Wert auf Kurve a der Abb. 52 bezieht. Bei 1,4 mm Siebmaschenweite wird mit herrschendem $16 \text{ Nm}^3/\text{h}$ Anströmvolumen im Zick-Zack-Windsichter keine 70 %-ige Graphitabtrennung erzielt.

Die Kurvenverläufe für das Mischoxid-Brennelement sind nahezu identisch. Aus der Tatsache, daß ein nur mit wenig Schwermetall kontaminierter Korngrößenbereich existiert, resultiert der teilweise degressive Verlauf besonders der Kurve a in Abb. 51 für hohe Graphitabtrennwerte.

Eindeutig schält sich der Vorteil der Überkornzerkleinerung und damit die Notwendigkeit des Taumelsiebmaschineneinsatzes bei der Thoriumverlustkurve der FEED-BREED-Brennelemente heraus, denn mit steigendem Zerkleinerungsgrad erhöht sich im untersuchten Bereich bei gleichbleibendem Thoriumverlust die Graphitabtrennrage. Dasselbe gilt, wenn auch nicht in dieser Eindeutigkeit, für die anderen Verlustkurven und ist als Indiz für eine mechanisch kontrollierte Zerkleinerung zu bewerten.

4. DIE BÜRST-ZERKLEINERUNG VON GESCHÄLTEN HTR-BRENNELEMENT-KUGELN

4.1 Grundlage, Wirkungsweise und Arbeitsmechanismus

Ausgangspunkt der experimentellen Untersuchung der Bürst-Zerkleinerung war der Gedanke, ohne Prall-, Schlag- und Druckbeanspruchung der Partikeln eine Steigerung des Graphitabtriebes gegenüber der Reibungszerkleinerung in der Kugelmühle zu erzielen.

In Abb. 54 sind verschiedene Härten von Struktur- und Kernmaterialien sowie einiger Vergleichsstähle aufgeführt. In der Härteskala von "Mohs" ($1 \leq M \leq 10$) sind Stoffe derart eingeordnet, daß jeder Stoff vom folgenden geritzt wird, den vorhergehenden dagegen selbst zu ritzen vermag. Da diese Definition hier zwar völlig treffend ist, sie in der Technik aber kaum Eingang gefunden hat, ist als Vergleichsmaßstab die Vickers-Härte HV⁽¹⁾ angegeben.

(1) Die Vickers-Härte wird ermittelt als Quotient einer Kraft, die eine geometrisch definierte Pyramide belastet, und der Oberfläche des Eindruckes dieser Pyramide in den Werkstoff, den diese Belastung hervorruft.

Zwischen dem weichen Graphit und dem sehr harten SiC, das unter dem Handelsnamen "Karbonrundum" als Schleif- und Poliermittel Verwendung findet, liegt fast die gesamte Breite der Härteskala.

Es bestehen also zahlreiche Werkstoffe, die bei entsprechender Form und Führung ritzenderweise einen Graphitspan abtragen können aber das SiC unbeschädigend "umfahren". Dieser Mechanismus ist die charakteristische Grundlage der Bürst-Zerkleinerung.

Bei einer Rundbürste als spanabhebendem Bearbeitungswerkzeug stellt jede Drahtspitze eine Werkzeugschneide dar, so daß die Mantelfläche des zylindrischen Drehkörpers aus einer Vielzahl von Mikroschneiden gebildet wird. Durch Andrücken der Brennelement-Kugel an die Arbeitsfläche des rotierenden Werkzeuges ist eine einfache Möglichkeit zur Realisierung dieses Arbeitsmechanismus gegeben.

4.2 Experimentelle Erprobung des Versuchstyps einer Kugelaufbürstmaschine

4.2.1 Beschreibung

Die Erprobung der Bürst-Zerkleinerung wurde mit Hilfe der in Abb. 55 und 56 dargestellten Vorrichtung durchgeführt.

Das Arbeitsorgan besteht aus zwei auf eine einseitig gelagerte Antriebswelle aufgeschraubte Drahrundbürsten mit einem Außendurchmesser von 300 mm und einer jeweiligen Breite von 30 mm.

In der Absicht, den Zerkleinerungsmechanismus auch für mit BISO-Partikeln beladene Brennelemente zu untersuchen, wurde ein relativ weicher Stahl ausgewählt (siehe Abb. 54). Der Besatz jeder Bürste besteht aus 1,7 kg gewelltem Gußstahldraht einer Drahtfestigkeit von 160 - 180 kp/mm². Die Drähte sind 82 mm lang; die Drahtstärke beträgt 0,3 mm.

Für einen Stahl mit 0,1 - 1,2 % Kohlenstoff und einer Zugfestigkeit $\sigma_B = 36 - 180 \text{ kp/mm}^2$ gilt mit praktisch ausreichender Genauigkeit [67]:

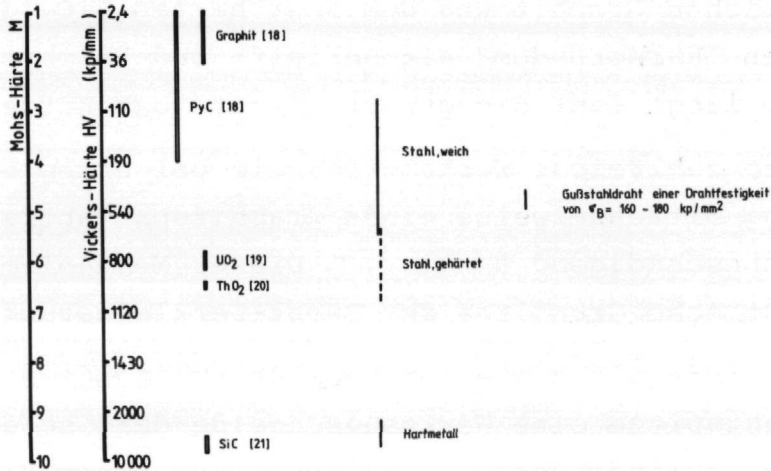


Abb. 54: Härte von Struktur- und Kernmaterialien sowie des benutzten Drahtwerkstoffes der Rundbürste

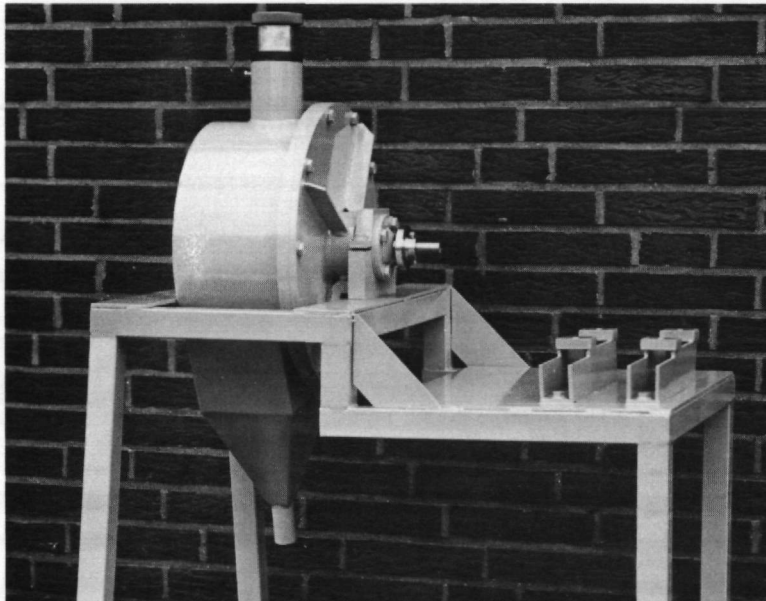


Abb. 55: Versuchstyp Kugelaufbürstmaschine (ohne Motor und Getriebe)

$$\sigma_B = 0,343 \text{ HB} + 4,8$$

mit σ_B : Zugfestigkeit in kp/mm^2
HB : Brinellhärte ⁽¹⁾ in kp/mm^2

¹⁾ Die Brinellhärte HB wird ermittelt als Quotient einer Kraft, die eine Kugel belastet und der Oberfläche des Eindrucks dieser Kugel in den Werkstoff, den diese Belastung hervorruft. Nur bei gleicher Flächenpressung ($F/D^2 = \text{konst.}$) sind die so erhaltenen Werte vergleichbar.

Mit Hilfe obiger Gleichung, Vergleichsdiagramm und Vergleichsskala [68,69] wurde die Vickers-Härte des Drahtwerkstoffes zu $450 - 510 \text{ kp/mm}^2$ bestimmt.

Auf dem zylindrischen Gehäuse befindet sich ein Zuführungsrohr, in welches jeweils eine aufzubürstende ganze oder geschälte Brennelement-Kugel eingefüllt und von oben mit der in Abb. 57 dargestellten Andrückeinheit belastet werden kann. Diese besteht aus einem mit 2 mm Stahlkugeln befüllbarem Rohr zwecks Variation der Andrückkraft und einer Haltehülse, die die Aufgabe hat, die Eigenbewegung, speziell eine Rollbewegung der Kugel zu verhindern, sie zentral zu führen und die Andrückkraft zu übertragen. Die

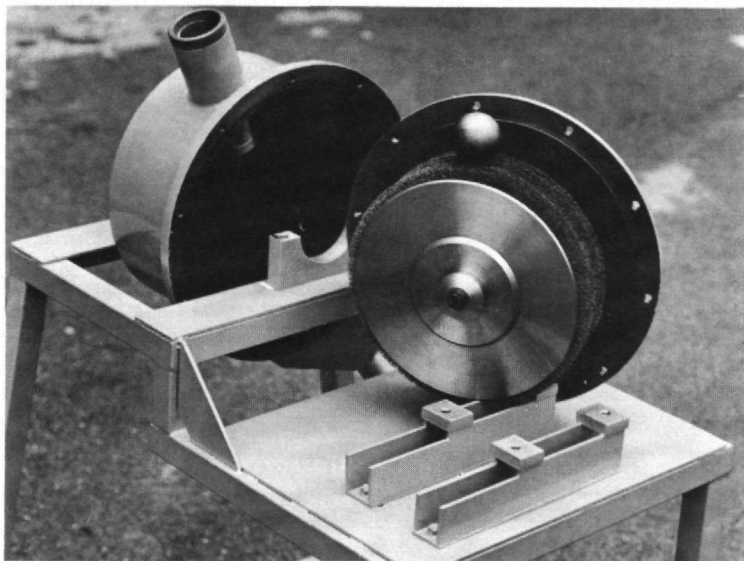


Abb. 56: Versuchstyp Kugelaufbürstmaschine
(Gehäusedeckel abgeschraubt)

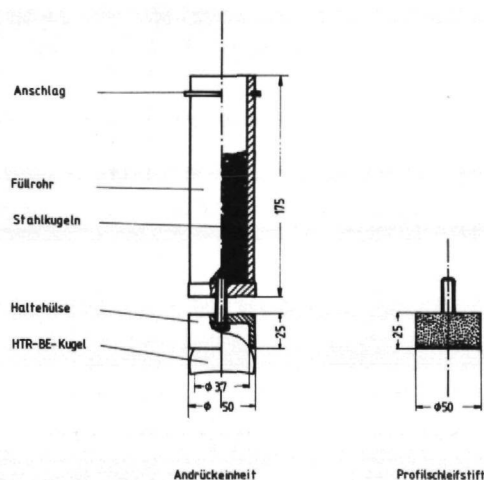


Abb. 57: Andrückeinheit für Bürst- und Schleifbetrieb

Haltehülse kann durch einen Profilschleifstift ersetzt werden, mit dem die abgenutzten stumpfen Drahtenden geschärft werden können.

Der günstigste Wirkungsgrad, wie auch die längste Haltbarkeit der Werkzeug-Rundbürste, liegt etwa im Drehzahlbereich 1200 - 1400 U/min; die erforderliche Anpreßkraft beträgt dann üblicherweise 30 - 100 N [70]. Da mit steigender Drehzahl eine unerwünschte Intensivierung der Schlagbeanspruchung der Partikeln zu erwarten war, wurde eine Motor-Getriebe-Einheit eingesetzt, mit der lediglich eine Drehzahl von 18 - 96 U/min stufenlos eingestellt werden konnte. Um den negativen Einfluß der langsamen Bürstendrehzahl zu kompensieren, wurde die maximale Andrückkraft der Brennelement-Kugel auf 26,5 N beschränkt.

Wegen der geringen Korngröße des abgebürsteten Graphitstaubes und der daraus resultierenden schlechten Fließfähigkeit konnte eine sinnvolle Massenbilanzierung nur durch ein kontinuierliches Absaugen mit anschließendem Abscheiden des Bürstproduktes in einem Zyklon gewährleistet werden, siehe Abb. 58.

Da die Sichtluft durch das Zuführungsrohr eintritt, im Maschinengehäuse also ein Unterdruck herrscht, erhöht eine zusätzliche Kraftkomponente von ca. 5 N die durch die Stahlkugeln erzeugte Schwerkraftkomponente der Andrückkraft. In dieser Arbeit ist

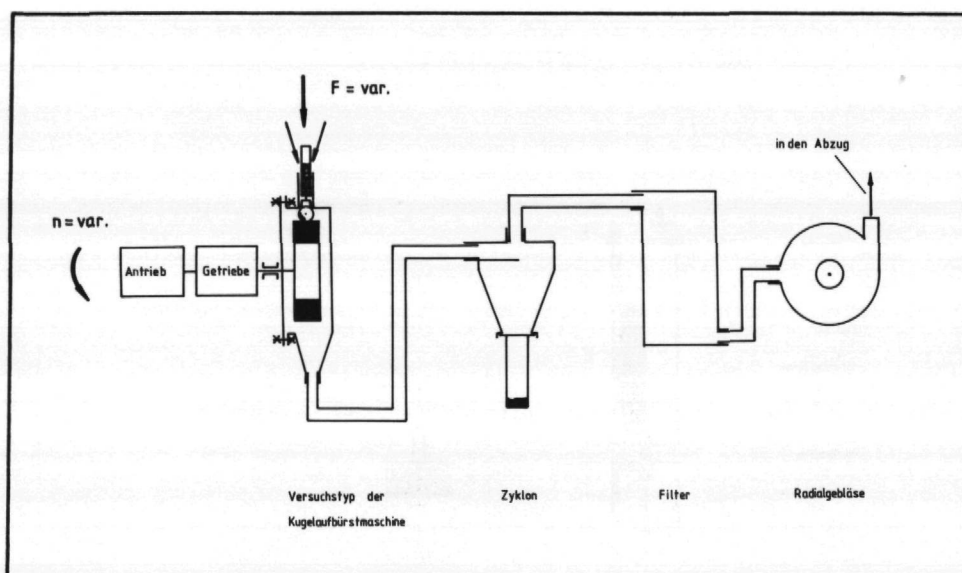


Abb. 58: Komponentenanzordnung des Versuchsstandes

bei Angabe des Betrages der Andrückkraft dieser Wert bereits berücksichtigt.

Bei allen experimentellen Auswertungen wurde von den auftretenden Feinstgraphitstaubverlusten im Filter von weniger als 10 g/BE konservativ angenommen, daß die darin vorliegende Uran- bzw. Thoriumkontamination der des im Zyklon abgeschiedenen Graphits entspricht.

4.2.2 Charakteristische Merkmale der Bürst-Zerkleinerung

G. VENNEKATE erarbeitete bei Inbetriebnahme des Versuchstyps einige der eben beschriebenen Aspekte. Auf die wesentlichen Ergebnisse dieser Arbeit wird an dieser Stelle eingegangen [71].

Die in Abb. 57 skizzierte Andrückeinheit erfüllt zufriedenstellend die ihr zugewiesene Funktion. Mit der Kugelschälfräse geschälte Brennelemente waren jederzeit in der Haltehülse plaziert. Der Innendurchmesser dieser Hülse bestimmt die Größe des nicht mehr aufbürstbaren Brennelementrestes. Bei einem Innendurchmesser von 37 mm beträgt die Restmasse der verbleibenden Kugelkappe ca. 10 g. Durch eine Verkleinerung des Durchmessers kann dieser Wert vermutlich auf 5 - 7 g reduziert werden.

Das Bürstgut besitzt wegen der geringen Korngröße des Graphitstaubes eine extrem schlechte Fließfähigkeit. Eine kontinuierliche Bürstgutabsaugung bei Bürstbetrieb ist unumgänglich.

Die Bürstleistung, definiert als abgetragene Masse pro Zeiteinheit, verhält sich bei konstanter Andrückkraft umgekehrt zur bebürsteten Fläche. Es ist deshalb aus Materialentlastungsgründen der Stahldrähte bzw. zur Erzielung einer höheren Umsatzrate vorteilhaft, bereits geschälte Brennelemente aufzubürsten.

Die Bürstleistung erhöht sich in den untersuchten Bereichen mit steigender Drehzahl und steigender Andrückkraft.

Während der Versuche wurden die Drahtspitzen ständig stumpfer. Die Einführung eines Schärfvorganges bietet sich an.

Die rotierende Rundbürste erwies sich als geeignet, den angestrebten Arbeitsmechanismus zu verwirklichen. Sie löst die Brenn-

elemente nach und nach auf. Die Enden der Stahldrähte streichen über die Bearbeitungsfläche, wobei sie feinen Graphitstaub abritzen. Sie werden aber, stoßen sie auf ein Brennstoffteilchen, von dessen SiC-Schicht abgelenkt und umfahren das Teilchen, das schließlich - soweit freigelegt - der von den Borsten ausgeübten Kraft nicht mehr widerstehen kann und aus dem Matrixverbund herausfällt.

Der gleiche partikelschonende Abritzmechanismus tritt auch bei ThO_2 -BISO-Partikeln auf, jedoch fehlt der Schutz der SiC-Hüllschicht. Trotzdem sind die abgebürsteten ThO_2 -Kerne noch vorwiegend mit einer dünnen Puffergraphitschicht bedeckt, da die hochdichte PyC-Schicht ebenfalls einen gewissen Widerstand gegen die Bürstbeanspruchung bietet.

Abb. 59 zeigt eine bis zur Hälfte aufgebürstete geschälte Brennelement-Kugel. In der entsprechenden Nahaufnahme der Bürstfläche in Abb. 60 sind deutlich die noch im Graphit eingebetteten Partikeln und die Leerstellen der herausgearbeiteten Teilchen zu erkennen. Vergleichsweise ist in Abb. 61 eine bis zur Hälfte aufgebürstete unbeladene und geschälte Brennelement-Kugel zu sehen.

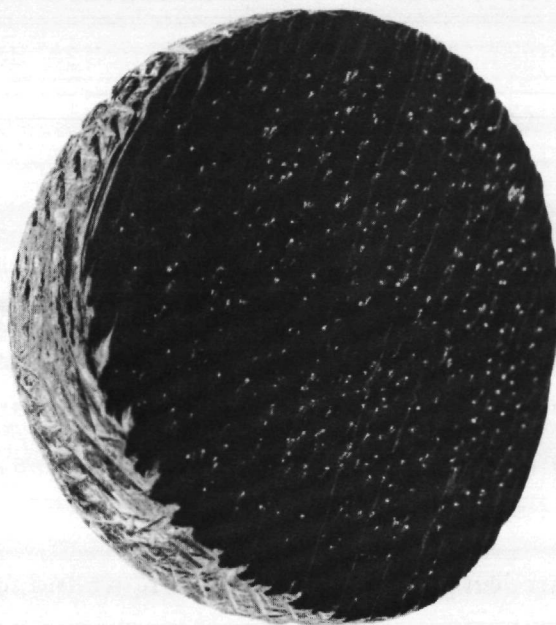


Abb. 59: Bis zur Hälfte aufgebürstete beladene und geschälte Brennelement-Kugel

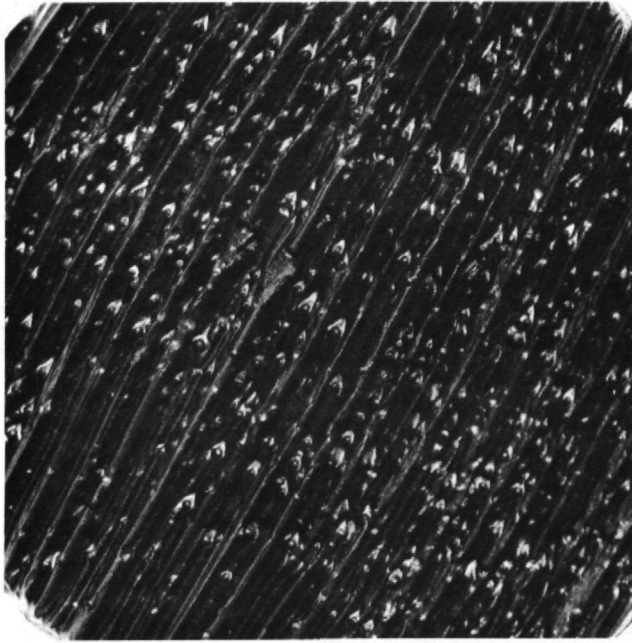


Abb. 60: Bis zur Hälfte aufgebürstete beladene und geschälte Brennelement-Kugel - Nahaufnahme



Abb. 61: Bis zur Hälfte aufgebürstete unbeladene und geschälte Brennelement-Kugel

Die Bürstfläche ist mit ca. 30 - 50 bis zu 3 mm tiefen Riefen durchzogen.

Wie sauber die Partikeln freigebürstet werden, veranschaulichen weitere Fotos. Die größeren Partikeln in Abb. 62 sind bis auf die SiC-Schicht freigelegte FEED-Partikeln, während die kleineren Teilchen die mit etwas Puffergraphit behafteten ThO_2 -Kerne darstellen. Diese Tatsache eröffnet die Möglichkeit der FEED-BREED-Partikel-trennung mit einem Zick-Zack-Windsichter [61].

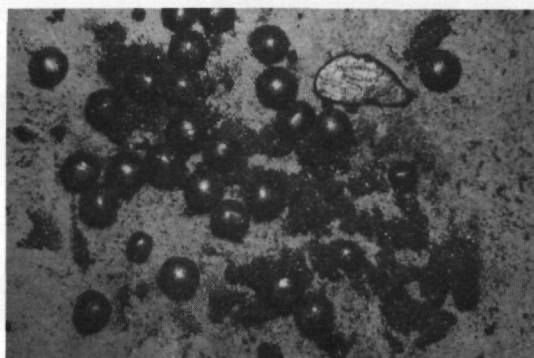


Abb. 62: Brennstoffpartikeln (FEED-CP und ThO_2 -Kerne) und Graphitstaub 6x

Hin und wieder bricht ein Grat der entstehenden Bürstriefen, so daß dünne Graphitplättchen entstehen, die aber keine Brennstoffpartikeln enthalten. Der überwiegende Teil des Graphits (> 98 %) fällt als feiner Staub an, dessen Schüttdichte zu $0,3 \text{ g/cm}^3$ bestimmt wurde.

In Abb. 63 sind vom Graphitstaub befreite Mischoxid-Partikeln, Mischoxid-Kerne und zwei aufgebrochene Partikeln mit defekten Hüllschichten zu erkennen.

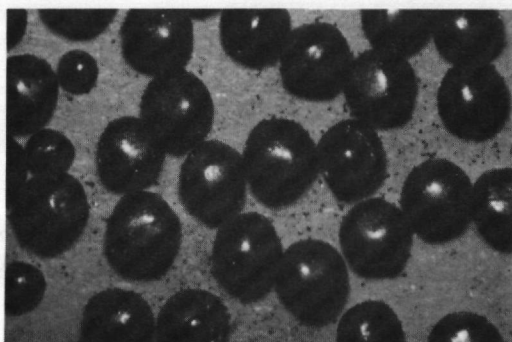


Abb. 63: Brennstoffpartikeln (FEED-CP und ThO_2 -Kerne) von Graphit getrennt 10x

Während Abb. 62 und 63 die Massenverhältnisse zur Verbesserung der Anschaulichkeit unrealistisch wiedergeben, stellt Abb. 64 eine getreue Aufnahme des durch Sichten des Bürstgutes im Zick-Zack-Windsichter abgetrennten Grobgutes, d. h. der Partikelfraktion, dar.

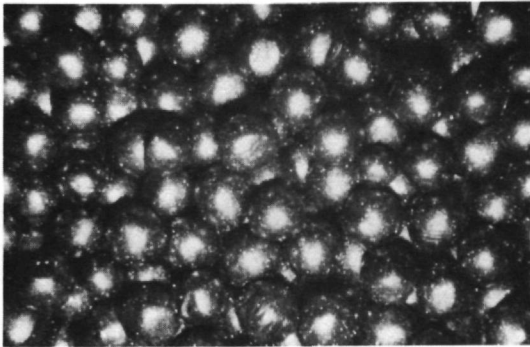


Abb. 64: Partikelfraktion nach Zick-Zack-Windsichtung des Bürstgutes 10x

Der Verlauf der Korngrößenverteilungsdichte für Mischoxid- und FEED-BREED-Bürstgut nach Abb. 65 gewährleistet für beide Brennelementkonzepte ideale Graphit-Brennstoffpartikeln-Trennbarkeit, da die Brennstoffpartikeln als diskrete Korngrößenfraktion freigelegt werden und der Matrixgraphit, dessen Korngröße kleiner als $63 \mu\text{m}$ ist, als problemlos abzusiebender oder abzusichtender Feinstaub anfällt. Diese positive Aussage behält ihre Richtigkeit selbst unter Berücksichtigung der Tatsache, daß eine kleine Kugelkappe aus konstruktiven Gründen nicht aufgebürstet werden kann. Tatsächlich ist es verfahrenstechnisch unerheblich, ob diese Restmasse 10 oder 5 Gramm ausmacht, wenn sie zusammen mit der Partikelfraktion weiterverarbeitet werden kann.

Trotz Berücksichtigung von nur zwei Verfahrensparametern (Drehzahl, Andrückkraft) zeigte G. VENNEKATE das Potential der Bürstzerkleinerung auf:

Bezogen auf das intakte Brennelement kann durch eine Schäl-Bürst-Behandlung ca. 95 % des Graphits abgetrennt werden. Konservative Abschätzungen, lediglich basierend auf Massendifferenzwägungen vor und nach einem Auflösevorgang in Thorex-Reagenz, ergaben für das FEED-BREED-Brennelement Uranverluste von 0,16 - 27 % und Thoriumverlust von 0,02 - 3,3 %. Für das Brennelement mit

(U/Th) O_2 -TRISO-Partikelbeladung wurden Schwermetallverluste von < 0,5 % nachgewiesen.

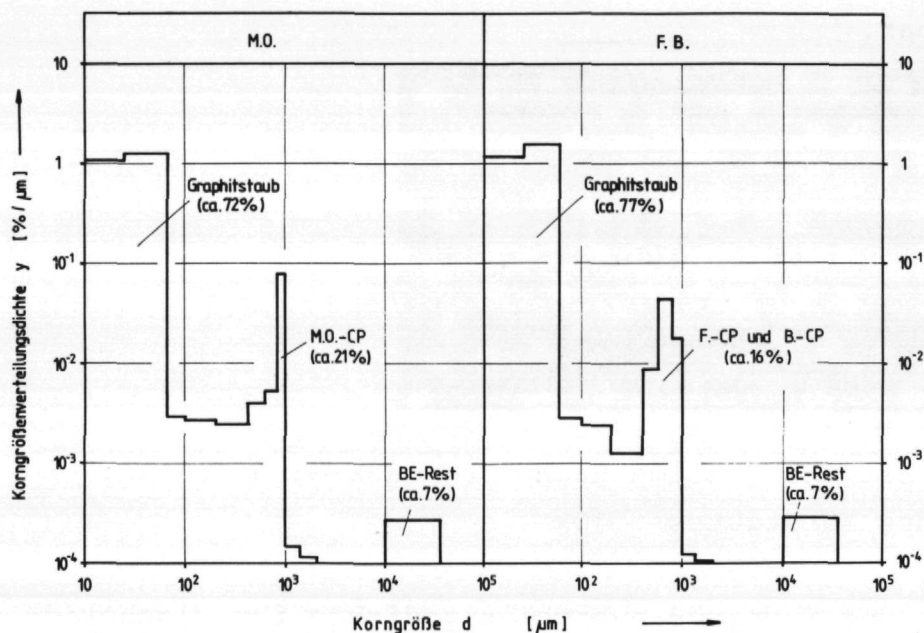


Abb. 65: Korngrößenverteilungsdichte für Mischoxid- und FEED-BREED-Bürstgut

4.2.3 Experimentelle Untersuchungen und Ergebnisse

Eigene experimentelle Untersuchungen sollten ermöglichen, folgende prinzipiell wichtige Fragestellungen zu beantworten:

- Inwieweit und unter welchen Bedingungen ist eine Projektion aus dem Labormaßstab in eine realistische Großausführung einer Kugelaufbürstmaschine möglich (besonders die Frage nach der Standzeit der Bürste)?
- Die konservativ ermittelten Größenordnungen der zu erwartenden Schwermetallverluste in [71] bedürfen einer genauen quantitativen Einengung.
- Eignet sich die Bürst-Zerkleinerung qualitativ im gleichen Maße für Brennelemente, die mit UC_2 -TRISO-FEED-Partikeln und ThO_2 -BISO-BREED-Partikeln beladen sind wie für Brennelemente, deren Beladung aus

(U/Th)O₂-TRISO-Partikeln besteht.

In Abb. 66 sind sämtliche mit beladenen geschälten Brennelementen durchgeführten Versuche samt ihren Ergebnissen zusammengefaßt.

Unter variablen Versuchsparametern sind Masse m_{BEO} und Beladungskonzept des aufzubürstenden Brennelementes, Drehrichtung und Drehzahl n , Andrückkraft F des Brennelementes auf die Bürste und ein durchgeführter (mit) oder unterlassener (ohne) Schärfvorgang vor dem jeweiligen Aufbürstvorgang zu verstehen. Bürstzeit t_{B} und Masse des Brennelementrestes $m_{\text{BE-R}}$ sind direkt beim Versuch ermittelbare Größen. Die Trennung des anfallenden Bürstgutes in Grob- und Feingut erfolgte im Zick-Zack-Windsichter mit einem Anströmvolumen von $5 \text{ Nm}^3/\text{h}$, wobei die Partikelfraktion - falls sie nicht weiterverarbeitet wurde - einer SiC-Hüllbruchratenanalyse nach Abb. 26 und 27 unterzogen wurde. Die Verbrennungsrückstände m_2 der Feingutmassen m_1 wurde in Thorex-Reagenz gelöst und deren Uran- und Thoriumbestandteile ($m_{\text{Ugel.}}$, $m_{\text{Thgel.}}$) mit einem ICP-Spektrometer (inductively coupled plasma) quantitativ bestimmt.

Schließlich erfolgte die Berechnung der auf das vollständige Brennelement bezogenen Graphitabtrennrates G und der Uran- und Thoriumverluste u bzw. t und gegebenenfalls ihren über eine Versuchsserie gemittelten Durchschnittswerten \bar{u} bzw. \bar{t} .

Ein Ersatz des ersten Bürsteinsatzes durch ein fabrikneues Bürstenpaar erfolgte vor dem Versuch 9. Nach dem Versuch 14 gewährleistete eine Kürzung desjenigen Teils des Zuführungsrohres, der ins Arbeitsgehäuse hineinragte und eventuell von der Bürste bearbeitet wurde, daß das im Veraschungsrückstand des Feingutes vorliegende Eisen allein den Materialabrieb der Drahtspitzen repräsentiert.

In den ersten acht Versuchen wurde durch Variation von Drehrichtung, Drehzahl und Andrückkraft von Versuch zu Versuch eine Optimierung angestrebt. Bezüglich Bürstzeit, Graphitabtrennrates, Uran- und Thoriumverlusten zeichnen sie sich durch die absoluten Extremwerte aus:

Ifd. Nr.	Versuchsparameter				Versuchsergebnisse										Bemerkungen			
	M.O.-BEo F.B.-BEo mBEo	Dreh- richtung	Dreh- zahl n	Andrück- kraft F	Bürst- zeit t _B	BE- Rest mBE-R	Grobgut		Feingut				Graphit- abtretrate G	Uran- verlust		Thorium- verlust		
							mG	BR	m ₁	m ₂	m _{Ugel.}	m _{Thgel.}		u		ü	t	τ
g	1/2	min ⁻¹	N	min	g	g	g	g	g	g	g	g	g	g	g	g	g	
1	119,7 F.B.	1	90	11,8	169	8,01	17,72	-	93,97	0,468	8,23	152,10	92,6	0,82	1,901	vorher ca. 20 Bl.-BE aufgebürstet Drehrichtungswechsel Schaumstoffeinsatz in Halte- hülse neue Bürste eingesetzt		
2	120,0 F.B.	1	90	21,6	64	6,60	17,91	-	95,49	0,367	18,93	110,76	93,5	1,89	1,385			
3	120,3 F.B.	1	90	16,7	274	9,55	17,82	-	92,93	0,189	6,24	22,84	92,2	0,62	0,280			
4	120,1 F.B.	1/2	60	21,6	164/174	8,74	18,67	-	92,69	0,288	0,42	0,76	92,0	0,04	0,010			
5	121,1 F.B.	2	60	21,6	37	8,66	18,87	-	93,57	0,141	0,47	1,15	92,6	0,05	0,014			
6	120,0 F.B.	2	90	21,6	38	9,66	17,58	-	92,76	0,442	16,62	119,19	92,0	1,66	1,490			
7	120,6 F.B.	2	30	21,6	185	9,46	17,48	-	93,66	0,155	3,65	12,89	92,6	0,37	0,161			
8	123,5 F.B.	1	90	26,5	120	1,76	18,83	-	102,91	0,197	5,30	2,62	97,5	0,53	0,033			
9	127,2 M.O.	1	60	21,6	68	8,54	20,60	-	98,06	0,102	3,65	1,12	96,6	0,36	0,011			
10	127,4 M.O.	2	60	21,6	167	9,34	20,97	-	97,09	0,163	0,62	1,53	96,0	0,06	0,015			
11	126,7 M.O.	1	60	21,6	172	9,19	21,71	-	95,80	0,119	0,48	1,38	95,3	0,05	0,014			
12	126,1 M.O.	2	60	21,6	325	8,87	22,89	-	94,34	0,175	0,70	2,80	94,5	0,07	0,028			
13	126,9 M.O.	1	60	21,6	225	9,60	23,13	-	94,17	0,076	0,07	0,69	94,5	0,01	0,007			
14	124,2 M.O.	1	60	21,6	347	9,52	22,99	-	91,69	0,063	0,12	0,43	93,2	0,01	0,004			
15	126,6 M.O.	2	60	21,6	528	7,82	23,12	-	95,66	0,390	1,08	8,40	95,1	0,11	0,084			
16	126,5 M.O.	1	60	21,6	493	9,78	23,08	-	93,64	0,353	-	14,48	93,9	-	0,145			
17	127,9 M.O.	2	90	21,6	355	7,72	23,88	8,82	96,30	0,108	0,21	1,35	95,6	0,02	0,013			
18	125,4 M.O.	2	90	21,6	186	9,21	22,86	8,59	93,33	0,428	1,20	9,38	93,9	0,12	0,094			
19	125,1 M.O.	2	90	21,6	194	9,77	23,01	10,12	92,32	0,399	0,05	1,28	93,3	0,01	0,013			
20	126,9 M.O.	2	90	21,6	153	9,76	23,20	6,34	93,94	0,374	0,23	1,51	94,2	0,02	0,015			
21	120,4 F.B.	2	90	21,6	160	8,46	18,06	13,25	93,88	0,427	0,98	0,55	92,6	0,10	0,007			
22	120,4 F.B.	2	90	21,6	231	8,22	17,61	16,31	94,57	0,385	0,31	0,70	93,0	0,03	0,009			
23	119,9 F.B.	2	90	21,6	180	8,77	17,21	17,52	93,92	0,402	0,61	0,98	92,6	0,06	0,012			
24	120,5 F.B.	2	90	21,6	221	8,97	17,89	15,81	93,64	0,493	0,65	3,77	92,4	0,07	0,047			
25	127,2 M.O.	2	90	26,5	71	11,74	21,51	13,93	93,95	0,485	0,27	5,17	94,2	0,03	0,052			
26	127,4 M.O.	2	90	26,5	99	10,54	22,97	10,70	93,89	0,403	0	0,60	94,2	0	0,006			
27	127,3 M.O.	2	90	26,5	96	11,53	22,73	11,18	93,04	0,448	0,22	1,43	93,7	0,02	0,014			
28	127,3 M.O.	2	90	26,5	95	12,97	22,49	14,43	91,84	0,496	0	0,27	93,0	0	0,003			

Versuche 1-14 durchgeführt von G. Vennékatte [KFA-ICT-IB-457/81]

Abb. 66: Parameter und Ergebnisse der Versuche der Bürst-Zerkleinerung

- Die kürzeste Aufbürstzeit von 37 Minuten bei niedrigen Schwermetallverlusten wurde nach Drehrichtungswechsel bei einer mittleren Drehzahl und Andrückkraft erzielt (Nr. 5).
- Gegen Ende der Bearbeitungszeit des Versuches 8 in die Haltehülse eingesetzter Schaumstoff ermöglichte ein Aufbürsten des Brennelementes bis auf 1,76 g Brennelementrest (keine technische Lösung!). Dieses entspricht einer Graphitabtrennung von ca. 97,5 %.
- Bei aggressiven Drahtspitzen (neue Bürste, Drehrichtungswechsel) und bei hoher Drehzahl liegen bei Versuchen Nr. 1, 2 und 6 die Schwermetallverluste am höchsten. Sie übersteigen jedoch niemals 2 %.

Zu diesen mehr oder weniger zufälligen Aussagen lassen sich jedoch bei dieser Optimierungsweise keine weiteren eindeutigen Relationen und einigermaßen gesicherten Erkenntnisse gewinnen, so daß im folgenden mindestens vier Versuche bei gleichen Einstellparametern nacheinander durchgeführt wurden.

Zusätzlich zu dem Aspekt der Reproduzierbarkeit wurde in der zweiten Serie (Nr. 9 - 16) versucht, Erkenntnisse über die Möglichkeit einer Selbstschärfung der Drahtspitzen durch Drehrichtungsumkehr der Bürste zu gewinnen.

Der Verschleißzustand von Drahtspitzen einer Bürste, die eine ebene Oberfläche eines homogenen Körpers bearbeitet, kann durch Angabe der Lage der geraden Trennlinie zwischen Verschleiß- und Freifläche in Prozent des Nadeldurchmessers charakterisiert werden. Die ebene Verschleißfläche der Drahtspitze entsteht nur, wenn diese keine Querbewegung vollführt und nicht zu tief in das zu bearbeitende Material eindringt, so daß keine Randeffekte auftreten. Ist in diesem Fall ein 100 %-iges Verschleißstadium erreicht, d. h. ist der gesamte Nadelquerschnitt unter dem Anstellwinkel der Nadelspitze abgetragen, so bietet ein Drehrichtungswechsel eine wiederum scharfe arbeitende Nadelspitze [72].

Aufgrund der relativ tiefen Bürstriefen und des Umfahrens der Partikeln durch die Drahtspitzen (Querbewegung) ist diese "ebene" Verschleißcharakteristik bei der Bürst-Zerkleinerung nicht ge-

geben. Vielmehr zeigte nach Versuch 16 eine stereomikroskopische Untersuchung der Bürste, daß die Betriebsweise mit wechselnder Drehrichtung völlig stumpfe halbkugelförmige Drahtspitzen erzeugt. Bei der Bearbeitung von nur acht Mischoxid-Brennelementen verlängerten sich deswegen die Bürstzeiten von anfangs 68 Minuten auf 528 Minuten. Bei der Bürst-Zerkleinerung von Brennelement-Kugeln ist ein Selbstschärfmechanismus also nicht realisierbar.

Es bietet sich die Möglichkeit, durch Auswahl eines härteren Werkstoffes die Verschleißgeschwindigkeit günstiger zu gestalten, jedoch kann auch in diesem Fall ein technisch sinnvoller Bürst-Betrieb nur durch Aufnahme eines zusätzlichen Schärfvorganges durchgeführt werden. In den Versuchen 18 bis 28 wurde konsequenterweise diese Möglichkeit der Stabilisierung der Bürstzeiten erfolgreich untersucht.

Das Schärfen mit der in Abb. 57 skizzierten Vorrichtung wurde jeweils 30 Minuten mit entgegengesetzter Drehrichtung und gleicher Drehzahl wie beim folgenden Versuch vorgenommen. Da der Materialabtrag nicht gleichzeitig abgesaugt wurde, herrschte eine um ca. 5 N geringere Andrückkraft des Profilschleifstiftes auf die Arbeitsfläche der Bürste als für den Versuch angegeben. In keinem Fall betrug die Masse des nach jedem Schärfen diskontinuierlich abgesaugten, aufgefangenen und ausgewogenen Materialabtriebes mehr als 1 g/BE.

Unter der Annahme eines schwermetall- und SiC-freien Feingutes stellt die Verbrennungsrückstandsmasse m_2 den Materialabrieb bei der Bürst-Zerkleinerung eines geschälten Brennelementes dar.

Für die benutzte Bürste mit dem relativ weichen Drahtwerkstoff muß also zum Aufbürsten eines geschälten Brennelementes mit anschließendem Schärfen der dabei abgenutzten Drahtspitzen mit einem gesamten maximalen Materialabrieb von $\Delta m_{\text{BE}_0} \sim 1,5 \text{ g/BE}_0$ gerechnet werden.

In Abhängigkeit der aufgrund des Materialabtriebes hervorgerufenen Längenreduzierung Δl der Bürstdrähte ergibt sich für speziell dieses erprobte Bürstenpaar eine Brennelement-Aufbürstkapazität von

$$A - \text{BE}_0 = V_{\Delta l} \cdot \rho_D \cdot \frac{5}{3} B \cdot \frac{1}{\Delta m_{\text{BE}_0}} \quad [\text{BE}_0/5/3 \text{ Bürste}]$$

mit Δm_{BE_0} : = 1,5 g/BE₀
5/3 B : Anzahl der Drähte aus 5/3 Bürste
B = 38.000
 ρ_D : spezifische Drahtwerkstoffdichte (7,894 g/cm³)
 $V_{\Delta l}$: = $\frac{\pi \cdot d^2}{4} \cdot \Delta l$

$$A - \text{BE}_0 = 235 \frac{\text{BE}_0}{\text{cm} \cdot 5/3 \text{ Bürste}} \cdot \Delta l$$

Durch die konstruktive Auflage einer maximal möglichen Verkürzung der Drähte von $\Delta l_{\text{max}} = 2,5$ cm (siehe Kapitel 4.3) errechnet sich eine Aufbürstkapazität dieses Bürstenpaares bei einer Arbeitsbreite von 5 cm von ca. 600 geschälten Brennelementen. Diese entspricht bei einer Betriebsweise der Kugelaufbürstmaschine analog derjenigen der Versuche 25 bis 28 einer Standzeit von ca. 900 h. Mit Ausnahme der orientierenden ersten Versuchsserie liegen alle analysierten durchschnittlichen Verlustwerte unter 0,1 %. Die Versuche 21 bis 24 beweisen, daß unbestrahlte UC₂-FEED-TRISO-Partikeln und ThO₂-BREED-BISO-Partikeln in gleichen Maße geeignet für die Bürst-Zerkleinerung sind wie die (U/Th)O₂-TRISO-Partikeln. Wie bei der Versuchsplanung angenommen, erhöht sich zwar mit steigender Andrückkraft die SiC-Hüllbruchrate der Mischoxid-Partikeln (vergleiche Versuche 17 - 20 mit 25 - 28); erstaunlicherweise verringern sich aber gleichzeitig - und ebenfalls mit steigender Drehzahl - die Schwermetallverluste (vergleiche Versuche 9 - 16 mit 17 - 20 mit 25 - 28). Die Stabilität des Mischoxid-Kerns an sich und der aufrechterhaltene Schutz durch defekte Hüllschichten begründen diese erfreuliche Tatsache, die die Möglichkeit einer weiterführenden Optimierung dieses Zerkleinerungsverfahrens über die für diese Versuche begrenzten Parameterbereiche - speziell einer partikelbezogenen Werkstoffoptimierung der Bürstdrähte - hinaus eröffnet. Sinnvollerweise kann dieses nur unter Einsatz bestrahlter Brennelemente in Heiß-Zellen-Versuchen durchgeführt werden.

4.2.4 Kritische Bemerkungen zu den durchgeführten Versuchen

Wegen Verringerung des Aufwandes und zur Vereinfachung der Bilanzierung schien es gerechtfertigt, den Versuchstyp der Kugelaufbürstmaschine dergestalt auszulegen, daß jeweils nur ein Brennelement aufgebürstet werden konnte. Dabei treten prinzipiell folgende ungünstige Rand- und Nebeneffekte auf:

- Wegen seitlichen Ausweichvorgängen vor allem zu Beginn des Aufbürstens nehmen nur wenige Drähte am Bearbeitungsprozeß teil.
- Die Kugelgeometrie der Brennelemente hat eine ungleiche Arbeitsaufteilung der Drahtspitzen zur Folge. Bei ungleichmäßigem Nadelverschleiß stellt sich ein charakteristisches Verschleißprofil ein.
- Deswegen muß auch der Schärfprozeß als ungünstig angesehen werden. Relativ viele scharfe Drahtspitzen werden abgetragen, bevor das eigentliche Schärfen der stumpfen, d. h. zentralen, Spitzen einsetzt.

Die Konzeption eines Technikumtyps einer Kugelaufbürstmaschine muß diese Gesichtspunkte berücksichtigen.

4.3 Entwurf eines Technikumtyps einer Kugelaufbürstmaschine

Abb. 67 zeigt eine Prinzipskizze eines weiter entwickelten Technikumtyps einer Kugelaufbürstmaschine [72].

Die Rundbürste (1) dreht sich um eine vertikale Achse (2). Die Bürste ist entweder als Einzelstück gesondert angefertigt oder setzt sich aus mehreren handelsüblichen Werkzeugbürsten zusammen. Unten liegen sie auf einen fest mit der Antriebswelle verbundenen Trageteller (3) auf; oben sind sie ebenfalls über eine Anpreßplatte mit einer Schraubverbindung (4) befestigt. Der Rechteckquerschnitt der Antriebswelle gewährleistet den Kraftschluß auf die Rundbürste. Es empfiehlt sich zur Verkürzung der Schärfzeit, die Antriebseinheit auch für Drehzahlen bis ca. 1500 U/min auszulegen.

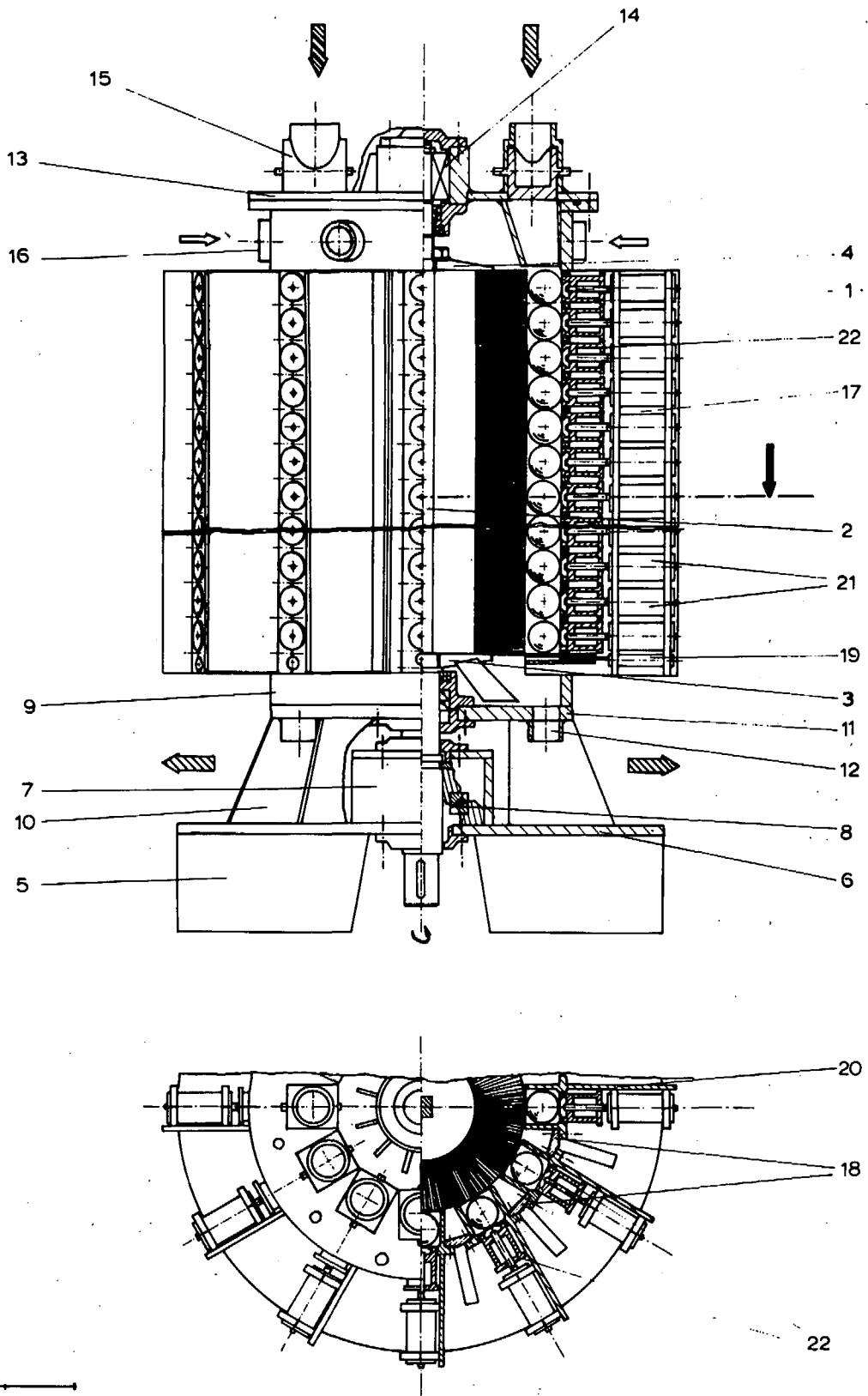


Abb. 67: Prinzipskizze einer Kugelaufbürstmaschine (Techniktyp) - Erläuterung im Text -

Auf einem Ständer (5) mit einer Grundplatte (6) sitzt das untere Lagergehäuse (7) eines Traglagers als Axial-Pendelrollenlager (8) mit entsprechenden Dichtungselementen. Das zylindrische Gehäuse (9) der Bürste steht auf mehreren Tragrippen (10). Es besteht aus Bodenplatte, Gehäusemantel und Deckel.

In die Bodenplatte (11) sind Austragsöffnungen (12) für das Bürstprodukt gebohrt. Dieses muß wegen der extrem schlechten Fließfähigkeit im Umluftbetrieb abgesaugt werden.

Der Gehäusedeckel (13) ist aufgeflanscht und für den Bürstwechsel schnell abschraubbar. Er nimmt das Gehäuse für das obere Radiallager samt Dichtungselemente (14) auf. Über aufgeschweißte Kugelschleusen (15) wird die Maschine beladen.

Im oberen Teil des Gehäusemantels befinden sich die Eintrittsöffnungen für das Transportgas (16). Weiterhin hat der Gehäusemantel die Funktion, mehrere Kugelandrückvorrichtungen (17) bzw. Schleifkörperandrückvorrichtungen aufzunehmen. Dazu ist er über die gesamte Höhe der Bürste käfigartig ausgeführt. Bei einem Bürstdurchmesser von 30 cm können konstruktiv 12 solcher Vorrichtungen von außen an den verstärkten Käfigleisten des Gehäusemantels (18) angeschraubt werden, so daß insgesamt ein staubdichter Arbeitsraum entsteht. Zur Erzielung einer möglichst gleichmäßigen Bürstbeanspruchung bietet sich eine vertikale Versetzung von jeweils 2,5 cm an. Wieviel der möglichen Plätze mit Andrückvorrichtungen besetzt werden, hängt hauptsächlich von der Verschleißgeschwindigkeit des benutzten Drahtwerkstoffes ab, denn der notwendige Schärfvorgang kann erst erfolgen, wenn alle am Umfang der Bürste angeordneten Brennelemente aufgebürstet sind.

Ein elektro-magnetischer Schieber (19) bildet das unterste Element einer jeden Kugelandrückvorrichtung. Er verhindert im geschlossenen Zustand, daß die beim Beladungsvorgang über die Kugelschleusen zugeführten Brennelemente durch den vertikalen, aus Stahlblechen gebildeten Schacht fallen und durch die Bürstgutaustragsöffnungen die Maschine unbearbeitet verlassen. Die Bürste begrenzt die offene Seite des Schachtes. Hier befindet sich die eigentliche Zerkleinerungszone.

Ein Schenkel des Schachtes ist als Halteplatte (20) zur Aufnahme weiterer Bauelemente der Kugelandrückvorrichtung (z. B. hydrau-

liche Zylinder) ausgeführt und ragt entsprechend der Baulänge dieser Elemente vom Gehäuse weg.

Befinden sich am Ende eines Beladungsvorgangs, so wie im Aufriß von Abb. 67 dargestellt, in jeder Kugelandrückvorrichtung alle aufnehmbaren geschälten Brennelemente im Arbeitsraum, so wird gleichzeitig Druck auf die hydraulischen Zylinder (21) gegeben. Die daraus resultierenden Kräfte werden über Stangen auf die Andrückhülsen (22) weitergeleitet, die die BE an die sich drehende Bürste pressen.

Das Ende einer jeweiligen Andrückhülse ist als scharfe Lochblende ausgeführt, die mit Hilfe des aufgebrachten Druckes das jeweilige Brennelement während des Bürstvorganges hält und zentriert und dessen Rotation verhindert. Die Andrückhülsen werden durch Bohrungen im Stahlblech der Schächte geführt.

Zusätzlich zur Erzeugung der Andrückkraft muß der hydraulische Zylinder in jeder Zwischenstellung seines Hubbereiches arretierbar sein. Diese Positionierfunktion ermöglicht, bei Abnahme des Bürstdurchmessers aufgrund des Materialabriebes beim Beladungsvorgang die radiale Ausdehnung des Arbeitsraumes im notwendigen Maße zu steuern. Die Maschine kann noch beladen werden, wenn sich die Länge der Bürstdrähte um 2,5 cm verkürzt hat (konstruktive Auflage zur Berechnung des Leistungsvermögens einer Bürste).

Nach Ende des Bürstvorganges werden die Andrückhülsen entsprechend dem Bürstverschleiß in die "Beladungsstellung" gesteuert, wobei die unaufgebürsteten Brennelementreste bei geöffnetem Schieber (19) ebenfalls über die Austrittsöffnungen (12) abgezogen werden.

Der Schärfvorgang schließt sich an. Er wird bei entgegengesetzter hoher Drehzahl der Bürste mit Hilfe einer oder zwei ebenfalls versetzter, prinzipiell gleichartiger Schleifkörperandrückvorrichtungen durchgeführt, bei denen lediglich die Andrückhülsen der Kugelandrückvorrichtung durch zylindrische Profilschleifstifte ersetzt sind, deren Rotationsachsen parallel zu der der Bürste verläuft.

Wegen den in Kapitel 4.2.4 beschriebenen Randeffekten ist die Annahme berechtigt, daß bei Einsatz der erprobten Bürste mindestens zwei versetzte Kugelandrückvorrichtungen angebracht werden können

und daß für diesen Beladungsgrad die experimentell ermittelten Ergebnisse nach Abb. 66 übertragbar sind.

Bei einer Bürsthöhe von 1 m werden in diesem Fall 40 geschälte Brennelemente gleichzeitig bearbeitet. Bei einer zugrundegelegten Bürstzeit von ca. 90 Minuten entspricht dies einem Brennelement-Durchsatz von ca. 27 BE_o/h . Diese Angabe ist als experimentell, speziell für die erprobte Bürste mit relativ weichem Stahldraht, ermittelter Mindestwert anzusehen.

Werden durch Einsatz eines härteren Drahtwerkstoffes bei 10 Kugelandrückvorrichtungen Bürstzeiten von 30 Minuten erzielt, so entspricht dies einem Brennelement-Durchsatz von 400 BE_o/h . Eine theoretische Vorhersage des zu erwartenden Durchsatzes in Abhängigkeit von der Drahtstärke ist unmöglich; eine diesbezügliche Optimierung kann nur durch ein spezielles Programm bei Inbetriebnahme der Kugelaufbürstmaschine durchgeführt werden.

4.4 Die Schäl-Bürst-Brech-Aufbereitung

Die Anwendungs- und Einsatzmöglichkeiten der Kugelaufbürstmaschine und die Eigenschaften des durch sie erstellten Bürstgutes lassen ein 3-stufiges Verfahren zur trocken-mechanischen Zerkleinerung mit gleichzeitiger Graphit-Schwermetall-Trennung - die Schäl-Bürst-Brech-Aufbereitung - als besonders vorteilhaft erscheinen. Der vorgeschlagene Gesamtprozeß ist dem vereinfachten Verfahrensfließbild der Abb. 68 zu entnehmen.

Die in der folgenden Beschreibung angegebenen Zahlenwerte stellen im "kalten" Laborexperiment ermittelte Durchschnittsmassen eines Mischoxid-Brennelementes dar.

Erste Bearbeitungsstufe bildet das Kugelschälen, wo bei brennstofffreie Brennelementzone in einer Kugelschälvorrichtung (1) abgetrennt und der anfallende Graphit (~ 82 g) direkt der Graphitverfestigung (8) zugeführt wird. Wegen der Oberflächenbeschaffenheit der in der Kugelschälfräse geschälten Brennelemente eignet sich diese besonders, da sie den Andrückmechanismus der Kugelaufbürstmaschine (2) verbessert.

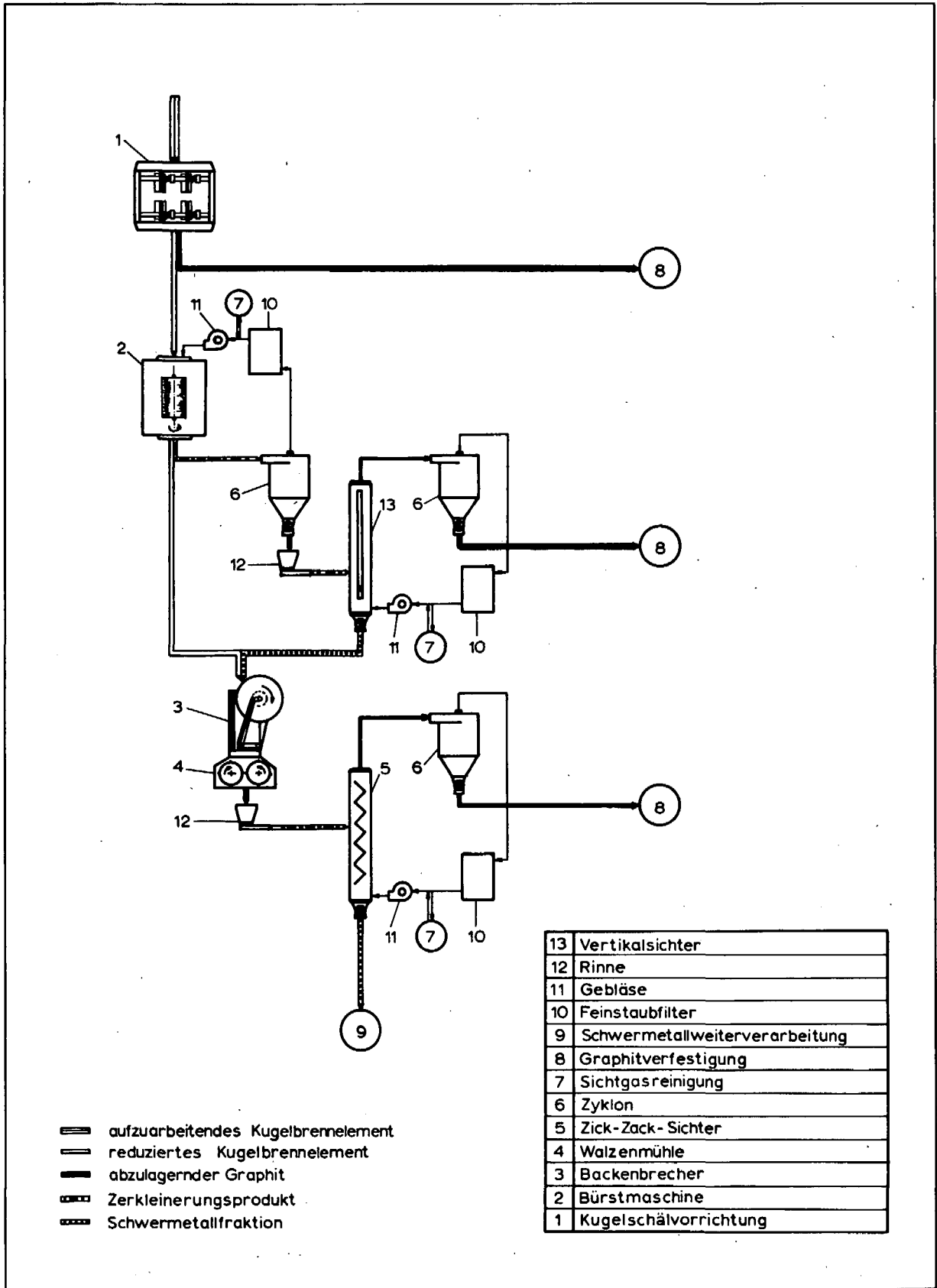


Abb. 68: Vereinfachtes Verfahrensfließbild der Schäl-Bürst-Brech-Aufbereitung

Diese wird über Fallrohre und Kugelschleusen mit den geschälten Brennelementen (~ 126 g) beladen. Das anfallende Bürstgut wird pneumatisch über einen Hochleistungszyklon mit aufgesetzten Filterkerzen (6) abgeschieden und über eine Zellenradschleuse und Dosierrinne (12) einem Vertikalsichter (13) zugeführt.

Hier erfolgt eine scharfe Graphit-Brennstoffpartikel-Trennung. Etwa weitere 94 Gramm schwermetallfreier Matrixgraphit (< 0,1 % Schwermetallverlust) werden im Zyklon (6) abgeschieden und ebenfalls zu einem endlagerfähigen Abfallprodukt verfestigt. Die Brennstoffpartikeln (~ 22,5 g) fallen im Sichtstrom nach unten aus, Zellenradschleuse und Dosierschnecke besorgen den Transport zur dritten Bearbeitungsstufe.

Diese hat die doppelte Aufgabe, den verbliebenen Kugelrest (~ 9,5 g) zu zerkleinern und sämtliche Brennstoffkerne freizulegen. Eine Kombination aus Backenbrecher (3) zur Grobzerkleinerung der Kugelkappen und darunterliegender Walzenmühle (4) zum Brennstoffaufschluß erfüllt diese Forderung zufriedenstellend. Insgesamt werden hier durchschnittlich 32 Gramm pro Mischoxid-Brennelement zerkleinert.

Nach dieser notwendigen Brechstufe ergeben sich vier mögliche Alternativen zur Weiterverarbeitung der Schwermetallfraktion:

1. Die Grobgutfraktion einer weiteren Zick-Zack-Windsichtung der Schwermetallfraktion wird dem Auflöser zugeführt.
2. Die Schwermetallfraktion wird direkt dem Auflöser zugeführt.
3. Der Graphit der Grobgutfraktion einer weiteren Zick-Zack-Windsichtung der Schwermetallfraktion wird verbrannt, und die Verbrennungsrückstände werden dem Auflöser zugeführt.
4. Der Graphit der Schwermetallfraktion wird direkt verbrannt, und die Verbrennungsrückstände werden dem Auflöser zugeführt.

Abb. 69 zeigt labormäßig ermittelte Richtwerte für die Alternativen 1 und 2, die im Prinzip ein modifiziertes GRIND-LEACH-HEAD-

END-Verfahren verwirklichen. In den Versuchen 1 - 4 und 7 und 8 wurde jeweils der Brennelementrest und die Partikelfraktion (Grobgutfraktion) der Bürstversuche 9 - 14, Abb. 66, weiterbehandelt.

Eine hochoberflächlich rotierende Diamantscheibenmühle [2] mit einer Mahlspalteinstellung von 650 μm schloß den Kernbrennstoff auf. Die Sichtung erfolgte gegebenenfalls mit dem schon beschriebenen Zick-Zack-Windsichter. Die aufzulösende Schwermetallfraktion wurde 24 Stunden in 50 ml siedendem Thorex-Reagenz behandelt, Rückstände abgefiltert und jeweils dreimal mit 50 ml 90°C warmen Wasser gespült. Die Schwermetallmassen des Zick-Zack-Windsichter-Feingutes, des Filtrerrückstandes und der Schwermetalllösung wurden durch Differenzwägung bzw. Titration und der Kohlenstoffgehalt der Schwermetalllösung infolge Graphit- HNO_3 -Reaktion durch CHN-Analyse quantitativ bestimmt.

Zu Alternative 1: Ein kernschonender Brennstoffaufschluß gewährleistet eine hohe Trennschärfe der Schwermetallfraktion. Da mit steigender Mahlorgandrehzahl mit höherem Feingutanteil im Mahlprodukt zu rechnen ist, eignet sich dazu eine Walzenmühle besser als die benutzte Diamantscheibenmühle. Letztlich bestimmt das Anströmvolumen im Zick-Zack-Windsichter die Feingutmasse und deren Schwermetallkontamination. Versuche 1 - 4 der Abb. 69 zeigen, daß durch diese Verfahrensweise die Graphitmasse in der Grobgutfraktion auf 2,5 - 4 g/BE reduziert und dabei mit ca. 0,1 g Schwermetallverlust pro Brennelement (sm ~ 0,8 %) gerechnet werden kann.

Versuche 5 und 6 stellen Vergleichsversuche dar (11 g $(\text{U/Th})\text{O}_2$; 0,8 g SiC; 4 g Graphit der brennstofffreien Zone $\leq 200 \mu\text{m}$). Da normalerweise ein beträchtlicher Teil des Graphits der Grobgutfraktion pyrolytisch abgeschiedener Kohlenstoff ist, sollten hieraus Erkenntnisse über unterschiedliche Reaktionsraten von Graphit bzw. PyC mit HNO_3 gewonnen werden. Zwar wurden wie vermutet beim Schalengraphit die absolut höchsten Kohlenstoffwerte m_{Cgel} gemessen, jedoch ist dieses Ergebnis recht unzuverlässig, da die Höhe der ermittelten m_{Cgel} -Werte unter der Genauigkeitsgrenze der Analysenmethode lag.

Lfd. Nr.	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10
<u>Brechstufe</u>										
Brennelementrest	g	9,34	9,19	8,87	-	-	9,60	9,52	-	-
Partikelfraktion	g	20,60	21,71	22,89	-	-	23,13	22,99	-	-
<u>Zick-Zack-Windsichter</u>										
Anströmvolumen	\dot{V}									
Grobgut	Nm^3/h	13	15	15	15	-	0	0	-	-
Feingut	Nm^3/h	15,75	14,87	14,76	14,76	-	32,73	32,51	-	-
	Nm^3/h	13,39	16,03	17,00	17,00	-	0	0	-	-
	Nm^3/h	2,81	3,48	3,75	3,75	-	0	0	-	-
	Nm^3/h	0,10	0,11	0,11	0,11	-	0	0	-	-
<u>Auflöser</u>										
Filterrückstand	m_1	4,59	2,88	3,29	3,29	5,09	21,56	22,02	22,12	21,70
	m_2	0,78	0,21	0,58	0,58	1,09	4,54	4,66	4,58	4,27
	$\text{m}_{\text{SMgel.}}$	0	0,15	0,24	0,24	0,22	0,84	0,79	0,75	0,50
	m_C	3,81	2,67	2,71	2,71	4,00	17,02	17,36	17,54	17,43
	$\text{m}_{\text{SMgel.}}$	11,16	11,99	11,47	11,47	10,69	11,17	10,49	10,43	10,39
	$\text{m}_{\text{Cgel.}}$	0,01	0	0,02	0,02	0,04	0	0	0,01	0,01
Schwermetallverlust	sm	0,9	2,1	3,0	3,0	2,0	7,0	7,0	6,7	4,6

Abb. 69: Richtwerte für die Alternativen 1 und 2 eines modifizierten GRIND-LEACH-HEAD-END-Verfahrens

Zu Alternative 2: Mit der Durchführung der Versuche 7 - 10 wurde der direkte Weg der Auflösung verfolgt. Die Zusammensetzung der Vergleichsproben Nr. 9 und 10 betrug: 11 g (U/Th)O₂; 3,8 g SiC; 17 g Graphit der brennstofffreien Zone \leq 200 μ m. Die relativ hohen Schwermetallverluste im Filterrückstand sind von der verfahrenstechnischen Durchführung der Filtration abhängig, so daß die hier ermittelten Laborgrößen als durchaus verbesserungsfähig anzusehen sind.

Analytisch abgesichert kann aus allen Versuchen entnommen werden, daß die gelöste Kohlenstoffmenge stets kleiner als 0,05 g/BE ist. Dieser niedrige Wert gibt Anlaß zu der Hoffnung, daß durch die Schäl-Bürst-Brech-Aufbereitung die Realisierung eines modifizierten GRIND-LEACH-HEAD-END-Verfahrens ermöglicht wird. Inwieweit die Anwesenheit von Kohlenstoff im anschließenden chemischen Teil der HTR-Wiederaufarbeitung störend wirkt, kann im Rahmen dieser Arbeit nicht beurteilt werden.

Zu Alternativen 3 und 4: Der Entscheid zugunsten dieser beiden Möglichkeiten hat die Notwendigkeit der Entwicklung einer Verbrennungsstufe zur Folge. Dabei kann auf die vorliegenden Erfahrungen beim Verbrennungs-HEAD-END zurückgegriffen werden. Jedoch geht damit ein grundsätzlicher Vorteil der Alternativen 1 und 2 verloren, bei denen die ausschließlich trocken-mechanische Behandlung der aufzulösenden Schwermetallfraktion erhebliche Spaltproduktfreisetzungen durch erhöhte Abdampfvorgänge infolge der Kristallgitterumwandlung der UO₂-Kerne zu feinem U₃O₈-Staub verhindert. Die Schwermetallauflösung selbst kann unter gleichen Voraussetzungen wie beim gegenwärtig geplanten Konzept stattfinden.

Bei der Schäl-Bürst-Brech-Aufbereitung, die nur über geschlossene Sichtgaskreisläufe verfügt, braucht deshalb keine eigene Abgasreinigung entwickelt werden. Es bietet sich prinzipiell die Möglichkeit, die Sichtgasreinigung an die Auflöserabgasreinigung anzukoppeln. Das Sichtgas kann dabei unter dem Gesichtspunkt einer wirkungsvollen Reinigung des Auflöserabgases (z. B. Inertgas) ausgewählt werden.

Die Tatsache, daß bei der Schäl-Bürst-Brech-Aufbereitung alle Prozesse bei Raumtemperatur und unter Normaldruck vonstatten

gehen, erleichtert ihre sicherheitstechnische Auslegung für einen Heiß-Zellen-Betrieb.

5. KLASSIFIZIERUNG UND KONDITIONIERUNG DES TROCKEN-
MECHANISCH ABGETRENNTEN GRAPHITS UND DESSEN END-
LAGERUNG IN GROSSRÄUMIGEN SALZKAVERNEN

Für die direkte Endlagerung von carbidischen AVR-Brennelementen im Versuchsendlagerbergwerk ASSE II wird gegenwärtig ein Konzept erprobt, bei dem in vier Bohrlöchern ($D = 0,56$ m; Bohrlochtiefe 30 m; Bohrlochabstand 5 m) ca. 80 stapelbare Stahlkannen gelagert werden, deren jeweiliges Radioaktivitätsinventar zwei Jahre nach der Entnahme der Brennelemente aus dem Reaktor etwa 22.000 Ci beträgt. In jeder Kanne befinden sich ca. 950 Brennelemente. Dieses entspricht einer auf das Volumen der Verpackungskanne bezogenen spezifischen Aktivität von 92,5 Ci/l und einer Wärmeleistung pro Einlagerungskanne durch Nachwärmeproduktion von ca. 72 W. Eine Temperaturvorausberechnung ergibt bei einer angenommenen Umgebungstemperatur des Salzes von 40°C eine maximale Temperatur in der Kanne von $43,3^{\circ}\text{C}$ und eine Temperaturerhöhung des umgebenden Salzes von maximal 1°C [73].

Bei einer derartigen Endlagerung z. B. des Graphits der abgetrennten brennstofffreien Zone mit einer Dichte von $1,7$ g/cm³ muß pro Tag etwa ein Bohrloch erstellt, mit 20 Kannen gefüllt und abgeschlossen werden (50 GW_e Wiederaufarbeitungskapazität).

Die Problematik der Endlagerung des abgetrennten Graphits ergibt sich durch die Menge der abzulagernden Massen.

In diesem Kapitel werden Möglichkeiten der Konditionierung und Endlagerung aufgezeigt. Mit Hilfe eines vereinfachten Modells wird zuerst eine Klassifizierung definierter Abfallspezifikationen durchgeführt. Inwieweit die Ergebnisse dieses Modells der Realität entsprechen, kann nur experimentell durch eine Vielzahl von Heiß-Zellen-Versuchen geklärt werden. Insofern sind die auf diesen Ergebnissen basierenden Konsequenzen über die Endlagermöglichkeiten des abgetrennten Graphits mit Vorbehalt zu betrachten.

5.1 Klassifizierung des abgetrennten Graphits

Je nach spezifischer Radioaktivität unterscheidet man drei Abfallklassen [73]:

- hochaktive Abfälle HAW mit mehr als 10^4 Ci/m³,
- mittelaktive Abfälle MAW mit $0,1-10^4$ Ci/m³,
- schwachaktive Abfälle LAW mit weniger als $0,1$ Ci/m³.

Weiterhin muß dem Aggregatzustand und den besonderen chemischen oder physikalischen Eigenschaften des Abfalls Rechnung getragen werden. Schwachaktive Abfälle sind ohne zusätzliche Abschirmung vom Personal handhabbar. Mittelaktive Abfälle benötigen für den Transport eine Strahlenabschirmung, stellen aber noch keine Anforderungen an die Abfuhr der radioaktiven Zerfallswärme [74].

Die folgenden Nuklidinventarabschätzungen gelten für das THTR-300-Brennelement, identisch dem Mischoxid-Brennelement. Nuklearspezifische Daten sind der Abb. 70 zu entnehmen. Die Aufarbeitung der bestrahlten Brennelemente erfolgt nach einer Abklingzeit von 2 Jahren, wobei der abgetrennte Graphit direkt konditioniert und abgelagert wird.

Aufgrund der experimentellen Ergebnisse werden folgende zwei Abfallzusammensetzungen verglichen:

Spezifikation A: 70 % abgetrennter Graphit mit 2,5 % Schwermetallverlust (82 g Schalen-graphit + 48 g Sichtgut = 130 g/BE nach Verfahren II),

Spezifikation B: 95 % abgetrennter Graphit mit 0,1 % Schwermetallverlust (82 g Schalen-graphit + 94 g Sichtgut = 176 g/BE nach der Schäl-Bürst-Brech-Aufbereitung ohne sekundäre Sichtung).

$m_{Th\ 232}$	g	10,20	Anfangskomposition
$m_{U\ 234}$	g	$1,03 \cdot 10^{-2}$	
$m_{U\ 235}$	g	0,96	
$m_{U\ 238}$	g	$6,27 \cdot 10^{-2}$	
Abbrand	%-fima	10,03	Abbranddaten
	MWd/t	93.100	
Verweilzeit in Core	d	1954	
BE-Leistung	kW	0,4648	
Aktivität	Ci/BE	969	Reaktorentnahme
Nachwärmeproduktion	W/BE	8,90	
Aktivität	Ci/BE	20,42	730 d Abklingzeit
Nachwärmeproduktion	W/BE	$8,47 \cdot 10^{-2}$	

Abb. 70: Nukleardaten des THTR-300-Brennelementes nach [75]

5.1.1 Vereinfachtes Modell

Für die Graphitmasse existieren prinzipiell drei verschiedene Quellen der Kontamination durch das jeweilige Nuklid i :

- Die Matrixgraphitkontamination A_C^i , hervorgerufen durch
 - aus dem Kühlgas eindiffundierte Aktivierungs- und Spaltprodukte,
 - aus den Brennstoffpartikeln herausdiffundierte Spaltprodukte,
 - Spaltprodukte aus der Uran-Kontamination des Matrixgraphits.
- Die Kontamination in bzw. durch die mit abgetrennten Hüllbruchstücke A_{HBR}^i .

- Die Kontamination durch mit abgetrennte Kernbruchstücke A_{SMV}^i .

Durch Addition sämtlicher Nuklidaktivitäten der einzelnen Quelltherme ergibt sich die Gesamtradioaktivität A_A bzw. A_B der definierten Abfallspezifikationen A und B bezüglich der Bearbeitung eines Mischoxid-Brennelementes:

$$A_{A/B} = \sum_i A_{A/B}^i = \sum_i (A_{C A/B}^i + A_{HBR A/B}^i + A_{SMV A/B}^i) \quad [Ci/BE]$$

5.1.1.1 Die Matrixgraphitkontamination

Die Matrixgraphitkontamination durch ein Nuklid i addiert sich aus der Gesamtaktivität dieses Nuklides in der brennstofffreien Zone (BFZ) und der Brennstoffzone (BZ):

$$A_{C A/B}^i = A_{C BFZ}^i + A_{C BZ A/B}^i \quad [Ci/BE]$$

$$\text{mit} \quad A_{C BFZ}^i = 82 \cdot C_{C BFZ}^i \quad [Ci/BE]$$

$$A_{C BZ A}^i = 48 \cdot C_{C BZ}^i \quad [Ci/BE]$$

$$A_{C BZ B}^i = 94 \cdot C_{C BZ}^i \quad [Ci/BE]$$

$C_{C BFZ}^i$: gemittelte Konzentration des Nuklides i in Ci pro Gramm Matrixgraphit in der brennstofffreien Zone

$C_{C BZ}^i$: gemittelte Konzentration des Nuklides i in Ci pro Gramm Matrixgraphit in der Brennstoffzone

Die Konzentrationswerte wurden über die in [76] experimentell nachgewiesenen Radioaktivitätsprofile in der brennstofffreien Zone gemittelt. Da die meisten Nuklide ein wannenförmiges Profil aufweisen, wird konservativ angenommen, daß die Konzentration des Nuklides i in der Brennstoffzone betragsmäßig gleich derjenigen in der brennstofffreien Zone ist:

$$C_{C \text{ BZ}}^i = C_{C \text{ BFZ}}^i$$

Lediglich für das Kohlenstoffnuklid C-14 erfolgte nach [27] eine Differenzierung:

$$C_{C \text{ BFZ}}^{C-14} = 4 \cdot 10^{-6} \text{ Ci/gC}$$

$$C_{C \text{ BZ}}^{C-14} = 1 \cdot 10^{-6} \text{ Ci/gC}$$

5.1.1.2 Die Kontamination in bzw. durch die mit abgetrennten Hüllbruchstücke

Zur quantitativen Erfassung dieses Wertes ist für jedes Nuklid die Kenntnis notwendig, wieviel Prozent h^i des gesamten jeweiligen Nuklidinventars eines Brennelementes A_{BE}^i sich in der Partikelumhüllung befindet.

Zwar ist das im IRE der KFA Jülich entwickelte numerische Diffusionsprogramm SLIPPER in der Lage, eine ortsabhängige Nuklidkonzentration für ein Kernbrennstoffteilchen und dessen einzelne Hüllschichten zu berechnen, jedoch existieren z. Zt. nur für einige Nuklide (Ag, Cs, Sr, Kr, Xe, J) die dazu benötigten Diffusionskonstanten [77-81].

Für alle unter Normalbedingungen festen Nuklide ist in dieser Abschätzung dieser Anteil mit 5 % berücksichtigt. Lediglich Cäsium nimmt eine Sonderstellung ein. Die Ausmessung eines berechneten Cs-Profils lieferte ein h^{Cs} von ca. 12 % [82]. Edelgase und Tritium befinden sich zu 7 % in der Partikelhülle. Dieser Frei-setzungsanteil ergab sich bei der Verbrennung von (U/Th)O₂-BISO-Partikeln für das relativ langlebige Kr-85 [12].

Die Kontamination eines Nuklides i in bzw. durch die mit abgetrennten Hüllbruchstücke berechnet sich dann nach folgender Gleichung:

$$A_{HBR \text{ A/B}}^i = A_{BE}^i \cdot h^i \cdot BR_{M.O.-BE \text{ A/B}} \cdot a_{A/B} \quad [Ci/BE]$$

- mit A_{BE}^i : gesamtes Nuklidinventar eines Nuklides i in einem Brennelement in C_i/BE
- h^i : Anteil eines Nuklides i in sämtlichen Partikelhüllen am gesamten Nuklidinventar dieses Nuklids in einem Brennelement
- $BR_{M.O.-BE A/B}$: SiC-Hüllbruchrate für Spezifikation A bzw. B
- $a_{A/B}$: Anteil des Hüllbruches, der im abzulagernden Graphit enthalten ist

Die Nuklidinventardaten A_{BE}^i basieren auf einer mit dem Programm ORIGEN durchgeführten Rechnung [75]. Abb. 71 enthält die der Berechnung zugrundegelegten verfahrenstechnischen Kennwerte.

Spezifikation	A	B	Bemerkung
$BR_{M.O.-CP}$	0,50 -	- 0,20	nach Abb. 34 nach Abb. 66
a	0,95 -	- 0,50	nach Abb. 69: $(m_2 - m_{SMgel.})$ - Werte der Versuche 3 und 4

Abb. 71: Verfahrenstechnische Kennwerte

Die Frage, wieviel Hüllmaterial im Feingut des Bürstgutes vorliegt, entzieht sich der experimentellen Ermittlung. Die angenommenen 50 % sind aufgrund einer optischen Untersuchung des Hüllbruches des Bürstgutes als hoch einzuschätzen.

5.1.1.3 Die Kontamination durch mit abgetrennte Kernbruchstücke

Haupteinflußgröße stellt der experimentell ermittelte Schwermetallverlust sm dar. Im Brennstoffkern befindet sich nur noch der Anteil $1-h^i$ eines Nuklides, so daß folgende Gleichung gilt:

$$A_{SMV A/B}^i = A_{BE}^i (1-h^i) \cdot sm_{A/B}$$

mit $sm_A = 0,025$

$sm_B = 0,001$

5.1.2 Radioaktivität und Wärmeleistung

In Abb. 72 sind die nach dem beschriebenen Modell berechneten Nuklidradioaktivitäten aufgelistet. In den Fällen, in denen die Radioaktivität eines Nuklides eines Elementes die Summe der Radioaktivitäten aller anderen Nuklide desselben Elementes um den Faktor 10 überwiegt, ist nur dieses Nuklid aufgelistet. Ebenfalls wurden aus Gründen der Übersichtlichkeit Nuklidaktivitäten $< 10^{-10}$ Ci/BE nicht in die Tabelle aufgenommen. Jedoch sind alle in [76] nachgewiesenen Matrixgraphitkontaminationen dargestellt. Die errechneten Einzelsummen berücksichtigen die nicht ersichtlichen Werte.

Aus den berechneten Einzelradioaktivitäten wurde über die jeweilige mittlere Zerfallsenergie die radioaktive Wärmeleistung im abzulagernden Graphit bestimmt.

Im Vergleich zu den Kontaminationen durch Hüll- und Kernbruchstücke sind die Matrixgraphitkontaminationen gering: In den abgetrennten 82 g Schalengraphit pro Brennelement verursacht nach einer Abklingzeit von zwei Jahren eine Radioaktivität von ca. $7,2 \cdot 10^{-4}$ Ci/BE eine Nachwärmeleistung von ca. $2 \cdot 10^{-6}$ W/BE.

Für Spezifikation A ergeben sich die höchsten Radioaktivitäten. In den abgetrennten 130 g Graphit pro Brennelement verursacht nach einer Abklingzeit von zwei Jahren eine Aktivität von ca. 1,14 Ci/BE eine Nachwärmeleistung von ca. $5 \cdot 10^{-3}$ W/BE. Wie ersichtlich, stellen die mit abgetrennten Hüllbruchstücke den Hauptanteil. Zwar kann sich die Annahme von $h^i = 0,05$ generell als zu hoch erweisen, jedoch ist zu berücksichtigen, daß allein Cs, dessen h-Wert mit 12 % als einigermaßen abgesichert angesehen werden kann, die Hälfte der berechneten Hüllbruchradioaktivität verursacht.

Ci/BE Nuklid i	BFZ	Spezifikation A				Spezifikation B			
	A ⁱ _{C BFZ}	A ⁱ _{C BZ}	A ⁱ _{HBR}	A ⁱ _{SMV}	A ⁱ	A ⁱ _{C BZ}	A ⁱ _{HBR}	A ⁱ _{SMV}	A ⁱ
H 3	-	-	4,02-04	2,81-04	6,84-04	-	8,47-05	1,13-05	9,60-05
Kr 85	-	-	1,58-02	1,10-02	2,68-02	-	3,32-03	4,41-04	3,76-03
Rn 220	-	-	2,40-05	1,68-05	4,08-05	-	5,05-06	6,72-07	5,73-06
Se 79	-	-	4,20-07	4,20-07	8,40-07	-	8,85-08	1,68-08	1,05-07
Te 125m	-	-	7,41-04	7,41-04	1,64-03	-	1,56-04	2,96-05	2,05-04
J 129	-	-	2,83-08	2,83-08	5,65-08	-	5,95-09	1,13-09	7,08-09
Sr 90	1,38-04	8,07-05	7,01-02	7,01-02	1,40-01	1,58-04	1,47-02	2,80-03	1,79-02
Ag 110m	2,71-07	1,58-07	1,12-05	1,12-05	2,58-05	3,10-07	2,36-06	4,48-07	5,15-06
Cs 134	3,57-05	2,09-05	1,27-01	4,91-02	1,76-01	4,09-05	2,68-02	2,00-03	2,89-02
Cs 137	6,54-05	3,83-05	1,74-01	6,71-02	2,41-01	7,49-05	3,66-02	2,70-03	3,94-02
Ba 137m	-	-	6,77-02	6,77-02	1,35-01	-	1,43-02	2,71-03	1,70-02
C 14	3,28-04	4,80-05	-	-	3,76-04	9,40-05	-	-	4,22-04
Sc 46	1,64-07	9,60-08	-	-	2,60-07	1,88-07	-	-	3,52-07
Cr 51	2,88-10	1,68-10	-	-	4,56-10	3,30-10	-	-	6,18-10
Mn 54	1,62-06	9,46-07	-	-	2,56-06	1,85-06	-	-	3,47-06
Fe 59	1,67-09	9,78-10	-	-	2,65-09	1,91-09	-	-	3,58-09
Co 60	1,47-04	8,62-05	-	-	2,33-04	1,69-04	-	-	3,16-04
Zn 65	2,13-07	1,25-07	-	-	3,38-07	2,44-07	-	-	4,58-07
Y 90	-	-	7,01-02	7,01-02	1,40-01	-	1,47-02	2,80-03	1,76-02
Zr 95	9,84-09	5,76-09	8,38-05	8,38-05	1,71-04	1,13-08	1,76-05	3,35-06	2,14-05
Nb 95	-	-	1,86-04	1,86-04	3,76-04	-	3,92-05	7,44-06	4,71-05
Tc 99	-	-	9,62-06	9,62-06	1,92-05	-	2,03-06	3,85-07	2,41-06
Ru 106	-	-	4,96-03	4,96-03	9,93-03	-	1,05-03	1,99-04	1,24-03
Rh 106	-	-	4,96-03	4,96-03	9,93-03	-	1,05-03	1,99-04	1,24-03
Cd 113m	-	-	1,23-06	1,23-06	2,46-06	-	2,59-07	4,92-08	3,08-07
Sn 123	-	-	2,57-05	2,57-05	5,22-05	-	5,40-06	1,03-06	6,54-06
Sb 125	-	-	1,79-03	1,79-03	3,57-03	-	3,76-04	7,14-05	4,47-04
Ce 141	2,63-11	1,54-11	3,49-08	3,49-08	6,99-08	3,01-11	7,35-09	1,40-09	8,80-09
Ce 144	1,05-06	9,65-07	4,44-02	4,44-02	8,88-02	1,89-06	9,35-03	1,78-03	1,11-02
Pr 144	4,46-07	2,61-07	4,44-02	4,44-02	8,88-02	5,11-07	9,35-03	1,78-03	1,11-02
Pm 147	-	-	3,18-02	3,18-02	6,37-02	-	6,70-03	1,27-03	7,93-03
Sm 151	-	-	1,44-04	1,44-04	2,87-04	-	3,03-05	5,75-06	3,60-05
Eu 152	4,24-06	2,48-06	2,54-03	2,54-03	5,09-03	4,86-06	5,35-04	1,02-04	6,46-04
Eu 155	5,90-07	3,46-07	1,17-03	1,17-03	2,34-03	6,77-07	2,46-04	4,67-05	2,94-04
Tb 160	-	-	2,73-08	2,73-08	5,46-08	-	5,75-09	1,09-09	6,84-09
Ta 182	4,10-07	2,40-07	-	-	6,50-07	4,70-07	-	-	8,80-07
Tl 208	-	-	6,18-06	6,18-06	1,24-06	-	6,18-06	1,30-06	7,48-06
Pb 212	-	-	1,72-06	1,72-06	3,44-06	-	3,61-06	6,86-07	4,31-06
Bi 212	-	-	1,72-06	1,72-06	3,44-06	-	3,61-06	6,86-07	4,31-06
Po 212	-	-	1,10-05	1,10-05	2,19-05	-	2,31-06	4,39-07	2,75-06
Po 216	-	-	1,72-05	1,72-05	3,43-05	-	3,61-06	6,86-07	4,30-06
At 217	-	-	2,66-08	2,66-08	5,32-09	-	5,60-09	1,06-09	6,66-09
Fr 221	-	-	2,66-08	2,66-08	5,32-09	-	5,60-09	1,06-09	6,72-09
Ra 224	-	-	1,72-05	1,72-05	3,44-05	-	3,61-06	6,86-07	3,63-06
Ac 225	-	-	2,66-08	2,66-08	5,32-08	-	5,60-09	1,06-09	6,66-09
Ac 227	-	-	1,66-08	1,66-08	3,32-08	-	3,50-09	6,64-10	4,16-09
Ac 228	-	-	1,45-08	1,45-08	2,89-08	-	3,05-09	5,79-10	3,62-09
Th 228	-	-	1,71-05	1,71-05	3,43-05	-	3,60-06	6,83-07	4,29-06
Pa 231	-	-	9,81-08	9,81-08	1,96-07	-	2,06-08	3,92-09	2,46-08
Pa 233	-	-	2,40-07	2,40-07	4,80-07	-	5,05-08	9,60-09	6,01-08
U 232	-	-	2,20-05	2,20-05	4,40-05	-	4,64-06	8,81-07	5,52-06
U 233	-	-	4,61-05	4,61-05	9,22-05	-	9,70-06	1,84-06	1,15-05
U 234	-	-	6,34-06	6,34-06	1,27-05	-	1,34-06	2,54-07	1,59-06
Np 237	-	-	2,14-07	2,14-07	4,28-07	-	4,51-08	8,57-09	5,37-08
Np 239	-	-	5,42-07	5,42-07	1,08-06	-	1,14-07	2,17-08	1,36-07
Pu 238	-	-	1,56-03	1,56-03	3,11-03	-	3,28-04	6,22-05	3,90-04
Pu 240	-	-	4,77-06	4,77-06	9,55-06	-	1,01-06	1,91-07	1,20-06
Pu 241	-	-	9,69-04	9,69-04	1,94-03	-	2,04-04	3,88-05	2,43-04
Am 241	-	-	6,01-06	6,01-06	1,35-05	-	1,27-06	2,40-07	1,69-06
Cm 242	-	-	1,48-05	1,48-05	3,95-05	-	3,11-06	5,90-07	3,70-06
Cm 244	-	-	6,72-05	6,72-05	1,34-04	-	1,42-05	2,69-06	1,68-05
Σ	0,00072	0,00042	0,66554	0,47572	1,14240	0,00083	0,13980	0,01902	0,16037

Abb. 72: Berechnete Nuklidradioaktivitäten der Abfallspezifikationen

Wegen der geringeren SiC-Hüllbruchrate und des minimalen Schwermetallverlustes wurde für die Spezifikation B trotz höherer Graphitabtrennrate eine deutlich geringere Radioaktivität berechnet: In den abgetrennten 176 g Graphit pro Brennelement verursacht nach einer Abklingzeit von zwei Jahren eine Aktivität von ca. 0,16 Ci/BE eine Nachwärmeleistung von ca. $7 \cdot 10^{-4}$ W/BE.

5.1.3 Qualitative Aspekte über das Verhalten bestrahlter Brennelemente

Die für die Radioaktivitätsabschätzung berücksichtigten Kennwerte wurden im "kalten" Laborexperiment ermittelt. Insofern bezieht sich diese zwar konservative Klassifizierung auf die mechanische Behandlung unbestrahlter Brennelemente.

Beim Reaktorleistungsbetrieb unterliegen sowohl Kern- als auch Strukturmaterialien einer neutronenphysikalischen Bestrahlung. Die daraus resultierenden chemischen und physikalischen Vorgänge haben veränderte Stoffeigenschaften zur Folge.

Die durchschnittliche Zerdrückkraft eines Brennelementes, stellvertretend für die Festigkeit des Matrixgraphits, verändert sich durch den Reaktoraufenthalt nicht signifikant. Lediglich wurde eine leichte Zunahme der Bruchlast in Abhängigkeit von der schnellen Fluenz gemessen.

Diese unwesentlichen Änderungen der Matrixgraphiteigenschaften und der Brennelementoberfläche, siehe Seite 12, haben auf die hier diskutierten Zerkleinerungsmechanismen einen unbedeutenden Einfluß, so daß für die Behandlung bestrahlter Brennelemente mit der gleichen Graphitabtrennrate wie für die Behandlung unbestrahlter Brennelemente gerechnet werden kann. Dies gilt insbesondere für die Abtrennung der brennstofffreien Zone, deren Kontaminationsabschätzung auf Messungen basiert.

Dagegen werden während der Bestrahlung in den Brennstoffpartikeln mechanische Spannungen erzeugt, die folgende Ursachen haben:

- interner Gasdruck von Spaltgasen und CO/CO₂,
- Schwellen des Brennstoffkerns,

- chemische Wechselwirkung des oxidischen bzw. carbidischen Brennstoffkerns mit der PyC-Beschichtung (Amöbeneffekt),
- neutroneninduzierte Dimensionsänderung der Schichtmaterialien.

Da diese Ursachen zu einem geringen Teil schon während des Reaktorbetriebes zu Partikelbruch führen, ist erst recht bei mechanischer Beanspruchung bestrahlter Brennstoffpartikeln in der Zerkleinerungsstufe des HTR-HEAD-END-Verfahrens durch Druck-, Prall- oder Schlagwirkung mit einer Erhöhung der Hüllbruch- und Kernbruchrate zu rechnen. Beides hat eine Steigerung der Kontamination des abgetrennten Graphits zur Folge.

Bezüglich der Bürst-Zerkleinerung gibt die experimentell ermittelte Tatsache, daß der Schwermetallverlust unabhängig von der SiC-Hüllbruchrate ist, Anlaß zu der Hoffnung, daß sich dieser bei der Bearbeitung bestrahlter Brennelemente gegenüber den Ergebnissen an unbestrahlten Brennelementen nicht wesentlich erhöht. Jedoch ist auch bei dieser Beanspruchungsart ein verstärkter Hüllbruch zu erwarten.

Zusammenfassend wird festgestellt, daß die experimentell an unbestrahlten Brennelementen ermittelten Graphitabtrennraten auch an bestrahlten Brennelementen zu erzielen sind, daß sich jedoch vermutlich für die diskutierten Abfallspezifikationen A und B die Qualitätsdifferenz bezüglich Schwermetallverlust und Kontamination im bzw. des abzulagernden Graphits weiter zugunsten der Bürst-Zerkleinerung verschieben wird.

5.2 Konditionierung des abzulagernden Graphits

Die Konditionierung des abzulagernden Graphits sollte bei möglichst niedrigen Temperaturen ablaufen, damit sich niedrig siedende Komponenten nicht in der Abluft anreichern. Dabei muß nach vorheriger Abschätzung der brennbare Graphit als mittelaktiv eingestuft werden.

Die verfahrenstechnisch äußerst einfachen Möglichkeiten zur Konditionierung fester brennbarer Abfälle, das Einzementieren

- des unbehandelten Graphits,
- des kompaktierten Graphits,

werden hier vorgestellt.

Das Gemisch aus Zement und Wasser bezeichnet man als Zementleim, beides reagiert miteinander, der Zement hydratisiert und verfestigt sich nach und nach zu Zementstein. Folgende Massenverhältnisse beim Anmachen des Zementleims spielen dabei und speziell für die hier vorliegende Aufgabenstellung eine Rolle:

C/Z = Graphit-Zement-Wert,
W/Z = Wasser-Zement-Wert,
S/Z = Sand-Zement-Wert,
WG/Z = Wasserglas-Zement-Wert.

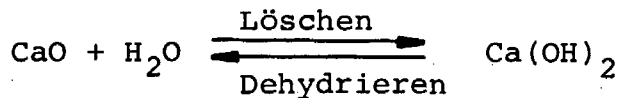
Portlandzementklinker besteht hauptsächlich aus:

Tricalciumsilikat	$3\text{CaO}\cdot\text{SiO}_2$	(Alit)
Dicalciumsilikat	$2\text{CaO}\cdot\text{SiO}_2$	(Belit)
Calciumaluminatferrit	$2\text{CaO}\cdot\text{Al}_2\text{O}_3\cdot\text{Fe}_2\text{O}_3$	(Aluminatferrit)
Tricalciumaluminat	$3\text{CaO}\cdot\text{Al}_2\text{O}_3$	(Aluminat)

Den wesentlichen Beitrag bei der Hydratation der Zementklinkermineralien liefert das Tricalciumsilicat, aus dem sich größere Kristalle Calciumhydroxid $\text{Ca}(\text{OH})_2$ absondern und das Hydratationsprodukt Calciumsilicathydrat $m\cdot\text{CaO}\cdot\text{SiO}_2\cdot n\text{H}_2\text{O}$ bildet. Die Hydratationsprodukte wachsen ausgehend von den Zementkörnern bzw. Zuschlagstoffen in Form zusammenhängender nadelähnlicher Kristalle und verleihen der erhärteten Masse aufgrund ihres Zusammenwuchses die große Endfestigkeit. Dabei wird ein Teil des Wassers chemisch gebunden und ein anderer Teil in den Gelporen zwischen den Kristallnadeln eingeschlossen. Der Rest des unbenötigten Wassers verbleibt in Kapillarporen als freies Wasser. Gel- und Kapillarswasser lassen sich bei 105°C vollständig verdampfen.

Da sich mit steigendem Anteil des freien Wassers die Porosität erhöht, diese wiederum die dominierende Einflußgröße auf die Festigkeit des Zementsteines ist, hängt die Festigkeit hauptsächlich vom W/Z-Wert ab [83,84].

Bei Erhitzung des hydratisierten Tricalciumsilikats vollzieht sich im Temperaturbereich von 490 - 580°C ein erster endothermer Vorgang, bei dem Wasser aus dem Calciumhydroxid abgespalten wird. Dabei bildet sich ein Überschuß an freiem Kalk CaO, der einen bedeutenden Festigkeitsabfall hervorruft. Nach Erkaltung des Zementsteines geht die Löschung des freien Kalks durch die Luftfeuchtigkeit gemäß



vor sich. Die damit verbundene Volumenvergrößerung zerstört den Zementstein weiter [85].

Für Zementprodukte muß als maximal zulässige Temperatur ca. 90°C zugrundegelegt werden, d. h. eine Temperatur unterhalb des Siedepunktes des im Zementstein vorhandenen freien Wassers.

5.2.1 Zementieren des unbehandelten Graphits

Dieses stellt die prinzipiell einfachste Möglichkeit zur Konditionierung des Graphitstaubes zu einem monolithischen homogenen Produkt dar. Die Verarbeitungstechnik ist aus der Betonverarbeitung und -herstellung hinlänglich bekannt. Prozeßvarianten wie Einzementieren durch Vermischen und Fördern der Mischung in ein Endlagerfaß, Einzementieren durch In-Faß-Mischung oder In-Situ-Verfestigung bieten sich an.

Über den Zuschlagstoff Graphit zum hydraulischen Bindemittel Zement liegen keinerlei Untersuchungen vor. Als organischer Leichtzuschlag wurde bisher Holz als Holzwolle, Holzspäne etc. zur Herstellung wärmedämmender Betone verwendet. Durch sogenanntes "Mineralisieren", z. B. durch Vorbehandeln des Holzes mit Wasserglas, wird dabei eine ausreichende Oberflächenbindung zwischen Zementleim und dem Zuschlagstoff erzielt [86].

(Die flüssigen Wassergläser sind filtrierte wässrige Lösungen spezieller Glassorten, die aus Quarzsand SiO₂ und Soda Na₂CO₃ bzw. Pottasche K₂CO₃ erschmolzen werden.)

Desweiteren bewirkt ein Zusatz von geringen Mengen Wasserglas zum Portlandzement PZ eine starke Verringerung der Auslaugrate [87].

5.2.1.1 Volumina und Massen

In Abhängigkeit vom Haupteinflußfaktor für Graphit-Sand-Zement-Gebinde, dem C/Z-Wert, sind in Abb. 73 die jährlich zu erwartenden konditionierten Volumina und Massen für die Spezifikationen A und B dargestellt (50 GW_e Wiederaufarbeitungskapazität). Die homogene Trockenmasse wurde mit viel Wasser, aber ohne Wasserglas, bei andauernder Durchmischung angemacht.

Ober- und Untergrenzkurve der schraffierten Flächen zeigen den Bereich, in dem je nach eingesetzter Verfahrenstechnik die verfestigten Voluminawerte zu erwarten sind. Die obere Kurve gilt für ein Verfahren, bei dem wegen einem hohen W/Z-Wert der dünnflüssige Zementleim mit einer wasserähnlichen Konsistenz während des Abbindens zum Sedimentieren neigt. Dieser "Blutvorgang" hat eine minimale Matrixdichte bei maximaler Porosität zur Folge.

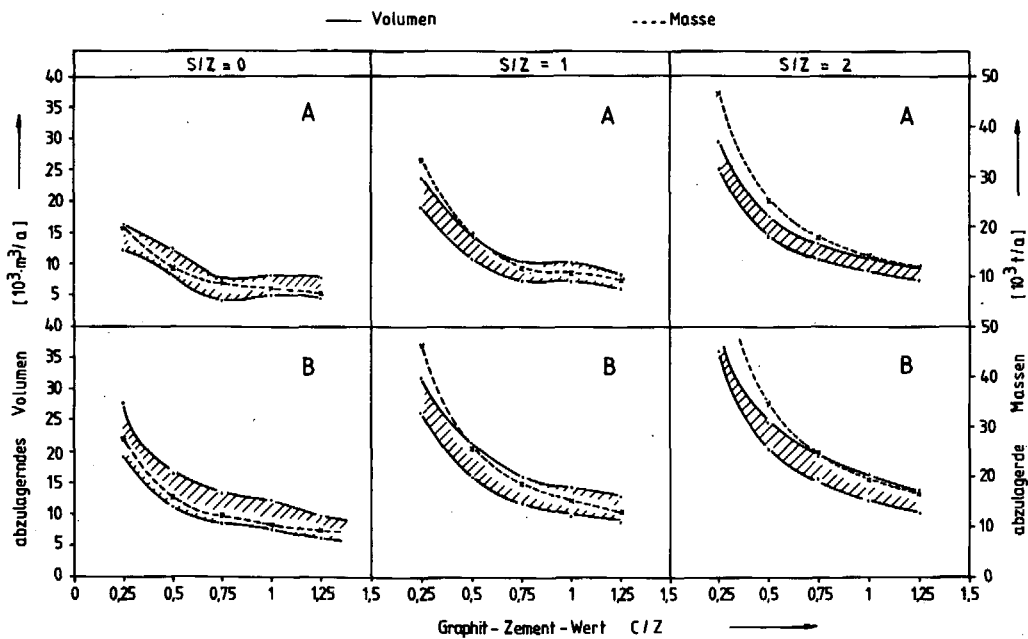


Abb. 73: Volumina und Massen des konditionierten unbehandelten Graphits ($\cong 50 \text{ GW}_e$ Wiederaufarbeitungskapazität)

Diese wurde über die Mengenbestimmung des verdampfbaren Wassers ermittelt und betrug 32 - 64 Vol.-%.

Durch niedrigere W/Z-Werte bei besserer Durchmischung und Verarbeitung der Zementsuspension erhöhen sich Matrixdichten und reduzieren das abzulagernde Volumen. Jedoch dürfte sich dieses kaum günstiger gestalten als durch die untere Grenzkurve angedeutet, bei der durch einen Preßvorgang mit einem Flächendruck von 1,8 MPa eine minimale Porosität von 20 Vol.-% erreicht werden kann [84].

Die gestrichelten Kurven zeigen die Trockenmassen des zementierten Graphits an. Alle Werte nehmen mit sinkendem Graphit- und steigendem Sandanteil zu.

5.2.1.2 Druckfestigkeit

Der W/Z-Wert beeinflusst primär die Festigkeit des Zementsteines, die ihrerseits die dominierende Einflußgröße auf die Festigkeit der abgebundenen Matrix ist. Art, Menge und Festigkeit sowie Form und Oberflächenbeschaffenheit des Zuschlagkorns stellen weitere Einflußgrößen dar.

Die 28-d-Druckfestigkeit der Zweistoff- (S/Z=0) bzw. Dreistoffmatrix (S/Z=1) wurde an zylindrischen Proben ($d = 27,8$ mm, $h = 31,8$ mm) für verschiedene C/Z-Werte und die Spezifikationen A und B ermittelt. Die Proben wurden durch folgende nacheinander ausgeführten Arbeitsvorgänge erstellt:

- Trockene Vermischung von Zement, Graphit und Sand entsprechend den verschiedenen Zusammensetzungen.
- Anmachen unter ständiger Vermischung durch Wasserglas- und Wasserzugabe.
- Abfüllen und Vibrationsverdichten der Substanz in zylindrischen Formkörpern.
- 28-d-Aushärtung unter Wasser.

Der WG/Z-Wert betrug für alle Zusammensetzungen 0,2, während der W/Z-Wert durch die Konsistenz beim Anmachen bestimmt wurde.

Der benutzte Portlandzement PZ 35 besitzt eine Zementsteinfestigkeit nach 28 Tagen von $35 - 55 \text{ N/mm}^2$. Das Natron-Wasserglas hatte folgende Zusammensetzung: $58,6 \% \text{ H}_2\text{O}$; $31,2 \% \text{ SiO}_2$ und $10,2 \% \text{ Na}_2\text{O}$. Aus Abb. 74 sind folgende qualitativen Abhängigkeiten der Druckfestigkeit, ermittelt an noch feuchten Proben, zu entnehmen:

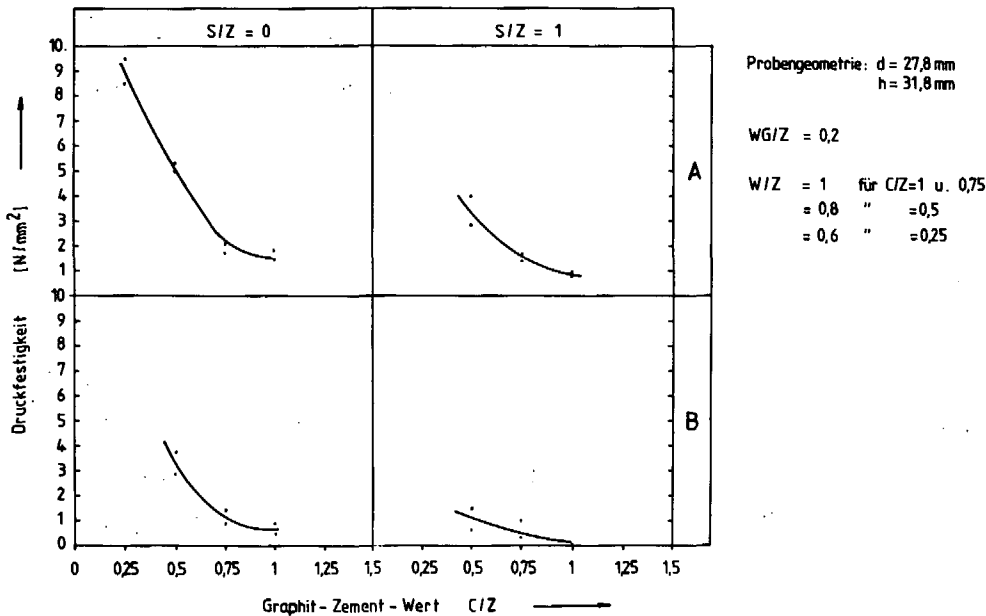


Abb. 74: Druckfestigkeit von Graphit-Zement-Sand-Proben

- Mit steigendem Zementanteil wächst die Druckfestigkeit mit gleichzeitig sinkendem W/Z-Wert.
- Bei konstantem Wasseranteil $W/Z = 1$ steigt die Druckfestigkeit mit wachsendem Zement- und abnehmendem Sandanteil.
- Für Abfallspezifikation B, d. h. für feineren Graphitzuschlag, ergeben sich geringere Festigkeiten.

Die keineswegs hervorragenden absoluten Werte $< 10 \text{ N/mm}^2$ werden auf einen Schmiereffekt des eingelagerten Graphits zurückgeführt, jedoch liegen auch für diskutierte Zement-Salz-Gemische die Druckfestigkeiten unter 15 N/mm^2 [87]. Die geringere Festigkeit bei Sandzuschlägen könnte lediglich in der Reihenfolge der Probenzubereitung begründet liegen, bei der sich wegen des pri-

mären Trockenvermischens der Graphitstaub isolierend um bzw. an die Sandkörner anlagert und derart einer intensiven Haftung zwischen Zementstein und Sandkorn entgegenwirkt. Folglich wäre eine Prozeßführung vorteilhaft, bei der der Graphit dem angemachten Zement-Sand-Leim zugegeben wird.

5.2.1.3 Brandverhalten des konditionierten Graphits

Diese thermogravimetrische Untersuchung hatte zum Ziel, Aufschlüsse über das Reaktions- bzw. Brandverhalten des in der homogenen Graphit-Zement-Matrix verfestigten Graphits zu gewinnen.

Die Probenherstellung erfolgte wie oben beschrieben in den benötigten Tiegel. Auf eine Differenzierung bezüglich der definierten Spezifikationen wurde verzichtet, da beim geringen Volumen der in die Thermowaage einsetzbaren Tiegel die Verfestigung des relativ großkörnigen Schalengraphits, siehe Abb. 22, ein heterogenes Produkt erzeugt hätte. Der Graphit stammte aus der brennstofffreien Zone und besaß eine Maximalkorngröße von 200 µm. Nach der 28-d-Unterwasseraushärtung erfolgte eine 14-tägige Probentrocknung bei 120°C.

Eine maximale Aufheizrate der Proben von 5°C/min imitierte ein plötzliches Schadensfeuer. Die Temperatur wurde entsprechend einer Ölfeuertemperatur bei 900°C festgehalten [88].

In Abb. 75 ist die Reaktionsrate R_C des Graphits in der verfestigten Matrix aufgetragen. Diese ist definiert als:

$$R_C = \frac{m_C(t=0) - m_C(t)}{m_C(t=0) \cdot t} \quad [\text{min}^{-1}]$$

mit $m_C(t=0)$: Graphitmasse in der Probe zu Reaktionsbeginn in g

$m_C(t)$: Graphitmasse in der Probe nach Ablauf der Reaktionszeit t in g

t : Reaktionszeit t in min

Die Verbrennung reinen Graphits ($C/Z=\infty$) zu CO_2 setzte unter den herrschenden Bedingungen bei ca. 550°C ein ($R_C=0,44 \cdot 10^{-3} \text{ min}^{-1}$).

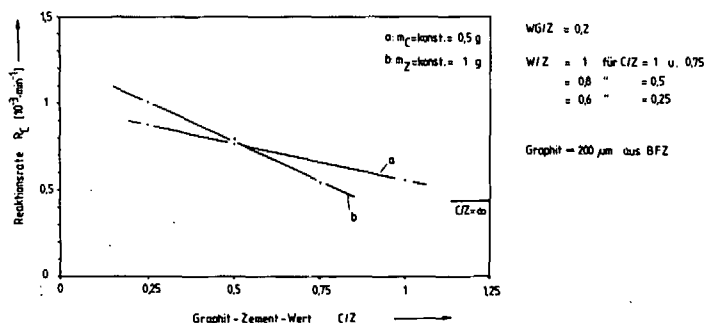
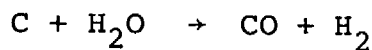


Abb. 75: Reaktionsrate des Graphits in Graphit-Zement-Proben und Luft

Wie erkennbar reagiert der verfestigte Graphit mit Abnahme des C/Z-Wertes, d. h. mit Zunahme des Zementanteils schneller. Bei Temperaturen höher 550^oC bietet die Einzementierung des Graphits also keine brandhemmende, sondern eine reaktionsbeschleunigende Wirkung. Die angesprochene Dehydrierung des im Zementstein vorhandenen Calciumhydroxids bei ca. 500^oC und die sich anschließende Reduktion des dabei entstehenden Wasserdampfes mit glühendem Graphit gemäß der Reaktionsgleichung



erklären diese Tatsache.

5.2.2 Zementieren des kompaktierten Graphits

Durch mechanisches, hydraulisches oder pneumatisches Pressen wird der abgetrennte Graphit unter Zugabe von Bindemitteln zu kompakten Preßlingen verfestigt. Die dazu benötigten Maschinen können von der konventionellen Technik übernommen werden.

Aufgrund der Forderung einer mechanischen Gesamtstabilität des Verfestigungsproduktes erfolgt eine Zementierung der Preßlinge in endlagerfähige Fässer bzw. in-situ, wobei die Aufnahmefähigkeit des Verfestigungsproduktes 20 - 50 Vol.-% beträgt [87].

Endlagerspezifische Eigenschaften verschiedener Preßling-Zusammensetzungen sind Abb. 76 zu entnehmen. Die Zusammensetzung a entspricht der ursprünglichen Graphitmatrix; Zusammensetzungen b und c stellen von der Firma NUKEM, Hanau, entwickelte Matrixmaterialien auf Graphitbasis dar [89].

Aufnahme eines weiteren Verfahrensschrittes und kurzzeitig begrenzte Temperaturbelastung beim Preßvorgang (a: 150 - 180°C beim Bindemittel Phenolharz [90]; b: 140°C; c: 450°C) sind unvermeidliche Nachteile dieser Konditionierung.

Zusammensetzung	Dichte (g/cm ³)	Wärmeleitfähigkeit (W/m·K)	Druckfestigkeit (N/mm ²)	thermische Ausdehnung (10 ⁻⁶ 1/K)	Auslaugrate (cm/Tag)	Literatur
a 100 % C	1,7	105-280	15-120	0,2-0,8	-	91,92
b 80 % C; 20 % S	1,98	27	61,5	-	4·10 ⁻⁴ -2·10 ⁻⁶	89
c 43 % C; 36,7 % Ni; 20 % S	3,42	20-70	106	13-21	4·10 ⁻⁴ -5·10 ⁻⁶	89

Abb. 76: Endlagerspezifische Eigenschaften einiger Matrixmaterialien der Preßlinge

Dagegen treten folgende Vorteile auf:

- Da die Preßlinge mechanisch fester sind als reiner Zementstein, wird der Schmiereffekt des Graphits vollständig unterdrückt und die Druckfestigkeit der Verfestigungsmatrix liegt in der Größenordnung des Zementsteines (PZ: 35 - 55 N/mm²).
- Im Sinne des bei der Einlagerung radioaktiven Abfalls geltenden Barrierenkonzepts wird durch die spezielle Preßlingmatrix eine zusätzliche Barriere gegen die

Auslaugfähigkeit des Endlagerproduktes erstellt.

Abb. 77 zeigt für die drei Preßlingzusammensetzungen a, b und c und eine 20 Vol.-%ige bzw. 50 Vol.-%ige Preßlingaufnahmekapazität die konditionierten Volumina pro Jahr und die zu erwartenden Brennelement-, Aktivitäts- und Nachwärmekonzentrationen. Zusätzlich zu den Abfallspezifikationen A und B sind auch die Werte für die Konditionierung der brennstofffreien Zone und vergleichsweise die für die Zementierung des unbehandelten Graphits (S/Z=0; C/Z=0,5 und 1) aufgeführt.

5.3 Endlagerung des konditionierten Graphits in Salzkavernen (speziell unter dem Gesichtspunkt der Wärmeabfuhr)

Abgesehen von der Versenkung des konditionierten und in Fässern abgefüllten Graphits im Meer unter Einhaltung der Richtlinien der "Londoner Konvention zur Verhinderung der Meeresverschmutzung" [93], bieten sich zwei potentielle Lagerungsmethoden an:

I: Lagerung des konditionierten Graphits in 200 l bzw. 400 l Fässern und großräumigen Salzkavernen und Ausfüllung der Zwischenräume mit Magerzement. Dieses Konzept wird notwendig, wenn Wiederaufarbeitungsanlage und Entsorgungszentrum nicht integriert sind.

Die Fässer werden in mehreren Kampagnen pro Jahr eingelagert und die Hohlräume auszementiert. Die Fässerinhalte sind bei Einlagerung vollständig ausgehärtet. Der erzielbare Füllgrad der Kaverne mit Faßeinheiten liegt bei ca. 40 Vol.-% [94].

II: In-situ Einzementieren des unbehandelten bzw. kompaktierten Graphits in großräumige Salzkavernen. Der lose Graphit bzw. die kompaktierten Preßlinge werden über Tage mit einer Zement-Sand-Suspension zu einem förderbaren Produkt angemischt und durch eine Fallrohrleitung in die Kaverne eingebracht. Aufgrund der geringeren Zahl von Verfahrensschritten ergab eine

Abklingzeit: 2a Aufarbeitungskapazität: $2,65 \cdot 10^7$ BE/a		Zementieren der Preßlinge Aufnahmekapazität									Zementieren des un- behandelten Graphits	
		20 Vol.-%			50 Vol.-%			S/Z=0			S/Z=0,5	C/Z=1
		a	b	c	a	b	c	a	b	c	C/Z=0,5	C/Z=1
BFZ	Volumina m^3/a	6391	6876	7392	2557	2751	2957	5317	3150			
	BE-Konzentration BE/m^3	4146	3854	3585	10366	9634	8963	4984	8412			
	Aktivitätskonzentration Ci/m^3	2,99	2,77	2,58	7,46	6,94	6,45	3,59	6,06			
	Nachwärmekonzentration W/m^3	0,008	0,008	0,007	0,021	0,019	0,018	0,010	0,017			
A	Volumina m^3/a	10132	10901	11715	4053	4361	4687	8429	4994			
	BE-Konzentration BE/m^3	2615	2431	2262	6538	6077	5654	3144	5306			
	Aktivitätskonzentration Ci/m^3	2988	2777	2584	7470	6942	6459	3592	6062			
	Nachwärmekonzentration W/m^3	13,08	12,16	11,31	32,69	30,39	28,27	15,72	26,53			
B	Volumina m^3/a	13718	14771	15868	5487	5903	6346	11150	7624			
	BE-Konzentration BE/m^3	1932	1794	1670	4830	4489	4176	2377	3476			
	Aktivitätskonzentration Ci/m^3	310	288	268	775	720	670	382	557			
	Nachwärmekonzentration W/m^3	1,35	1,26	1,17	3,38	3,14	2,92	1,66	2,43			

Abb. 77: Volumina und Konzentrationswerte des konditionierten Graphits

Schätzung für diese behälterlose Einlagerung einen Kostenvorteil von ca. 20 % gegenüber der konventionellen Faßeinlagerung [95].

Die Kaverne kann bis zu 65 Vol.-% mit Pellets ausgefüllt werden [94].

Bei der Zementierung abzulagernder radioaktiver Massen gilt es, Aspekte der Radiolysegasbildung und Wärmeabfuhr zu berücksichtigen, wobei der Nachweis der Wärmeabfuhr die restriktivere Anforderung darstellt [96].

Setzt man voraus, daß alle durch Zementieren konditionierten Abfälle bei Einbringen unter Tage vollständig ausgehärtet sind, so sind beim Nachweis der Wärmeabfuhr die radioaktive Zerfallswärme und die durch die Endlagerungsmethode bedingte Hydratationswärme beim Erhärten der Zement-Suspension in der Kaverne die bestimmenden Faktoren.

Zur folgenden Betrachtung wird auf die Ergebnisse einer vom BMFT geförderten Studie im Rahmen des Projektes "Lagerung und Verfestigung von MAW/LAW in untertägigen Hohlräumen" zurückgegriffen [94], siehe Abb. 78.

Ein Ergebnis dieser Berechnungen ist, daß während der Einlagerungszeit die Temperaturerhöhung infolge der Zerfallswärme der Spaltprodukte mit ca. 2°C erheblich niedriger ist als der Beitrag der Hydrationswärme (30°C - 130°C). Nach Beendigung der Einlagerungskampagnen - die Kaverne ist nach 5 Jahren zu 90 Vol.-% gefüllt - klingt die Hydratationswärme schnell ab, und die radioaktive Zerfallswärme bestimmt den Temperaturverlauf. 15 Jahre nach Beginn der Einlagerungstätigkeit treten die maximalen Temperaturen auf. Zu diesem Zeitpunkt wird das Temperaturprofil in guter Näherung durch die analytische Gleichung des axialen Temperaturverlaufes in einem gut wärmeleitenden Zylinder mit homogener Wärmequelle beschrieben (kein radiales Temperaturgefälle, Wärmeabfuhr über die Kreisflächen):

$$\theta^{15a}(h) = \theta_{\max}^{15a} - \frac{10^3 \cdot \phi^{15a}}{2 \cdot \lambda_F} \cdot h^2 \quad [^{\circ}\text{C}]$$

mit h : Höhenkoordinate der zylindrischen Kaverne
in m; $h = 0$ auf halber Höhe der eingelagerten
Schichten

θ_{\max}^{15a} : Maximaltemperatur der Kavernenfüllung nach
15a und bei $h = 0$ in $^{\circ}\text{C}$

ϕ^{15a} : radioaktive Nachwärmeproduktion der Kavernen-
füllung nach 15a in W/l

λ_F : Wärmeleitfähigkeit der Kavernenfüllung
 $\lambda_F = 1 \text{ W/m}\cdot\text{K}$ für Zementstein [96]

Am Boden der Kaverne und an der Grenzfläche der letzten einge-
lagerten Schicht zum Restvolumen der Kaverne, das mit inaktivem
Zement verfüllt ist, herrscht die Umgebungstemperatur des Salzes
 $\theta_s = 40^{\circ}\text{C}$. Durch diese Randbedingung und mit Hilfe obiger
Gleichung sind für sämtliche Maximaltemperaturen $\leq 90^{\circ}\text{C}$ die ra-
dioaktiven Nachwärmeproduktionen zehn Jahre nach Beendigung der
Einlagerungstätigkeit berechenbar.

Der Faktor C gibt an, um wieviel die Nachwärmeproduktion zum Zeit-
punkt der Einlagerung des konditionierten Abfalls größer sein
darf als die der Rechnung in [94] zugrundegelegte Größe, damit
nach Beendigung der Einlagerungstätigkeit die maximale Kavernen-
temperatur infolge der Zerfallswärme nicht die obere Grenze von
 90°C überschreitet.

$$C = \frac{\phi^{15a}(\theta_{\max}^{15a} = 90^{\circ}\text{C})}{\phi^{15a}(\theta_{\max}^{15a} = 60/54^{\circ}\text{C})}$$

Die aus dieser Rechnung gewonnenen maximal zulässigen spezifischen
Wärmeleistungen zum Zeitpunkt der Einlagerung (siehe unterste
Zeile der Abb. 78) sind aus zwei Gründen konservativ:

- Die in [94] durchgeführten Rechnungen beziehen sich
auf ein spezielles Nuklidinventar einer in einem Ent-
sorgungszentrum anfallenden MAW/LAW-Abfallzusammen-
setzung. Das Alter dieser Abfälle zum Zeitpunkt der
Einlagerung beträgt 3 Jahre.

	Lagerungsmethode I	Lagerungsmethode II
<p><u>Jährlich einzulagernde Endabfallmenge:</u></p> <p>radioaktives Granulat Zementsuspension Insgesamt ca.</p> <p>spez. Aktivität, bezogen auf die gesamte Menge spez. Wärmeleistung, bezogen auf die gesamte Menge</p> <p>Kavernenvolumen Kavernendurchmesser Kavernenhöhe</p> <p>Einlagerungsdauer Einlagerungsart Schichthöhe</p> <p>Zusammensetzung der Zementsuspension</p>	<p>9730 m³/a ≈ 40 Vol.-% 14595 m³/a ≈ 60 Vol.-% 24325 m³/a</p> <p>9,47 · 10⁻² Ci/l 2,11 · 10⁻⁴ Ci/l</p> <p>133788 m³ 46,8 m 77,9 m</p> <p>5 a 3-18 Schichten/a 0,79-4,72 m</p> <p>W/Z=0,4; S/Z=1-3</p>	<p>9730 m³/a ≈ 65 Vol.-% 5420 m³/a ≈ 35 Vol.-% 15150 m³/a</p> <p>1,52 · 10⁻¹ Ci/l 3,38 · 10⁻⁴ W/l</p> <p>82500 m³ 39,8 m 66,3 m</p> <p>5 a 3-18 Schichten/a 0,67-5,02 m</p> <p>W/Z=0,4; S/Z=1-3</p>
<p>Maximaltemperatur der Kavernenfüllung nach 15 a θ_{15a}^{max}</p> <p>Proportionalitätsfaktor C</p> <p>maximal zulässige spezifische Wärmeleistung für $\theta_{max}^{15a}=90^{\circ}C$, bezogen auf die gesamte Menge</p>	<p>60°C 2,50 5,28 · 10⁻⁴ W/l</p> <p>für: S/Z=2 18 Schichten/a 0,79 m/Schichten</p>	<p>54°C 3,37 1,12 · 10⁻³ W/l</p> <p>für: S/Z=1 12 Schichten/a 1 m/Schicht</p>

Abb. 78: Modellannahmen der Lagerungsmethoden I und II des konditionierten Graphits nach [94]

Da mit wachsendem Alter der Spaltprodukte die spezifische Wärmeleistung der Produkte langsamer abklingt und für die Konditionierung und Endlagerung des abgetrennten Graphits nur eine Abklingzeit von 2 Jahren veranschlagt wurde, verringert sich die spezifische Nachwärmeleistung in diesem Fall schneller als in [94] zugrundegelegt.

- Die effektive Wärmeleitfähigkeit des Kaverneninhalts wird höher sein als angenommen, da der miteingelagerte Graphit als gut wärmeleitender Stoff einen positiven Einfluß auf die Wärmeabfuhr aus dem Endlagerprodukt an das umgebende Salz ausübt.

5.3.1 Endlagerung der Abfallspezifikation A

Um nach den beiden Endlagerungsmethoden die Abfallspezifikation A ablagern zu können, benötigt man ein jährliches Kavernenvolumen von ca. 200.000 m³. Aus diesem indiskutablen Wert folgt, daß aufgrund der relativ hohen radioaktiven Wärmeleistung des abgetrennten Graphits das konventionelle Graphitabtrennverfahren II nach Abb. 50 keine Möglichkeit zur Verringerung der im Wirbelschicht-Verbrennungs-HEAD-END (mit CO₂-Fixierungsprozeß) anfallenden Abfallmengen bietet.

5.3.2 Endlagerung der Abfallspezifikation B

5.3.2.1 Nach Lagerungsmethode I

Aus der berechneten maximal zulässigen spezifischen Wärmeleistung folgt, daß in dem ausgehärteten Fässerinhalt (9730 m³/a) zum Zeitpunkt der Einlagerung eine spezifische Wärmeleistung von $1,32 \cdot 10^{-3}$ W/l vorhanden sein darf. Bei einer zu erwartenden Wärmeleistung des abgetrennten Graphits von $7 \cdot 10^{-4}$ W/BE entspricht dieser Wert einer Brennelementkonzentration von ca. 1900 BE/m³, was für $2,65 \cdot 10^7$ BE/a ein jährliches Faßvolumen von ca. 14.000 m³ erfordert:

14.000 m ³ /a ausgehärtetes Faßvolumen	($\hat{=}$ 40 Vol.-%)
21.000 m ³ /a Zementsuspension	($\hat{=}$ 60 Vol.-%)
<hr/>	
35.000 m ³ /a benötigtes Kavernenvolumen	

Da aufgrund der Hydratationswärme nicht 21.000 m³/a Zementsuspension (S/Z=2; 18 Schichten/a) in einer Kaverne aushärten dürfen, müssen zwei derartige Kavernen gleichzeitig befüllt werden.

Für das Zementieren des unbehandelten Graphits in die Faßeinheiten müssen in Abhängigkeit vom Sandzuschlag folgende C/Z-Werte beim Anmachen eingehalten werden:

S/Z = 0	→	C/Z = 0,4	(5 N/mm ² Druckfestigkeit)
S/Z = 1	→	C/Z = 0,6	(1 N/mm ² Druckfestigkeit)
S/Z = 2	→	C/Z = 0,85	

Beim Zementieren des kompaktierten Graphits in die Faßeinheiten müssen in Abhängigkeit von der Preßlingzusammensetzung folgende Aufnahmekapazitäten der Preßlinge im Faßvolumen realisiert werden:

Preßlingzusammensetzung a	→	19,6 Vol.-%
Preßlingzusammensetzung b	→	21,0 Vol.-%
Preßlingzusammensetzung c	→	22,6 Vol.-%

5.3.2.2 Nach Lagerungsmethode II

Die bei der Bestimmung des jährlich benötigten Kavernenvolumens einzuhaltenden Bedingungen:

- Die maximale zulässige spezifische Wärmeleistung zum Zeitpunkt der Einlagerung, bezogen auf ein Endlager-volumen von 15.150 m³/a darf ca. $1,12 \cdot 10^{-3}$ W/l nicht überschreiten, und
- 65 Vol.-% des Endlagerproduktes müssen ausgehärtet in die Kaverne eingebracht werden,

und die Tatsache, daß bei Konditionierung des Graphits zu Preßlingen lediglich $2.700 - 3.200 \text{ m}^3/\text{a}$ Preßlingvolumen anfällt, fordert eine Inertstoffzugabe, z. B. Sand oder inaktiver Graphit, von ca. $7.500 - 8.000 \text{ m}^3/\text{a}$ bei der oberirdischen Erstellung des förderbaren Produktes. (Eine Erhöhung des Volumenanteils der Zement-Suspension vergrößerte die Hydratationswärme unerwünscht; eine Verringerung der Zement-Suspension derart, daß das Preßlingvolumen wiederum 65 Vol.-% des Endlagerproduktes ausmacht, würde die spezifische radioaktive Wärmeleistung nach Abklingen der Hydratationswärme über den vorgegebenen Grenzwert anwachsen lassen.) Diese quantitative Forderung einer Inertstoffzugabe besteht ebenfalls für die In-situ Endlagerung des unbehandelten Graphits.

Bei einer zulässigen Brennelementkonzentration von $2.500 \text{ BE}/\text{m}^3$ in der radioaktiven, mit Zuschlägen versehenen Trockensubstanz ergeben sich folgende Abfallmengen:

$10.600 \text{ m}^3/\text{a}$ unbehandelter bzw. kompaktierter Graphit	
mit Inertstoffzuschlag	($\hat{=}$ 65 Vol.-%)
$5.900 \text{ m}^3/\text{a}$ Zementsuspension	($\hat{=}$ 35 Vol.-%)
<hr/>	
$16.500 \text{ m}^3/\text{a}$ benötigtes Kavernenvolumen	

Dieses entspricht in etwa den Modellannahmen nach Abb. 78. Für die Endlagerung der Abfallspezifikation B durch Lagerungsmethode II benötigt man nur eine 82.500 m^3 Kaverne, die nach ca. 5 Jahren gefüllt ist.

5.3.3 Endlagerung des Graphits der brennstofffreien Zone

Wegen der geringen spezifischen Radioaktivität und Nachwärmeproduktion stellt die Endlagerung des Graphits der abgetrennten brennstofffreien Zone kein Problem dar. In Abhängigkeit von der Konditionierung und Endlagerung sind in Abb. 79 die jährlich benötigten Kavernenvolumina zu entnehmen. Die Fässer sind mit 50 Vol.-% Preßlingen gefüllt.

Unter den Voraussetzungen einer zylindrischen Kavernengeometrie, deren vollständige Füllung eine konstante Nachwärme produziert,

Konditionierung \ Endlagerung	I	II
	C/Z = 0,5 S/Z = 0	13.290
C/Z = 1	7.875	3.150
a	6.390	1.970
b	6.880	2.110
c	7.390	2.275

Abb. 79: Jährliches benötigtes Kavernenvolumen in m³/a
 Aufarbeitungskapazität: 2,65 · 10⁷ BE/a

die einzig durch Wärmeleitung über die zylindrische Kontaktfläche Zement-Salz an das umgebende Salz abgeführt wird und das sich in einer Entfernung von der Kavernenachse R' nicht erwärmen soll, gilt für die maximale Kavernentemperatur:

$$\theta_{\max} = \theta_S + 10^3 \cdot \phi \cdot \left(\frac{R^2}{\lambda_S} \ln \frac{R'}{R} + \frac{R^2}{4 \cdot \lambda_F} \right) \quad [^{\circ}\text{C}]$$

- mit θ_S : Umgebungstemperatur des Salzes (40^oC)
 θ_{\max} : Maximaltemperatur der Kavernenfüllung in ^oC
 R : Kavernenradius in m (R = 11,4 m nach [96])
 R' : Entfernung von der Kavernenachse zu dem Punkt in der Salzformation in m, bei dem sich keine Temperaturerhöhung einstellt. R' = 100 m
 ϕ : radioaktive Nachwärmeproduktion der Kavernenfüllung in W/l
 λ_S : Wärmeleitfähigkeit des Salzes ($\lambda_S = 5 \text{ W/m}\cdot\text{K}$)
 λ_F : Wärmeleitfähigkeit der Kavernenfüllung ($\lambda_F = 1 \text{ W/m}\cdot\text{K}$)

Die nach diesem "statischen Wärmeleitmodell" berechnete Zentraltemperatur einer 100 %igen Kavernenfüllung übersteigt für alle in Abb. 79 aufgeführten Möglichkeiten niemals 42,25^oC.

Die optimale Konditionierung und Endlagerung des Graphits der abgetrennten brennstofffreien Zone ist durch Kompaktierung des Graphits und In-Situ-Zementierung der Preßlinge in einer Salzkaverne gekennzeichnet. Für $2,65 \cdot 10^7$ BE/a entsprechend einer Wiederaufarbeitungskapazität von 50 GW_e installierter HTR-Leistung muß dazu ein jährliches Kavernenvolumen von ca. 2.000 m^3 zur Verfügung gestellt werden.

6. ZUSAMMENFASSUNG

Für die Abtrennung der brennstofffreien Zone des kugelförmigen HTR-Brennelementes wurde eine neuartige Kugelschälfräse entwickelt. Es konnte der Nachweis erbracht werden, daß durch die spezielle Gestaltung der Arbeitsscheibe Brennelement-Kugeln während des Schälvorganges ihre kugelförmige Gestalt beibehalten. Die Kugelschälfräse zeichnet sich gegenüber herkömmlichen Kugelbearbeitungsmaschinen durch wesentliche Vorteile aus:

- Die Brennelement-Kugeln werden in einem Arbeitsgang abgeschält, wobei Anschläge die Breite der Arbeitsräume nach unten begrenzen und auf diese Weise ein Abbrechen des Schälvorganges bei gewünschter Endkugelgröße erzielt wird.
- Die Arbeitsscheiben drehen sich langsam ($< 40 \text{ U/min}$); ein voll automatischer Arbeitsablauf läßt sich über wenige Steuerungsfunktionen ermöglichen, so daß sich diese einfache robuste Maschine wegen geringem Wartungsaufwand und langen Standzeiten vorzüglich für einen Heiß-Zellen-Betrieb eignet.
- Die Kugelschälfräse besitzt aufgrund des ihr eigenen Arbeitsmechanismus und der dadurch hervorgerufenen Rollkinetik des Werkstückes die Eigenschaft, selbst unkuigelige und mit Oberflächenschäden versehene Brennelement-Kugeln zu geometrisch runden Kugeln abzuschälen.

Durch Hintereinanderschalten mehrerer Arbeitsräume wird eine kompakte Anordnung mit relativ hoher Kugelbearbeitungskapazität

ermöglicht: Vier solcher Maschinen mit jeweils zehn Arbeitsräumen können bei einem gemeinsamen Raumbedarf von $2 \times 2 \times 1 \text{ m}^3$ ca. 500 Brennelemente pro Stunde abschälen.

Experimentell wurden mittlere Graphitabtrennraten von 44,1 % für das Mischoxid-Brennelement bzw. 43,4 % für das FEED-BREED-Brennelement erzielt. Bei bestehendem C-14-Wannenprofil im Brennelement entspricht diese Abtrennung von ca. 82 Gramm Schalengraphit pro Brennelement mit anschließender Verfestigung des Graphits einer Reduzierung des in der Brennstoffzone verbleibenden C-14-Inventars auf die Hälfte.

Wegen des geringen Radioaktivitätsinventars von ca. $7,2 \cdot 10^{-4} \text{ Ci}$ und der radioaktiven Nachwärmeproduktion von ca. $2 \cdot 10^{-6} \text{ W}$ des Graphits der brennstofffreien Zone (Aufarbeitung 2 Jahre nach Reaktorentnahme) stellt dessen Endlagerung kein Problem dar. Die optimale Konditionierung und Endlagerung ist durch Kompaktierung und In-situ Einzementierung der Preßlinge in eine Salzkaverne gekennzeichnet. Für $2,65 \cdot 10^7 \text{ BE/a}$ entsprechend einer Wiederaufarbeitungskapazität von 50 GW_e installierter HTR-Leistung muß dazu ein jährliches Kavernenvolumen von ca. 2.000 m^3 bereitgestellt werden.

Zusätzlich zu der Abtrennung der brennstofffreien Zone besteht die Möglichkeit einer weiteren Graphitabtrennung darin, die innere Brennstoffzone kontrolliert zu zerkleinern und dieses Produkt einem Sortierprozeß zu unterziehen. Der entscheidende Verfahrensschritt ist dabei nicht die eigentliche Trennung, sondern die Herstellung eines möglichst trennscharfen Kornkollektivs aus schwermetallfreiem Matrixgraphit und kohlenstofffreien Brennstoffpartikeln.

Siebanalyse, Bruchratenbestimmung und Auswertung labormäßig durchgeführter Graphitabtrennversuche lieferten bezüglich der Frage nach einem partikelschonenden konventionellen Zerkleinerungsverfahren eine eindeutige Aussage zugunsten der Backenbrecher-Zerkleinerung (im Vergleich zur Hammermühlen-Zerkleinerung). Als partikelschonendes konventionelles Zerkleinerungsverfahren kristallisierte sich die Reibungszerkleinerung vorzuzerkleinerter Brennelemente in einer Kugelmühle heraus, doch bietet ihr Einsatz eine sehr begrenzte Möglichkeit der Graphitabtrennung

und ist durch eine Menge noch zu lösender verfahrenstechnischer Probleme gekennzeichnet.

In keinem Fall kann das an unbestrahlten Brennelementen ermittelte SiC-Hüllbruchverhalten der Partikeln als befriedigend angesehen werden. Für das Wirbelschicht-Verbrennungs-HEAD-END nach gegenwärtigem zweistufigen Verbrennungskonzept ist somit eine der wichtigsten Voraussetzungen nicht erfüllt.

Die Kombination aus Backenbrecher und Taumelsiebmaschine kommt der Forderung nach einer konventionellen mechanisch kontrollierten Zerkleinerung am nächsten, da sie in der Lage ist, ein relativ trennscharfes Mahlgut zu erzeugen, bei dessen Sortierung im Zick-Zack-Windsichter eine mehr oder weniger kontaminierte Graphitfraktion anfällt: Bei 70 %iger Graphitabtrennung wurde für unbestrahlte Mischoxid-Brennelemente ein Schwermetallverlust von ca. 2,5 % und für unbestrahlte FEED-BREED-Brennelemente ein Thoriumverlust von ca. 1,2 % bzw. ein Uranverlust von ca. 3 % ermittelt.

Mit Hilfe eines vereinfachten konservativen Modells ergab eine Abschätzung für eine derartige Abtrennung von ca. 130 Gramm Graphit pro Mischoxid-Brennelement ein Radioaktivitätsinventar von ca. 1,14 Ci und eine entsprechende radioaktive Nachwärmeproduktion von ca. $5 \cdot 10^{-3}$ W (Aufarbeitung 2 Jahre nach Reaktorentnahme). Eine Konditionierung dieses Abfalls durch Zementieren bzw. Kompaktieren zu Preßlingen und Endlagerung in 200/400 l-Fässern bzw. In-situ Zementierung in großräumigen Salzkavernen bietet aufgrund der hohen radioaktiven Nachwärmeproduktion des durch derartig konventionelle Verfahren abgetrennten Graphits bei einer Wiederaufarbeitungskapazität von 50 GW_e installierter HTR-Leistung keine Möglichkeit zur Verringerung der im Wirbelschicht-Verbrennungs-HEAD-END mit CO₂-Fixierungsprozeß anfallenden Abfallmengen.

Durch gezielte Überlegung ist es gelungen, einen Zerkleinerungsprozeß zu entwickeln, dessen Produkt sich durch ideale Graphit-Brennstoffpartikeln-Trennbarkeit auszeichnet.

Die Wirkungsweise der Bürst-Zerkleinerung basiert auf den unterschiedlichen Härtegraden von Matrixgraphit, PyC, Werkzeugstahl der Bürstdrähte, Kernmaterial z. B. ThO₂ und SiC. Durch den par-

tikelschonenden Arbeitsmechanismus wurden labormäßig unbestrahlte geschälte Mischoxid- und FEED-BREED-Brennelemente bis auf einen Rest von ca. 9,5 Gramm pro Brennelement zerkleinert. Die dabei benutzte handelsübliche Werkzeugbürste besitzt eine Aufarbeitungskapazität von ca. 600 geschälten Brennelementen.

Der Entwurf eines Technikumtyps einer Kugelaufbürstmaschine wurde vorgestellt.

Die aus der Bürst-Zerkleinerung resultierende Schäl-Bürst-Brech-Aufbereitung demonstriert ihr Potential:

- 95 % des Graphits können schwermetallfrei ($sm < 0,1 \%$) abgetrennt werden. Das Radioaktivitätsinventar dieser Graphitmasse von ca. 176 Gramm pro Mischoxid-Brennelement wurde zu ca. 0,16 Ci und die entsprechende radioaktive Nachwärmeproduktion zu ca. $7 \cdot 10^{-4}$ W berechnet (Aufarbeitung 2 Jahre nach Reaktorentnahme). Die optimale Behandlungsmethode dieses Abfalls entspricht der des Graphits der brennstofffreien Zone. Bei gleicher Wiederaufarbeitungskapazität wird ein jährliches Salzkavernenvolumen von ca. 16.500 m^3 benötigt.
- Durch die Einbeziehung einer zweiten Windsicht-Trennstufe wird die Restgraphitmasse der Schwermetallfraktion auf ca. 2,5 - 4 Gramm pro Brennelement gesenkt, wodurch der Schwermetallverlust auf ca. 0,8 % ansteigt.
- Bei einem modifizierten GRIND-LEACH-HEAD-END-Verfahren, bei dem die resultierende aufgeschlossene Schwermetallfraktion mit Thorex-Reagenz behandelt wird, löst sich pro Brennelement weniger als $5 \cdot 10^{-2}$ Gramm Kohlenstoff.
- Das Sichtgas der einzelnen Kreisläufe kann bei Koppelung der Sichtgasreinigung an die Auflöserabgasreinigung unter dem Aspekt einer möglichst wirkungsvollen Reinigung des Auflöserabgases ausgewählt werden.
- Geringe Spaltproduktfreisetzung und minimales Störfallpotential erleichtern die Sicherheitsauslegung unter kerntechnischen Gesichtspunkten.

Zur Ermöglichung einer endgültigen Beurteilung der Schäl-Bürst-Brech-Aufbereitung wird eine partikelbezogene Werkstoffoptimierung der Bürstdrähte der Werkzeugbürste anhand bestrahlter Brennelemente in Heiß-Zellen-Versuchen empfohlen.

7. NOMENKLATUR

1. Verzeichnis der Abkürzungen

A	=	Aufgabegut
AVR	=	Arbeitsgemeinschaft Versuchsreaktor GmbH
ÄDTA	=	Äthylen-diamin-tetra-essigsäure
BB	=	Backenbrecher
B.-CP	=	BREED-Partikeln
BE	=	kugelförmiges HTR-Brennelement
BE _o	=	geschältes kugelförmiges HTR-Brennelement (ohne brennstofffreie Zone)
BFZ	=	brennstofffreie Zone des kugelförmigen HTR- Brennelementes
BISO	=	Zweifach-Beschichtung der Brennstoffpar- tikeln (2 PyC-Schichten unterschiedlicher Dichte)
Bl.-BE	=	unbeladenes kugelförmiges Brennelement ("blindes" Brennelement)
BMFT	=	Bundesministerium für Forschung und Technik
BREED	=	Brutstoff
BZ	=	Brennstoffzone des kugelförmigen HTR-Brenn- elementes
CP	=	beschichtetes Kernbrennstoffteilchen (coated particle)
F.B.-BE	=	FEED-BREED-Brennelement
F.-CP	=	FEED-Brennstoffpartikeln
FEED	=	Spaltstoff
fifa	=	fissions per initial fissionable atoms
HAW	=	hochaktiver Abfall
HEAD-END	=	Eingangsstufe der Wiederaufarbeitung
HM	=	Hammermühle
HTR, THTR	=	Hochtemperaturreaktor
HZ	=	Heiße Zelle
ICT	=	Institut für Chemische Technologie
ICP	=	inductively coupled plasma
ILTI/PyC	=	inner low temperature isotropic/PyC
IRE	=	Institut für Reaktorentwicklung

IRW	=	Institut für Reaktorwerkstoffe
JFPD	=	joint fuels processing demonstration
KAM	=	Kugelaufbürstmaschine
KFA	=	Kernforschungsanlage Jülich GmbH
KM	=	Kugelmühle
KSF	=	Kugelschälfräse
LAW	=	schwachaktiver Abfall
MAW	=	mittelaktiver Abfall
M.O.-BE	=	Mischoxid-Brennelement
M.O.-CP	=	Mischoxid-Brennstoffpartikeln
OLTI/PyC	=	outer low temperature isotropic/PyC
PyC	=	Pyrokohlenstoff
PZ	=	Portlandzement
RRS	=	Rosin-Rammler-Sperling
SiC	=	Siliziumcarbid
SM	=	Schwermetall
TRISO	=	Dreifach-Beschichtung der Brennstoffpartikeln (2 PyC-Schichten unterschiedlicher Dichte, 1 SiC-Schicht)
TSM	=	Taumelsiebmaschine
UNIFRAME	=	Maschine zur Zerkleinerung von Block-Brenn- elementen
WA	=	Wiederaufarbeitung
WAA	=	Wiederaufarbeitungsanlage
Z	=	Zerkleinerungsgut
ZZ.-WS	=	Zick-Zack-Windsichter

2. Verzeichnis der Symbole

a	= Anteil des Hüllbruchs im abgetrennten Graphit [%]
A	= Gesamtaktivitätsinventar einer Abfallspezifikation [Ci/BE]
A^i	= Gesamtaktivitätsinventar des Nuklides i einer Abfallspezifikation [Ci/BE]
A_{BE}^i	= Gesamtaktivitätsinventar des Nuklides i in einem Brennelement [Ci/BE]
A_C^i	= Matrixgraphitkontamination des Nuklides i [Ci/BE]
A_C^i BFZ	= Matrixgraphitkontamination der brennstofffreien Zone des Nuklides i [Ci/BE]
A_C^i BZ	= Matrixgraphitkontamination der Brennstoffzone des Nuklides i [Ci/BE]
A_{HBR}^i	= Kontamination in/durch die mit abgetrennten Hüllbruchstücke des Nuklides i [Ci/BE]
A_{SMV}^i	= Kontamination durch mit abgetrennte Kernbruchstücke des Nuklides i [Ci/BE]
A-BE _o	= Aufbürstkapazität der Bürste für geschälte Brennelemente [BE _o]
b	= Austragsspaltbreite des Backenbrechers [mm]
B	= Anzahl der Drähte einer Werkzeugbürste
BR _{M.O.-CP}	= SiC-Hüllbruchrate der Mischoxid-Partikeln [%]
BR _{F.-CP}	= SiC-Hüllbruchrate der FEED-Partikeln [%]
c_w	= Widerstandsbeiwert
C	= Proportionalitätsfaktor
C_C^i BFZ	= gemittelte Konzentration des Nuklides i in der brennstofffreien Zone [Ci/g]
C_C^i BZ	= gemittelte Konzentration des Nuklides i in der Brennstoffzone [Ci/g]
C_C^{C-14} BFZ	= gemittelte Konzentration des Nuklides C-14 in der brennstofffreien Zone [Ci/g]
C_C^{C-14} BZ	= gemittelte Konzentration des Nuklides C-14 in der Brennstoffzone [Ci/g]
C/Z	= Graphit-Zement-Massenverhältnis
d	= Korngröße, Partikeldurchmesser [µm]

d_{ia}	=	mittlere Korngröße der Korngrößenklasse i [μm]
d_{io}	=	obere Grenze der Korngrößenklasse i [μm]
d_{iu}	=	untere Grenze der Korngrößenklasse i [μm]
d_K	=	Mahlkugeldurchmesser [mm]
d_{ma}	=	mittlere arithmetische Korngröße [μm]
d_{25}, d_{50}, d_{75}	=	Lageparameter der Trennkurve [μm]
Δd_i	=	Klassenbreite der Klasse i [μm]
D	=	Durchmesser [m]
e	=	Exzentrerradius [mm]
f	=	Federvorspannung [cm]
F	=	Andrückkraft [N]
F'	=	Sichtkanalquerschnitt [m^2]
g	=	Schwerebeschleunigung ($9,81 \text{ m/s}^2$)
G	=	Graphitabtrennrage [%]
h	=	Höhe [m]
h^i	=	Anteil eines Nuklides i in sämtlichen Partikelhüllen am gesamten Nuklidinventar dieses Nuklides i in einem Brennelement [%]
HB	=	Brinellhärte [kp/mm^2]
HV	=	Vickers-Härte [kp/mm^2]
k	=	Zerkleinerungsverhältnis
K	=	Proportionalitätsfaktor
K_r	=	resultierende Kraft [N]
$K_{F.-CP}$	=	Konstante der FEED-Partikeln (0,279)
$K_{M.O.-CP}$	=	Konstante der Mischoxid-Partikeln (0,589)
Δl	=	Verkürzung der Drahtlänge der Werkzeugbürste infolge Materialverschleiß [cm]
L	=	Länge [cm]
m	=	Masse [g]
m_{BE}	=	Brennelementmasse [g]
m_{BEo}	=	Masse eines geschälten Brennelementes [g]
m_{BE-R}	=	Masse des unaufgebürsteten Brennelementrestes [g]
m_C	=	Graphitmasse [g]
$m_C \text{ gel.}$	=	in Thorex-Reagenz gelöste Kohlenstoffmasse [g]
m_G	=	Masse der Grobgutfraktion [g]
m_K	=	Masse der Mahlkuigel [g]
$m_{SM} \text{ gel.}$	=	in Thorex-Reagenz gelöste Schwermetallmasse [g]
$m_{Th} \text{ gel.}$	=	in Thorex-Reagenz gelöste Thoriummasse [g]

$m_{U \text{ gel.}}$	= in Thorex-Reagenz gelöste Uranmasse [g]
m_Z	= Zementmasse [g]
m_1	= Analysenprobenmasse [g]
m_2	= Verbrennungsrückstand der Analysenprobenmasse [g]
m_3	= Auflösungsrückstand der Analysenprobenmasse [g]
m_4	= Masse der TRISO-CP mit intakter SiC-Schicht [g]
m_5	= SiC-Hüllbruchmasse [g]
\dot{m}	= Massenstrom [g/min]
Δm_{BE_0}	= maximaler Materialabrieb der Drahtspitzen [g/BE ₀]
M	= Mohs-Härte
n	= Drehzahl [min ⁻¹]
N	= Füllgrad [BE]
N_{Kr}	= kritische Drehzahl der Kugelmühle [min ⁻¹]
p_i	= Massenanteil der Korngrößenklasse i [%]
r^*	= Radialneigung [grd]
R	= Radius [m]
R'	= Entfernung von der Kavernenachse zu dem Punkt in der Salzformation, bei dem sich keine Temperaturerhöhung einstellt [m]
R_C	= Kohlenstoffreaktionsrate [min ⁻¹]
R_N, R_1, R_{RRS}	= Rückstandssummenverteilungen [%]
R_x, R_y, R	= Strömungskraft [N]
Re	= Reynolds-Zahl
\dot{Q}	= Durchsatz [kg/h]
s	= Austragsspaltweite des Backenbrechers [mm]
sm	= Schwermetallverlust [%]
S/Z	= Sand-Zement-Massenverhältnis
t, \bar{t}	= Thoriumverlust [%]
t^*	= Tangentialneigung [grd]
t_B	= Bürstzeit [min]
T_x, T_y, T	= Trägheitskraft [N]
T(d)	= Trennkurve [%]
u, \bar{u}	= Uranverlust [%]
v	= Teilchengeschwindigkeit [m/s]
v_{Kr}	= kritische Umfangsgeschwindigkeit [m/s]
v_1	= mittlere Anströmgeschwindigkeit [m/s]
v_0	= Anfangsgeschwindigkeit eines Teilchens [m/s]
v_∞	= Endfallgeschwindigkeit eines Teilchens [m/s]

v_1/v_∞	=	Geschwindigkeitskennzahl
$v_{rel\ x}, v_{rel\ y}$	=	Relativgeschwindigkeit [m/s]
v_{rel}	=	Volumen [l]
V	=	Volumen [l]
v^*	=	Vibrationsstärke [Skalenteile]
\dot{V}	=	Anströmvolumen [Nm^3/s]
$V_{\Delta l}$	=	Volumen eines Drahtes der Länge Δl [cm^3]
W/Z	=	Wasser-Zement-Massenverhältnis
WG/Z	=	Wasserglas-Zement-Massenverhältnis
Y_i, Y	=	Korngrößenverteilungsdichte
Y_N, Y_1, Y_{RRS}	=	
Z	=	Gliederzahl des Zick-Zack-Windsichters
α	=	Winkel des Geschwindigkeitsvektors v_1 zur Horizontalen [grd]
β_0	=	Winkel des Geschwindigkeitsvektors v_0 zur Horizontalen [grd]
ϵ	=	Porosität [Vol.-%]
ϵ_K	=	Kugelfüllgrad
ϵ_M	=	Mahlgutfüllgrad
θ_{max}	=	Maximaltemperatur der Kavernenfüllung [$^{\circ}C$]
θ_{15a}	=	Temperaturverlauf der Kavernenfüllung nach 15 Jahren [$^{\circ}C$]
$\theta_{15a, max}$	=	Maximaltemperatur der Kavernenfüllung nach 15 Jahren [$^{\circ}C$]
θ_S	=	Umgebungstemperatur des Salzes ($\theta_S = 40^{\circ}C$)
$\kappa_{25/75}$	=	Trennschärfe
$\kappa_{75/25}$	=	$\kappa_{25/75}^{-1}$
λ_F	=	Wärmeleitfähigkeit der Kavernenfüllung ($\lambda_F = 1\ W/m \cdot K$; Zementstein)
λ_S	=	Wärmeleitfähigkeit des Salzes ($\lambda_S = 5\ W/m \cdot K$)
ν_{fl}	=	kinematische Zähigkeit der Luft ($20^{\circ}C$; $1,0133\ bar$; $\nu_{fl} = 0,15\ cm^2/s$)
ξ	=	Feststoffbeladung der Sichtluft [kg/m^3]
ρ	=	spezifische Dichte [g/cm^3]
ρ_D	=	spezifische Drahtwerkstoffdichte ($\rho_D = 7,894\ g/cm^3$)
ρ_{fl}	=	spezifische Dichte der Luft ($20^{\circ}C$; $1,0133\ bar$; $\rho_{fl} = 1,205 \cdot 10^{-3}\ g/cm^3$)

ρ_K	=	spezifische Dichte der Mahlkugeln [g/cm ³]
ρ_{SK}	=	Schüttdichte der Mahlkugeln [g/cm ³]
σ, σ_o	=	Standardabweichung
σ_B	=	Zugfestigkeit [kp/mm ²]
γ	=	Drehwinkel [grd]
ϕ	=	radioaktive Nachwärmeproduktion der Kavernen- füllung [W/l]
ϕ^{15a}	=	radioaktive Nachwärmeproduktion nach 15 Jahren [W/l]
ω	=	Winkelgeschwindigkeit [s ⁻¹]
ω_{Kr}	=	kritische Winkelgeschwindigkeit der Kugelmühle [s ⁻¹]

8. LITERATURVERZEICHNIS

- [1] E. Merz: Wiederaufarbeitung im Thoriumbrennstoffkreislauf.
JÜL-Spez-85 [1980] 126
- [2] H. Tischer, H.-G. Aschhoff, K. Hartmann, N. Hoogen, H. Kronschnabel, E. Merz: Chemie und Verfahrenstechnik des HEAD-ENDs bei der Wiederaufarbeitung von HTR-Brennelementen.
JÜL-Spez-Bericht, zur Veröffentlichung vorgesehen
- [3] Gulf General Atomic: HTGR Base Program Quarterly Progress Report For The Period Ending August 31, 1971.
Gulf-GA-A10784 [1971] 101
- [4] H.M. Muller: HEAD-END-Prozesse für HTGR-Brennelemente nicht beruhend auf Trockenverbrennung des Graphits.
NUKEM GmbH, Großauheim, NUKEM-160 [1973] 59
- [5] R. Böhnert: Entwicklung eines Verfahrens zur Verbrennung des Graphits bestrahlter Brennelemente von Hochtemperaturreaktoren in einer inertstofffreien Wirbelschicht.
JÜL-1041-CT [1974] 115
- [6] E. Merz: Wiederaufarbeitung von Kernbrenn- und Brutstoffen.
KFA-ICT-IB-418/77 [1977] 171
- [7] L.M. Ferris: HEAD-END-Processes for Graphite-Base and Carbide Reactor Fuels Progress in Nuclear Energy. Series III:
Process Chemistry 4, Kap. 3.2 [1965] 121-170
- [8] R.E. Blanco, G.I. Cathers, L.M. Ferris, T.A. Gens, R.W. Horten, E.L. Nicholson: Processing of graphite reactor fuels containing coated particles and ceramics.
Nucl. Sci. Eng. 20 [1964] 13-22

- [9] M.J. Bradley, L.M. Ferris: Recovering Uranium from Graphit Fuel Elements.
Ind. Eng. Chem. 53 [1961] 279-281
- [10] J.R. Lacher, J.D. Satzmen, J.D. Park: Dissolving Uranium in Nitric Acid.
Ind. Eng. Chem. 53 [1961] 282-284
- [11] J. Bohnenstingl, H. Gebhart, M. Laser, G. Loßmann: CHLORINEX-Entwicklung eines Verfahrens zur Hochtemperaturchlorierung von thoriumhaltigen Kernbrennelementen als Head-End-Stufe der Wiederaufarbeitung.
JÜL-1129-CT [1974] 52
- [12] H. Beaujean, P. Filß, U. Grahmann, M. Laser, E. Merz, U. Tillessen: Reinigung der Verbrennungsabgase bei der Wiederaufarbeitung von HTR-Brennelementen.
JÜL-925-CT [1973] 98
- [13] H. Tischer: Die Wirbelschichtverbrennung des Brennelementgraphits im Überdruck in einer Großanlage zur Wiederaufarbeitung von Brennelementen aus Hochtemperaturreaktoren.
JÜL-1574 [1979] 137
- [14] N. Hoogen, H. Tischer: Zur Verringerung der Abfallmengen aus dem Head-End.
Atomwirtschaft-Atomtechnik 12 [1980] 610-612
- [15] R. Böhnert, G. Kaiser, H. Pirk, U. Tillessen: HTR-Verbrennungs-Head-End, Gegenüberstellung des Schacht- und Wirbelschichtverfahrens.
JÜL-1152 [1975] 47
- [16] H. Schmitz: persönliche Mitteilung vom 23.10.1979.
ICT der KFA Jülich
- [17] N. Hoogen: Aufbau und Inbetriebnahme einer Versuchsanlage zur Verbrennung des Brennelementgraphits von Hochtemperaturbrennelementen mit mechanischer Dosierung und pneumatischer Staubrückführung.
KFA-ICT-IB-417/77 [1977] 50

- [18] Gmelins Handbuch der anorganischen Chemie: Kohlenstoff
Teil B; System-Nr. 14.
Verlag Chemie GmbH, Weinheim [1968] 555
- [19] G. Thomas: Untersuchungen zur Anwendung von Brennstoff-
kernen in Hüllrohren.
Diss. TH Aachen vorgelegt
- [20] Gmelins Handbuch der anorganischen Chemie: Thorium und
Isotope; System-Nr. 44.
Verlag Chemie GmbH, Weinheim [1955] 207
- [21] Gmelins Handbuch der anorganischen Chemie: Silicium
Teil B; System-Nr. 15.
Verlag Chemie GmbH, Weinheim [1959] 812
- [22] H. Tischer: Wirbelschichtverbrennung in einer HTR-Wie-
deraufarbeitungsanlage.
Jahresbericht der KFA-Jülich (ICT), Jahresbericht
1978/79 [1979] 25-30
- [23] K. Hartmann, R. Böhnert: Vorrichtung zum Aufbrechen
der Hüllschicht von beschichteten Brenn- und/oder Brut-
stoffpartikeln für Kernreaktoren.
Deutsche Patentschrift 26 17 067
- [24] K. Hartmann, H. Schmitz, H. Tischer: Aufbrechen der
SiC-Beschichtung bestrahlter UO_2 -TRISO-Partikeln durch
Prallbeanspruchung in einer Strahlmühle.
JÜL-Spez-80 [1980] 46
- [25] R. Böhnert: Die Behandlung flüchtiger Radionuklide in
Wiederaufarbeitungsanlagen für Kernbrennstoffe.
JÜL-1089-CT [1974] 19
- [26] H. Barnert-Wiemer, R. Böhnert: Kosten des Verbrennungs-
Head-Ends einschließlich Kr-Abtrennung bei der Wieder-
aufarbeitung von HTR-Brennelementen.
JÜL-1320 [1976] 57

- [27] P.C. Schmidt: Alternativen zur Verminderung der C-14 Emission bei der Wiederaufarbeitung von HTR-Brennelementen.
JÜL-1567 [1979] 108
- [28] H. Tischer, E. Merz: HEAD-END-Verfahren zur Entsorgung im HTR-Brennstoffkreislauf.
Reaktortagung Berlin, ISSN 0173-0924 [1980] 433-436
- [29] H. Tischer: Die Kohlenstoffvergasung und die mechanische Graphittrennung als mögliche Trennprozesse im HEAD-END einer Wiederaufarbeitungsanlage für HTR-Brennelemente.
KFA-ICT-IB-431/79 [1979] 28
- [30] M. Wimmers: Das Verhalten kugelförmiger HTR-Brennelemente bei der Massenerprobung im AVR-Reaktor.
Dissertation TH Aachen [1976] 125
- [31] N. Hoogen: Die Vergasung des HTR-Brennelementgraphits als HEAD-END-Verfahren in der Wiederaufarbeitung.
Diss. TH Aachen vorgelegt
- [32] H. Kronschnabel: Rückverwandlung von CH_4 in Kohlenstoff im Graphit-Vergasungs-HEAD-END einer Wiederaufarbeitungsanlage für HTR-Brennelemente.
KFA-ICT-IB-426/78 [1978] 57
- [33] H. Kronschnabel: Theoretische Untersuchung zur Kritikalität eines Graphit-Vergasungs-HEAD-ENDs für HTR-Brennelemente.
KFA-ICT-IB-421/78 [1978] 81
- [34] H.-G. Aschhoff: Entwicklung eines Verfahrens zur Abscheidung von festem Kohlenstoff aus dem kohlenmonoxidhaltigen Abgas eines Graphit-Vergasungs-HEAD-ENDs einer Wiederaufarbeitungsanlage für HTR-Brennelemente.
KFA-ICT-IB-442/79 [1979] 91
- [35] H. Neubacher, M. Wimmers: AVR-Brennelemente Nachuntersuchungsergebnisse bis Stichprobe 49.
IRW-TN 8/78 [1978] 15

- [36] H. Renerken: persönliche Mitteilung vom 5.7.1979.
HZ der KFA Jülich
- [37] H. Kronschnabel: Vorrichtung zum Abtragen der Außenschale von Kugeln.
Deutsche Patentanmeldung P 3123551.4 vom 13.6.81
- [38] E. Zimmer, G. Schröder, H.-J. v. Wachtendonk: Verfahrenstechnische Probleme der Wiederaufarbeitung.
JÜL-Conf-30 [1979] 28-41
- [39] H. Schubert: Aufbereitung fester mineralischer Rohstoffe.
VEB Deutscher Verlag für Grundstoffindustrie [1968] 328
- [40] O. Lauer: Zerkleinern im Labor-Teil I.
Aufbereitungs-Technik [1974] 167-175
- [41] K. Vorwerck, W. Faist: Verschleißuntersuchungen in speziellen Gebieten der Prallzerkleinerung.
Aufbereitungs-Technik [1976] 508-510
- [42] H.P. Kerlin: Zerkleinern in Hammermühlen.
Chem.-Ing.-Tech. 51 [1979] 316-317
- [43] T. Adamski: Rationelle Zerkleinerung mit der IBJ-Mühle.
Aufbereitungs-Technik [1966] 479-483
- [44] H. Rumpf: Struktur der Zerkleinerungswissenschaft.
Aufbereitungs-Technik [1966] 421-435
- [45] W. Burck, R. Duwe, E. Groos, H. Müller: Bestrahlungserprobung von THTR-Brennelementen im DRAGON-Reaktor.
JÜL-1408 [1977] 99
- [46] K. Schönert: Modellrechnung zur Druckzerkleinerung.
Aufbereitungs-Technik [1967] 1-11
- [47] B.J. Baxter, E. Cook, C.M. Miller, J.B. Strand: Conceptual Design for a Prototyp Fuel Element Size-Reduction System Designated UNIFRAME.
GA-A 13275, UC-77 [1975] 137

- [48] J.B. Strand, J.W. Baer, E.J. Cook: UNIFRAME Interim Design Report.
GA-A 14645, UC-77 [1977] 195
- [49] H. Schmitz, H. Tischer: Analytische Auswertung der Produkte aus dem JFPD-Preliminary-Test.
KFA-ICT-IB-450/80 [1980] 32
- [50] H.O. Witte, L.M. Ferris: Ball-Milling of Graphite-Base Reaktor fuel.
ORNL-TM-1412 [1966] 10
- [51] J. Wolf: Entwicklung und Technikumserprobung eines Verfahrens zur Zerkleinerung blockförmiger HTR-Brennelemente.
JUP-IB-1/78 [1978] 19
- [52] M. Münster, R. Böhnert, H. Bonka: Theoretische Untersuchungen zur Kritikalität von Wirbelschichtöfen für HTR-Brennelemente.
JÜL-1350 [1976] 77
- [53] Lueger: Lexikon der Verfahrenstechnik.
Deutsche Verlagsanstalt Stuttgart [1970] 449
- [54] H. Reichert: Mechanische und pneumatische Stofftrennung mit Taumelsiebmaschinen.
Aufbereitungs-Technik [1976] 340-344
- [55] P. Schmidt, H. Reichert: Explosionssichere Taumelsiebmaschine.
Aufbereitungs-Technik [1979] 396-398
- [56] P. Schmidt: Taumelsiebmaschinen.
Aufbereitungs-Technik [1966] 265-273
- [57] Allgaier-Werke GmbH: Sieben-Sortieren-Entstauben.
(Techn. Daten der ATS 600)
Informationsblatt der Firma Allgaier, Uhingen

- [58] Allgaier-Werke GmbH: Dauerbetrieb der ATS 600 bei graphitartigem Siebgut.
Persönliche Mitteilung [1979]
- [59] K. Müller: Die Grundlagen der Gegenstrom-Umlenksichtung.
VDI-Forschungsheft 513 [1966] 40
- [60] R. Zurmühl: Praktische Mathematik.
Springer Verlag Berlin/Heidelberg [1965] 417-425
- [61] K. Hartmann: Entwicklung eines trocken-mechanischen Verfahrens zur Trennung einer Mischung zweier gleichartiger Kornkollektive aus Abbrand- und Brutpartikeln für Hochtemperaturreaktoren.
JÜL-1592 [1979] 151
- [62] J. Wessel: Verfahren des Siebens und des Windsichtens.
Grundl. Landtechn. 18 [1968] 151-157
- [63] F. Kaiser: Der Zick-Zack-Sichter - ein Windsichter nach neuem Prinzip.
Chemie-Ing.-Technik 35 [1963] 273-282
- [64] Alpine AG: Multi-Plex-Labor Zickzacksichter MZM 1-40 Betriebsvorschrift.
- [65] J. Lieberherr: Die Wirbelkaskadensäule - ein Apparat für simultane Reinigungs-, Lösungs- und Klassierungsprozesse.
Chemie-Technik 9 [1980] 599-604
- [66] J. Wessel: Schwer- und Fliehkraftsichter.
Aufbereitungs-Technik [1966] 154-160
- [67] Gmelins Handbuch der anorganischen Chemie: Eisen, Teil C-Lieferung 1, Härteprüfverfahren.
Verlag Chemie, Weinheim [1937] 162
- [68] W. Domke: Werkstoffkunde und Werkstoffprüfung.
Verlag W. Girardet, Essen [1973] 394

- [69] Dubbel: Taschenbuch für den Maschinenbau - Erster Band.
Springer-Verlag Berlin Heidelberg New York [1970] 902
- [70] V.S. Salukvadz: Ein neuartiges Werkzeug - der Nadelfräser.
Maschinenbau und Fertigungstechnik der UdSSR 3
[1961] 618
- [71] G. Vennekate: Erprobung und Optimierung eines neuartigen Abbürstverfahrens zur mechanischen Graphit-Schwermetalltrennung in der Wiederaufarbeitung kugelförmiger Brennelemente.
KFA-ICT-IB-457/81 [1981] 55
- [72] H. Kronschnabel, W. Goerings, J. Bölingen,
G. Kleine-Vennekate: Arbeitsverfahren zum Abtrennen beschichteter Kernbrennstoffteilchen aus graphitischer Matrix sowie Anlage zum Aufbereiten graphitischer Brennelemente von Hochtemperatur-Reaktoren für eine Head-End-Stufe einer Wiederaufarbeitungsanlage.
Deutsche Patentanmeldung P 31 03 900.6 vom 5.2.1981
- [73] BMFT: Zur friedlichen Nutzung der Kernenergie (eine Dokumentation der Bundesregierung).
ISBN 3-88135-000-4 [1978] 450
- [74] F. Baumgärtner: Chemie der Nuklearen Entsorgung - Teil II.
Thiemig-Taschenbuch, Bd 66 [1978] 375
- [75] V. Maly, R. Wagemann: Daten abgebrannter HTR-Brennelemente (Teil II: Das THTR-300-BE).
AVR, Hauptabteilung T1 [1977]
- [76] J. Wahl: Aktivitätsprofile an Brennelementen aus dem AVR-Core GO-41/3; GO-41/20.
Aktennotiz AVR H5-X4a [1977] 4

- [77] W. Amian, M. Helmbold, D. Stöver, K. Wolke, R. Hecker: Messungen und Berechnungen zur Sr-90-Freisetzung aus HTR-Brennstoffelementen.
JÜL-1580 [1979] 49
- [78] M. Helmbold: Parameterstudie zur Freisetzung von metallischen Spaltprodukten aus den Brennelementen eines 3000 MW_{th}-HTR-Core.
KFA-IRE-IB-17/78 [1978] 30
- [79] M. Helmbold: Nachrechnung des Bestrahlungsexperiments R2-K5 Kugel 1 bis 3 für die Spaltprodukte Cs-137, Ag-110 m und Sr-90.
KFA-IRE-IB-9/80 [1980] 58
- [80] M. Helmbold: Rechnungen zur Freisetzung metallischer Spaltprodukte aus HTR-Cores verschiedener Auslegungsvarianten.
JÜL-1674 [1980] 45
- [81] A. Müller: Freisetzung gasförmiger Spaltprodukte (Kr, Xe, J) aus Brennelementen für gasgekühlte Hochtemperaturreaktoren.
JÜL-1295 [1976] 143
- [82] H.J. Allelein, P. Biedermann, D. Stöver: Cäsium-Freisetzung aus TRISO-Brennstoffpartikeln.
Reaktortagung Berlin, ISSN 0173-0924 [1980] 582-585
- [83] Verein Deutscher Zementwerke: Zement Taschenbuch.
Bauverlag GmbH [1976/77] 430
- [84] L. Kiss: Vergleich der Prall- und Druckzerkleinerung eines zweikomponentigen mineralischen Modellstoffes.
Diss. TH Karlsruhe [1979] 84
- [85] K.D. Nekrassow: Hitzebeständiger Beton.
Bauverlag GmbH [1961] 300
- [86] K. Charisius: Über das Wesen, die Herstellung und Eigenschaften von Holzbeton.
Verlagsgesellschaft mbH Max Lipfert, Berlin [1946] 24

- [87] G. Rudolph, R. Köster: Verfestigung radioaktiver Abfälle mit anorganischen Bindern (Literaturübersicht). KFK 2535 PWA 49/77 [1977] 44
- [88] E. Backof: persönliche Mitteilung vom 11.3.81. Institut für Chemie der Treib- und Explosionsstoffe, Berghausen
- [89] R. Kraemer, R. Köster, R. Kroebe: Behälterlose Einlagerung von MAW/LAW in Salzkavernen. Reaktortagung Berlin [1980] 477-480
- [90] H.J. Gatow, W. Hoppe: persönliche Mitteilung vom 15.01.80. Dynamit Nobel AG, Troisdorf-Oberlar
- [91] L. Funk: Anpassung eines Festigkeitsprüfapparates zur Bestimmung der Druck- und Biegebruchfestigkeit sowie des statischen Elastizitätsmoduls von graphitischen Werkstoffen. Ingenieurarbeit FHS Aachen, Abteilung Jülich [1979] 107
- [92] D. Smidt: Reaktortechnik - Band 1. G. Braun Karlsruhe [1971] 278
- [93] BMFT: Behandlung und Lagerung radioaktiver Abfälle (Bericht der OECD-Kernenergieagentur). ISBN-3-88135-062-4 [1977] 325
- [94] W. Hauser, E. Smailos, R. Köster: Berechnungen zur Wärmeentwicklung bei der Lagerung und Verfestigung von MAW/LAW in großräumigen Kavernen. KfK 2857 [1979] 31
- [95] R. Kraemer, R. Köster, R. Kroebe: Behälterlose Einlagerung von MAW/LAW in Salzkavernen. Reaktortagung Berlin, ISSN 0173-0924 [1980] 477-480
- [96] E. Smailos, W. Diefenbacher, E. Korthaus, W. Comper: Berechnungen zur Radiolysegasbildung und Wärmeentwicklung bei der Einlagerung von radioaktiven Bitumen- und Zementprodukten in unterirdischen Lagerräumen. KfK 2076 [1978] 69

DANKSAGUNG

Diese Arbeit entstand am Institut für Chemische Technologie der Kernforschungsanlage Jülich GmbH.

Dem Institutsleiter, Herrn Prof. Dr. rer. nat. E. Merz, danke ich herzlich für die interessante Themenstellung, für anregende Diskussionen und die großzügige Förderung meiner Arbeit.

Herrn Prof. Dr. rer. nat. R. Schulten, Inhaber des Lehrstuhls für Reaktortechnik der RWTH Aachen, danke ich für die Übernahme des Korreferates.

Besonderer Dank für die tätige Unterstützung beim Bau und Betrieb der Versuchseinrichtungen gilt Herrn J. Borchardt, Herrn J. Bölingen, Herrn W. Goerings, Herrn H. Schmitz, Herrn Dr. H. Tischer und Herrn G. Vennekate sowie den Mitarbeitern des Konstruktionsbüros, der Instituts- und Hauptwerkstatt.

Frl. B. Hanke danke ich für die Geduld bei der Reinschrift meiner Dissertation.