



FORSCHUNGSZENTRUM JÜLICH GmbH

**Institut für Chemische Technologie
der Nuklearen Entsorgung**

Forschungsvorhaben

MAW- und HTR-BE-Versuchseinlagerung in Bohrlöchern

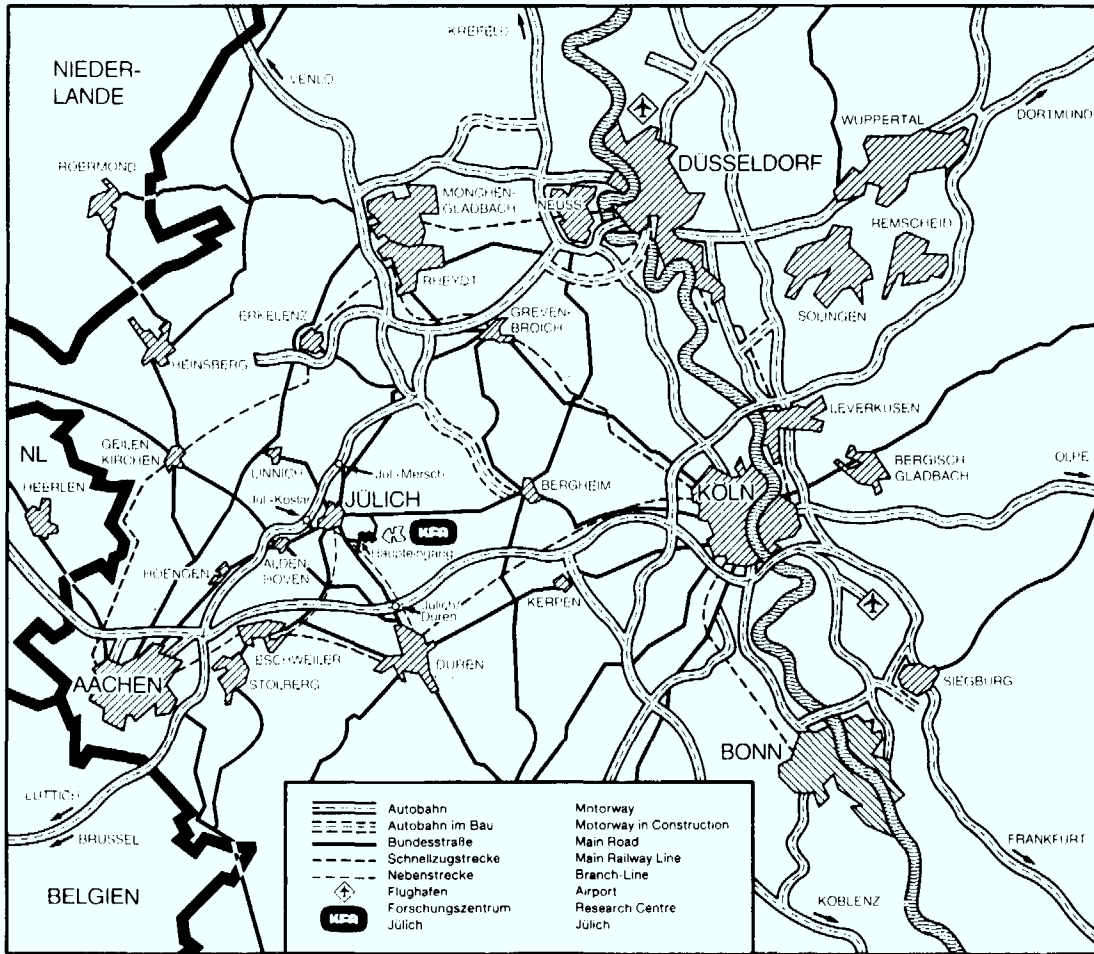
**Untersuchung des Bestrahlungs-, Korrosions-
und Langzeitverhaltens von Meßwertgebern
und elektrischen Bauelementen unter
simulierten in situ-Bedingungen im Salz**

von

D. Niephaus

F. Kreuz

**Jül-Spez-558
März 1990
ISSN 0343-7639**



Als Manuskript gedruckt

Forschungszentrum Jülich : Spezielle Berichte Nr. 558

Institut für Chemische Technologie

der Nuklearen Entsorgung

Jül-Spez-558

Zu beziehen durch : ZENTRALBIBLIOTHEK · Forschungszentrum Jülich GmbH

Postfach 1913 · D-5170 Jülich (Bundesrepublik Deutschland)

Telefon : 02461/61-0 · Telefax : 02461/61-6103 · Telex : 833556-70 kfa d

Forschungsvorhaben

**MAW- und HTR-BE-Versuchseinlagerung
in Bohrlöchern**

**Untersuchung des Bestrahlungs-, Korrosions-
und Langzeitverhaltens von Meßwertgebern
und elektrischen Bauelementen unter
simulierten in situ-Bedingungen im Salz**

von

D. Niephaus

F. Kreutz

Im Forschungszentrum Jülich (KFA) wird seit 1983 an einem Vorhaben zur „Weiterentwicklung der Bohrlochtechnologie für die Endlagerung radioaktiver Abfälle im Salz am Beispiel von Feedklärschlamm, Brennelementhülsen, Strukturteilen und HTR-Brennelementen“ gearbeitet. Das Projekt wird vom Bundesminister für Forschung und Technologie unter dem Kennzeichen KWA 5302 3 gefördert und trägt den Kurztitel „**MAW- und HTR-BE-Versuchseinlagerung in Bohrlöchern**“.

Gesamtziel des Vorhabens ist die Entwicklung geeigneter Methoden für die Endlagerung der genannten Abfälle in Bohrlöchern im Salz und deren Erprobung in der Schachtanlage Asse.

Die wissenschaftliche und organisatorische Leitung des Projekts liegt beim **Institut für Chemische Technologie der Nuklearen Entsorgung (ICT) der KFA Jülich**.

Das Institut für Tief Lagerung (IFT) der Gesellschaft für Strahlen- und Umweltforschung mbH (GSF) ist für die geomechanischen und bergmännischen Arbeiten im Projekt zuständig, es betreut den in-situ-Versuch vor Ort und ist als Eigner der Schachtanlage Asse Antragsteller für den in-situ-Versuch gegenüber den Genehmigungsbehörden.

Geomechanische Rechnungen werden von der Bundesanstalt für Geowissenschaften und Rohstoffe (BGR) durchgeführt.

Die Physikalisch-Technische Bundesanstalt (PTB), die Deutsche Gesellschaft für Wiederaufarbeitung von Kernbrennstoffen (DKW) sowie das Projekt Hochtemperaturreaktor-Brennstoffkreislauf (HBK) beraten die Projektleitung und tragen dafür Sorge, daß die Randbedingungen der Abfallverursacher und des Abfallbeseitigers (Gorlebenplanung) berücksichtigt werden.

Die Deutsche Gesellschaft zum Bau und Betrieb von Endlagern für Abfallstoffe (DBE) und andere Fachfirmen sind als Unterauftragnehmer im Bereich Konzeptfindung, Komponententwicklung und Komponentenfertigung tätig.

Inhaltsverzeichnis

| | | |
|-----------|---|-----------|
| 1. | Einleitung | 1 |
| 2. | Randbedingungen beim in situ-Einlagerversuch | 3 |
| 3. | Versuchsbedingungen, -aufbau und -durchführung des Simulationsversuchs | 3 |
| 3.1 | Dosisleistung, Dosis und Temperatur | 3 |
| 3.2 | Bestrahlungsbehälter und Anordnung der untersuchten Bauteile -und Meßwertgeber | 4 |
| 3.3 | Beschreibung der zur Bestrahlung eingesetzten Bauteile und Meßwertgeber | 6 |
| 3.3.1 | Elektrische Widerstandsheizleiter | 6 |
| 3.3.2 | Drehpotentiometer | 9 |
| 3.3.3 | Temperaturfühler | 10 |
| 3.3.4 | Kabel und Steckverbinder | 12 |
| 3.4 | Versuchsdurchführung | 13 |
| 4. | Versuchsergebnisse | 16 |
| 4.1 | Strahlenbeständigkeit und Langzeitstabilität der eingesetzten Bauteile und Meßwertgeber | 16 |
| 4.1.1 | Elektrischer Widerstandsheizleiter | 16 |
| 4.1.2 | Drehpotentiometer | 18 |
| 4.1.3 | Temperaturfühler | 18 |
| 4.1.4 | Kabel- und Steckverbindungen | 19 |
| 4.2 | Korrosion von metallischen Hüll- und Strukturwerkstoffen | 20 |
| 4.3 | Radiolysegasbildung und Gasfreisetzung während des Bestrahlungsversuchs | 28 |
| 5. | Zusammenfassung und Bewertung | 31 |

1. Einleitung

Bei dem vom BMFT geförderten F&E-Vorhaben "MAW- und HTR-BE-Versuchseinlagerung in Bohrlöchern" sollen wärmeentwickelnde radioaktive Abfallgebinde (200-l-MAW-Fässer, AVR-TL-Kannen) in unverrohrten Bohrlöchern auf der 800-m-Sohle der Schachanlage ASSE über eine Versuchsdauer von ca. fünf Jahren rückholbar eingelagert werden.

Die Gewährleistung der Rückholbarkeit wird durch sog. Korbgestelle erreicht, die vorher in die Bohrlöcher eingesetzt werden und in denen dann die Abfallgebinde genau positionier- und stapelbar sind (Abb. 1).

Elektromagnetisch fernbedienbare Gebindegreifer, mit denen die Einlagerungs- und Rückholvorgänge durchgeführt werden sollen, verfügen über auf den inneren Durchmesser der Korbgestelle angepaßte Führungsflansche.

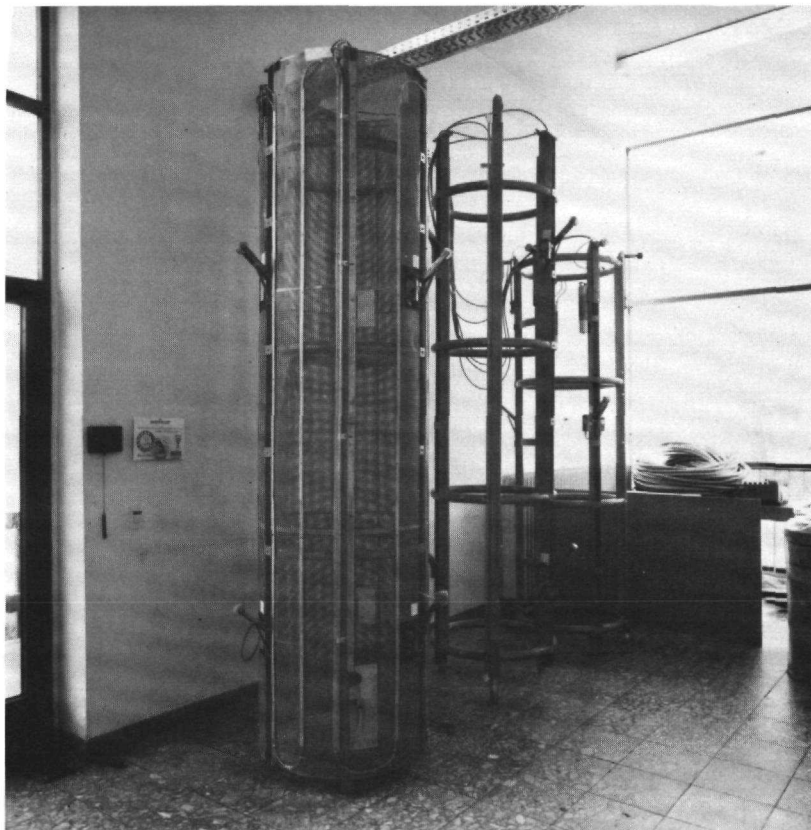


Abb. 1: Fertiginstrumentierte Korbgestellschüsse zum Aufbau eines Korbgestells

Zwischen Korbgestell und Bohrlochwand ist ein ausreichend bemessener Ringspalt vorhanden, der sich allerdings mit der Zeit durch Gebirgskonvergenz verringert. Da die geometrische Integrität der Korbgestelle eine notwendige Voraussetzung für die Rückholbarkeit darstellt, wird der Abstand zur Bohrlochwand in mehreren Teufen überwacht. Bei Unterschreiten eines festgelegten Sicherheitsabstandes muß die Rückholung eingeleitet werden, da die Korbgestelle dem Auflaufdruck des Gebirges nicht standhalten.

Um vor der Einlagerung der Abfallgebinde das Konvergenzverhalten der bereits gebohrten Bohrlöcher (EV 2 - EV 4) zu quantifizieren, das konvergenzbedingte Verhalten eines Korbgestells zu untersuchen sowie die damit zusammenhängende Ausrüstung und Instrumentierung zu testen, wurden zwei weitere Bohrlöcher (EV 1, EV 5) für sog. Vorlauftests ausgerüstet und instrumentiert /1, 2/ (Abb. 2).



Abb. 2: Blick durch die Bohrlochkopfauskleidung auf das eingebaute Korbgestell in Bohrloch EV 1

Durchgeführte thermomechanische Rechnungen /3, 4/ und erste Meßergebnisse zum Konvergenzverhalten der beiden Bohrlöcher EV 1 und EV 5 zeigen, daß der Sicherheitsabstand während der fünfjährigen Versuchsdauer nicht unterschritten wird.

2. Randbedingungen beim in situ-Einlagerversuch

Zur Simulation der Betriebsphase eines Endlagerbohrlochs sollen die Wandtemperaturen in den fünf Bohrlöchern der Versuchsstrecke EV um mindestens 15°C gegenüber der normalen Gebirgstemperatur von ca. 34°C angehoben werden /3/. Weil die nukleare Wärmeleistung der zur Verfügung stehenden Abfallgebinde dazu nicht ausreicht /5/, werden zusätzlich elektrische Heizungen in den Bohrlöchern installiert.

Bei den Vorlauftests wird die gesamte Wärmeleistung mittels elektrischer Heizungen eingebracht. Es handelt sich hierbei um Widerstandsheizkabel, die Mäanderförmig auf Lochblechmäntel der untersten Korbgestellschüsse verlegt werden (Abb. 1). Diese sog. Mantelheizungen umschließen die einzulagernden Abfallgebinde bzw. die elektrisch beheizten 200-l-Fässer im Bohrloch EV 1 konzentrisch. Die Vorlauftestbedingungen sind daher thermisch und geometrisch ähnlich zu denen der aktiven Einlagerung. Lediglich der Einfluß der radioaktiven Strahlung fehlt. Da eine ausreichende Strahlenbeständigkeit der zur Überwachung einzusetzenden Meßwertgeber bzw. der zur Temperaturerhöhung notwendigen elektrischen Bauteile eine Voraussetzung zur Durchführung des Einlagerversuchs bzw. zur Erlangung bestimmter Versuchsziele darstellt, wurden vorausgewählte Bauteile in einem Langzeitversuch auf ihre Strahlenbeständigkeit und Langzeitstabilität untersucht. Dieser Simulationsversuch wurde dabei so angelegt, daß neben der radioaktiven Strahlung auch die in situ-Bedingungen einer Salzlagerstätte mit einfließen.

3. Versuchsbedingungen, -aufbau und -durchführung des Simulationsversuchs

Die durch Vorauswahl als geeignet erachteten Bauteile und Meßwertgeber wurden in einem sog. Bestrahlungsbehälter in einer Bestrahlungsposition im Abklingbecken des Forschungsreaktors FRJ 2 (DIDO) radioaktiver Strahlung ausgesetzt. Der Versuchsaufbau im Behälter wurde dabei so gestaltet, daß die Bauteile gleichzeitig simulierten in situ-Bedingungen (Salzkontakt, Feuchtigkeit, Temperatur) ausgesetzt waren.

3.1 Dosisleistung, Dosis und Temperatur

Bei Gebindedosisleistungen von $\dot{D} < 75 \text{ Gy/h}$ ($7,5 \times 10^3 \text{ rad/h}$) /5/ werden die in den Bohrlöchern zu installierenden Meßwertgeber und Bauteile während einer fünf-

jährigen Versuchsdauer eine maximale Dosis von $D < 1,3 \times 10^6$ Gy ($1,3 \times 10^8$ rad) absorbieren. Dieser Wert ist konservativ, weil das Abklingverhalten nicht berücksichtigt wurde.

Um den Bestrahlungsversuch bis zu einer abdeckenden Dosis durchzuführen, ohne dabei die Bestrahlungsdauer durch Bestrahlung bei hoher Dosisleistung unnötig zu verkürzen, wurden in der Bestrahlungsposition Dosisleistungswerte von $75 \text{ Gy/h} \leq \dot{D} \leq 500 \text{ Gy/h}$ eingestellt. Nach einer absorbierten Gesamtdosis von ca. 6×10^6 Gy (6×10^8 rad) wurde der Versuch nach 22 Monaten beendet. Das Temperaturniveau wurde auf ca. 60°C eingeregelt und entsprach damit dem in den Bohrlöchern zu erwartenden Temperaturniveau. Gegen Ende des Versuches wurde die Temperatur für ca. 2 Monate auf die in den Bohrlöchern maximal zulässige Temperatur von 80°C erhöht.

3.2 Bestrahlungsbehälter und Anordnung der untersuchten Bauteile und Meßwertgeber

Im Bestrahlungsbehälter ($\varnothing 450 \text{ mm}$, $H = 750 \text{ mm}$) wurde zentral auf einem Gestell ein zylindrischer Salzhohlkörper ($\varnothing_a = 300 \text{ mm}$, $\varnothing_i = 105 \text{ mm}$, $H = 400 \text{ mm}$) angeordnet. Der Salzkörper wurde aus einem in der Versuchsstrecke EV gezogenen Bohrkern hergestellt.

Über den Salzhohlkörper wurde ein Mantelblech gestülpt und der verbleibende Ringspalt mit Salzgrus verfüllt. Außen auf den Mantel wurden verschiedene Heizleiter befestigt und der zur Behälterinnenseite entstandene Ringspalt zwecks Minimierung der Wärmeverluste an das Beckenwasser ($\vartheta_w = 30^\circ\text{C}$) mit einer Wärmeisolierung aufgefüllt.

Als Temperaturregler für die Heizungsregler dienten zwei an dem Blechmantel befestigte Temperaturfühler und zur Temperaturmessung wurden weitere Temperaturfühler in der Salzgrusschüttung untergebracht.

Die Zentralbohrung des Salzkörpers diente zur Aufnahme von zwei Drehpotentiometern, die als Meßwertgeber der Abstandsmeßsysteme in den Bohrlöchern eingesetzt werden. Die Drehgeber waren in Gehäuse eingesetzt, die als Teil der Abstandsmeßsysteme die Befestigung und Positionierung der Potentiometer an den Korbgestellen sicherstellen.

Alle Meßwertgeber und Heizleiter wurden durch Steckverbindungen an die Zuleitungskabel angeschlossen. Durch großkalibrige PVC-Gewebesläuche wurden die

Meß- und Energiekabel aus dem Behälter zu gasdichten Kabeldosen geführt und von dort über doppelseitige Apparatesteckdosen mit der Meßelektronik bzw. der Heizungsregeleinheit verbunden.

Zusätzlich waren an den Kabeldosen Rohranschlüsse angeschweißt, über die bei geschlossenem Gaskreislauf die Behälteratmosphäre umgepumpt bzw. über auskoppelbare Probenahmebehälter Gasproben entnommen werden konnten.

Der Versuchsaufbau ist in Abbildung 3 schematisch dargestellt. Abbildung 4 zeigt den im Bestrahlungsbehälter untergebrachten Versuchsaufbau.

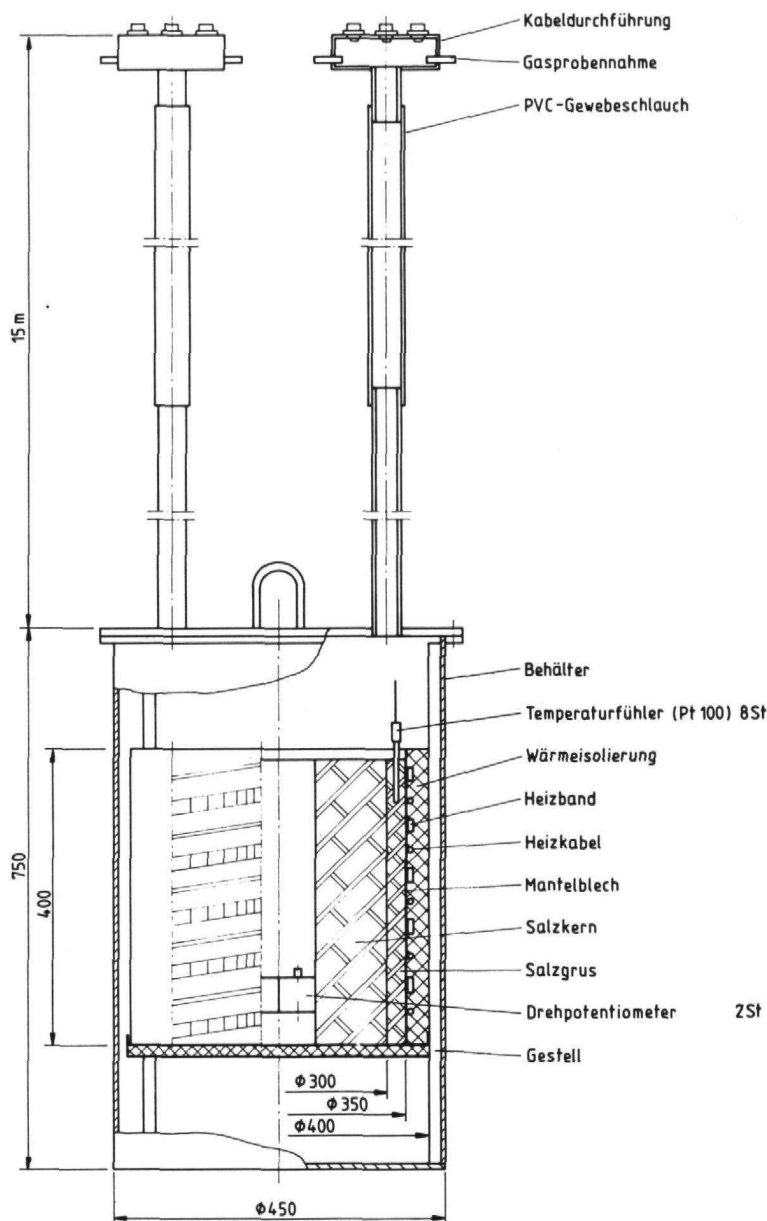


Abb. 3: Schematische Darstellung des Versuchsaufbaus

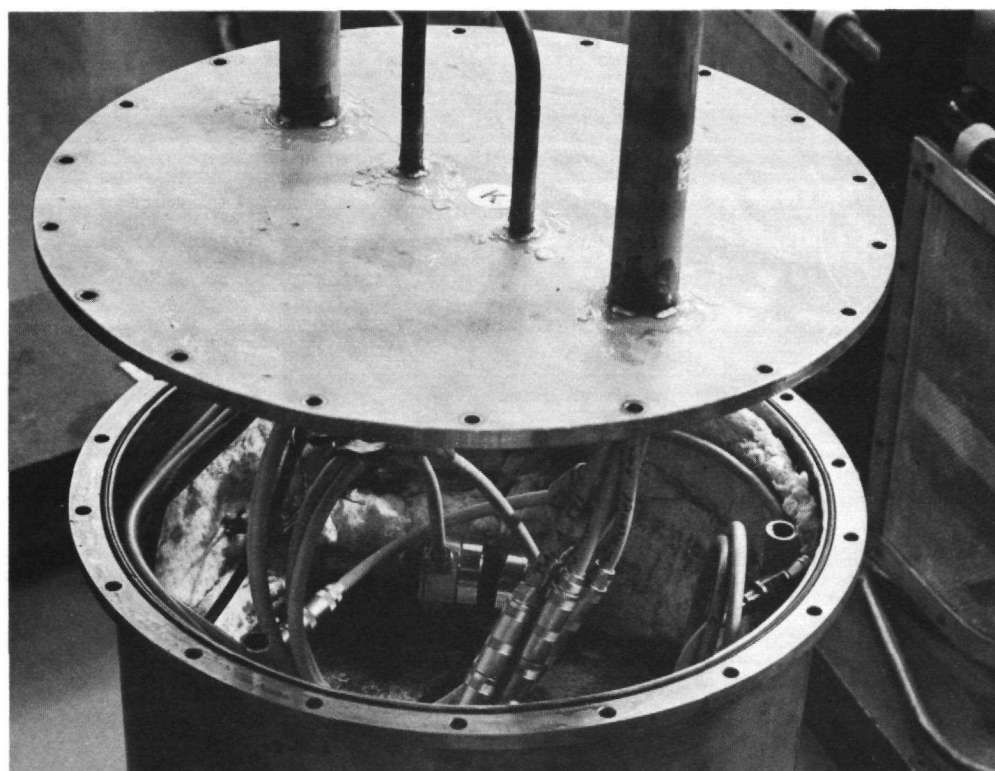


Abb. 4: Blick auf den Versuchsaufbau im Bestrahlungsbehälter

3.3 Beschreibung der zur Bestrahlung eingesetzten Bauteile und Meßwertgeber

3.3.1 Elektrische Widerstandsheizleiter

Als zusätzliche Wärmequellen in den Bohrlöchern sollen Widerstandsheizleiter eingesetzt werden. Zwei unterschiedlich arbeitende Heizleitertypen wurden ausgewählt und entsprechende Baumuster für den Bestrahlungstest auf dem Blechmantel montiert. Zur Beheizung während des Versuchs war jeweils ein Heizleiter an die Heizungsregleinheit angeschlossen.

Es wurden Baumuster von sog. Festwiderstandsheizkabeln und von selbstregelnden Heizbändern vorgelegt. Das Festwiderstandsheizkabel der Fa. Heraeus-Wittmann besteht aus einem mineralisierten (MgO) Heizleiter aus einer Cr-Ni-Legierung. Der Außenmantel besteht aus dem austenitischen Cr-Ni-Stahl mit der Werkstoff Nr. 1.4541.

Es wurde ein fertigkonfektioniertes, mit wasserdichten Anschlußenden versehenes Metallmantel-Heizkabel vom Typ KMV 8 eingesetzt, daß mit einer Stableistung von 200 W/m und einer zulässigen Einsatztemperatur von $< 800^{\circ}\text{C}$ spezifiziert war (Abb. 5).

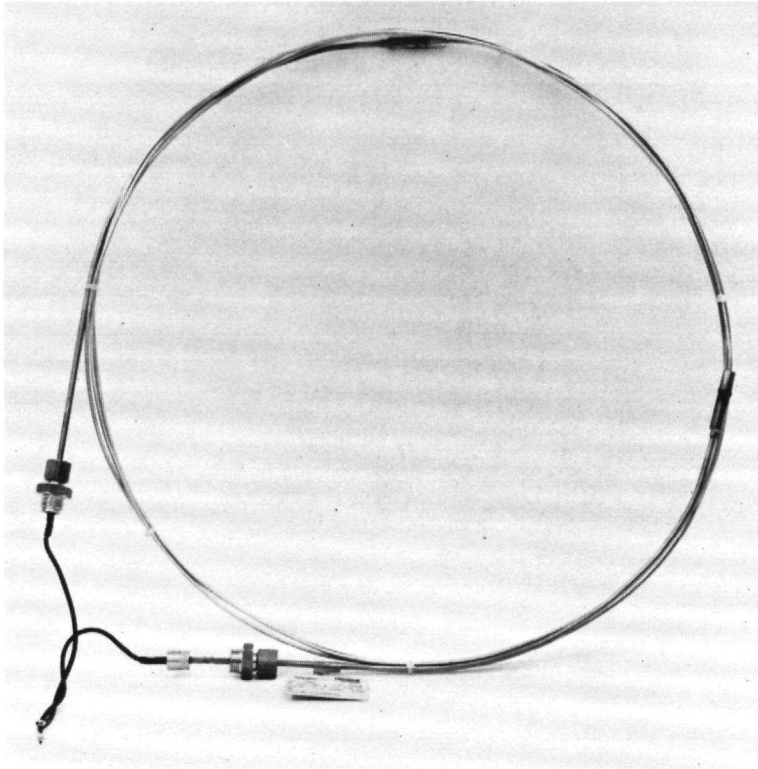


Abb. 5: Widerstandsheizkabel KMV 8

Das selbstregelnde Heizband der Fa. Raychem besteht aus einem halbleitenden Heizelement, das als Wendel um zwei parallele Kupferleiter gewickelt ist (Abb. 6).

Die Selbstregelung, d. h. eine örtliche Leistungsbegrenzung, erfolgt durch den temperaturabhängigen Widerstand des Heizelementes. Hierdurch werden ungleichmäßige Temperaturbelastungen längs des Heizbandes weitgehend vermieden. Ein Vorteil, der die Montage und Verlegung der Bänder vereinfacht. Für den Bestrahlungstest wurden Heizbänder von Typ 20 KTV-2-CT 240 verwendet (Abb. 7), wobei eins auf dem Blechmantel fest verlegt wurde.

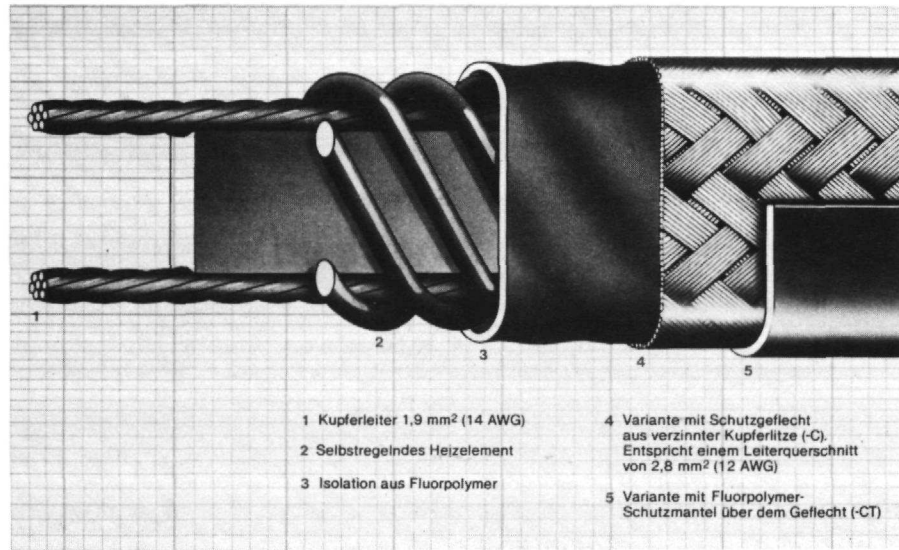


Abb. 6: Aufbau des selbstregelnden Heizbandes

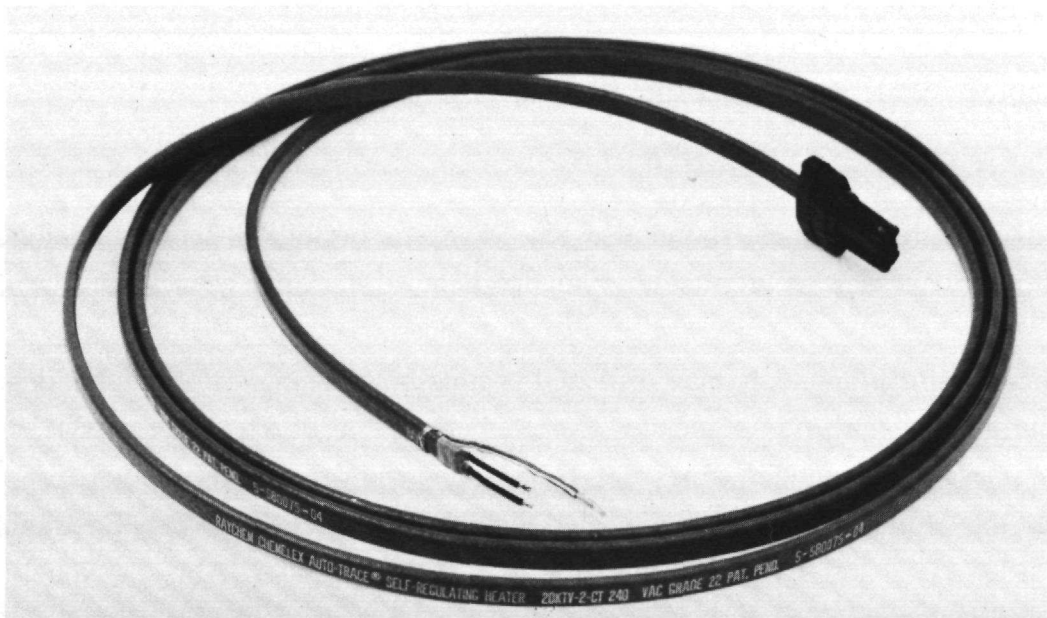


Abb. 7: Selbstregelndes Heizband Typ KTV-2-CT-240

3.3.2 Drehpotentiometer

Als Meßwertgeber der Abstandsmeißsysteme wurden Drehpotentiometer der Fa. Penny & Giles ausgewählt, die als entsprechend strahlenbeständig spezifiziert waren. Beim Bestrahlungstest wurden zwei Potentiometer vom Typ HRP 18/1S eingesetzt, deren Widerstandswendel mit Leitplastik beschichtet ist. Das zweiteilige Gehäuse, aus dem die kugelgelagerte Drehachse einseitig herausgeführt wird, besteht aus eloxiertem Aluminium (Abb. 8).



Abb. 8: Drehpotentiometer vom Typ HRP 18/1S

Wie beim Einsatz in den Bohrlöchern vorgesehen, wurden die beiden Drehpotentiometer in Gehäuse eingebaut, die aus drei Teilen zusammengesetzt werden und die aus unterschiedlichen Werkstoffen hergestellt werden.

Die Grundplatte dient zur genauen Positionierung der Drehachse und wird an das Korbgestell angeschraubt. Sie besteht aus dem austenitischen Cr-Ni-Stahl mit der Werkstoff-Nr. 1.4541. Auf dieser Grundplatte wird dann der Gehäusmantel zusammen mit dem Gehäusedeckel befestigt, die einen zusätzlichen Schutz darstellen. Beide Teile bestehen aus Messing (Abb. 9)..

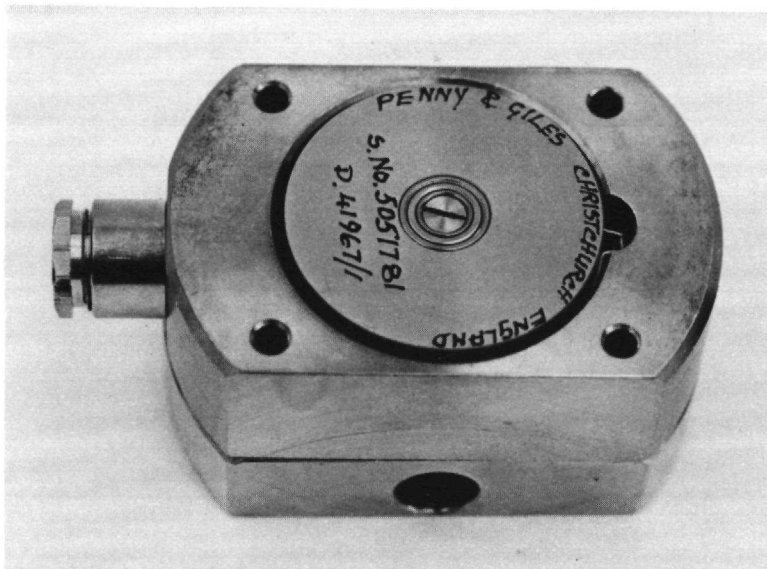


Abb. 9: Einbaugehäuse für die Drehpotentiometer

3.3.3 Temperaturfühler

Sowohl in den Bohrlöchern als auch im anstehenden Salzgestein soll das durch den Wärmeeintrag verursachte Temperaturfeld erfaßt werden. Als Meßwertgeber wurden Widerstandsthermometer (Pt 100) ausgewählt, an deren Mantelwerkstoffe hinsichtlich Korrosion erhöhte Anforderungen zu stellen waren. Aufgrund vorliegender Erfahrungen wurden Mantelwerkstoffe ausgewählt, die in chloridhaltigen Medien eine gute bzw. sehr gute Lochfraßbeständigkeit erwarten ließen. Es handelte sich hierbei um den Mo-legierten austenitischen Cr-Ni-Stahl mit der W.-Nr.: 1.4571, um die Nickel-Basis-Legierung Inconel 625 (W.-Nr.: 2.4856) sowie um mit 0,2 % Palladium legiertes Titan.

Entsprechend konfektionierte, unterschiedlich aufgebaute Widerstandsthermometer der Fa. Heraeus wurden eingesetzt. In Absprache mit dem Hersteller wurden die Meßwertgeber mit von KFA vorgegebenen Kabeln bestückt und der Kabelanschluß abgedichtet (Abb. 10).

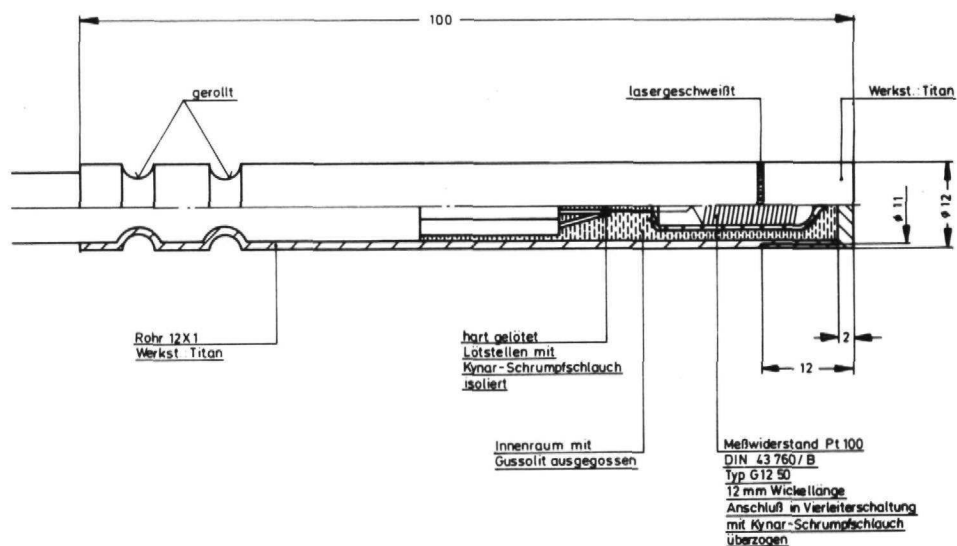


Abb. 10: Aufbau eines Kabelwiderstandsthermometers vom Typ W-YK mit KKWM-Meßkabel

Abbildung 11 zeigt ein weiteres Kabelwiderstandsthermometer vom Typ w-eik (p), das mit dem Kabel SIENOPYR-FRCN-X der Fa. Siemens sowie mit einem Lemosa-Stecker vom Typ C 2304, Gr. 4 konfektioniert war.



Abb. 11: Mit Anschlußstecker- und Kabel konfektioniertes Widerstandsthermometer

3.3.4 Kabel und Steckverbinder

Als mögliche Meßkabel wurden zwei unterschiedliche Kabeltypen ausgewählt. Bei dem Kabel vom Typ SIENOPYR-JE-LiHCH 2 x 2 x 0,5 Bd Si FRNC X handelte es sich um ein Produkt der Fa. Siemens, das für den Einsatz im Containment von KKW entwickelt wurde. Die zulässige Kabeltemperatur war mit $\leq 70^{\circ}\text{C}$ spezifiziert.

Bei dem Kabel vom Typ KKWM 1 x 4 x 0,5 mm² handelte es sich um ein Produkt der Eupener Kabel- und Gummiwerke AG, das entsprechend den Vorgaben gefertigt wurde. Die zulässige Kabeltemperatur wurde auf $\leq 90^{\circ}\text{C}$ festgelegt.

Zur Versorgung der Heizungen wurde ebenfalls ein Kabel der Eupener Firma ausgewählt. Das Kabel vom Typ ERR-0,6/1 kV-36 1,5 mm² RM sollte mit den gleichen Isolier- und Mantelwerkstoffen wie das KKWM-Kabel hergestellt werden.

Wegen des vorgesehenen unter Tage-Einsatzes bestanden die Isolations- und Mantelwerkstoffe aller Kabel aus flammwidrigen, halogenfreien Materialmischungen. Während beim Siemenskabel die Isolierung aus vernetztem Polyäthylen (VPE) und der Mantel aus vernetztem Äthylenvinylacetat (EVA) bestand, war bei den Kabeln der Eupener Kabelwerke sowohl die Isolierung als auch der Mantel aus einem Äthylen-Propylen-Elastomer (EPDM) aufgebaut.

Wie aus Abbildung 12 ersichtlich, ließen die Isolier- und Mantelmaterialien eine ausreichende Strahlenbeständigkeit erwarten.

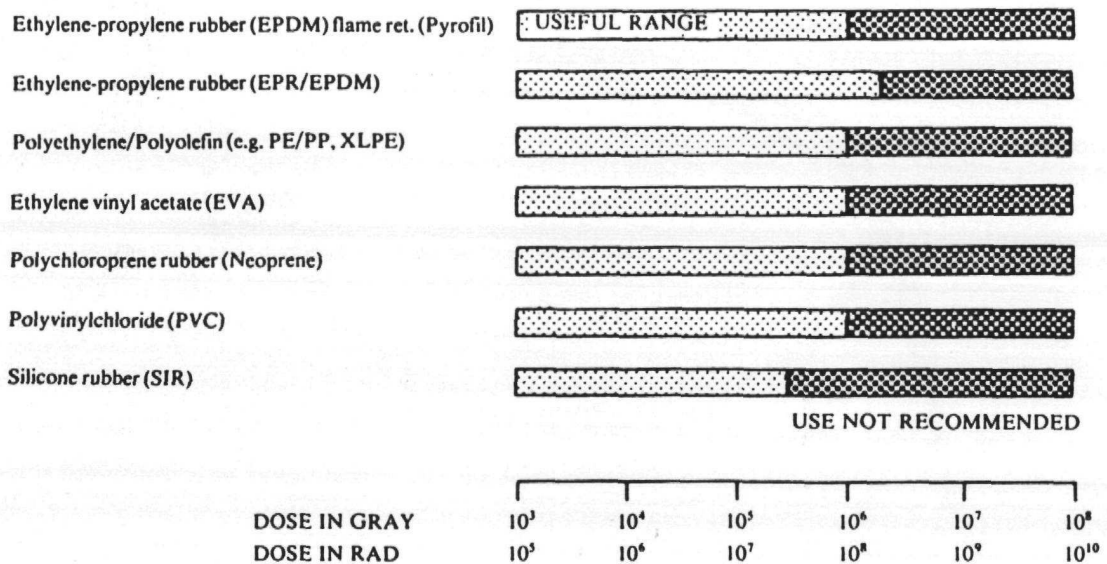


Abb. 12: Anhaltswerte für die Strahlenbeständigkeit von verschiedenen Kunststoffen /6/.

Da der Beginn des Bestrahlungsversuches früher lag als der Erhalt der Kabel vom Typ ERR, wurden die Heizleiter im Bestrahlungsbehälter mit einem in der KFA verfügbaren Kabel versorgt. Es handelte sich hierbei um ein mit Silikon isoliertes und ummanteltes Kabel, dessen Strahlenbeständigkeit entsprechend Abbildung 12 niedriger liegen sollte.

Als Steckverbinder wurden sowohl mehrpolige Standardstecker und Kupplungen als auch mehrpolige Manipulatorstecker der Fa. Lemos in wasserdichter Ausführung eingesetzt. Die Gehäuse der Standardversionen bestehen aus verchromten bzw. vernickelten Messingbauteilen und als Isolationsmaterial wird Nylatron verwendet. Die Gehäuse der Manipulatorstecker bestehen aus dem austenitischen Cr-Ni-Stahl mit der W.-Nr. 1.4305 und als Isolationsmaterial wird Vespel verwendet.

3.4 Versuchsdurchführung

Die im Behälter untergebrachte Versuchsanordnung wurde in eine Bestrahlungsposition in der Beckenanlage des FRJ2 abgesenkt. Als Strahlenquelle dienten abgebrannte MTR-Ringspalt-Brennelemente, die um den Behälter herum angeordnet wurden (Abb. 13).

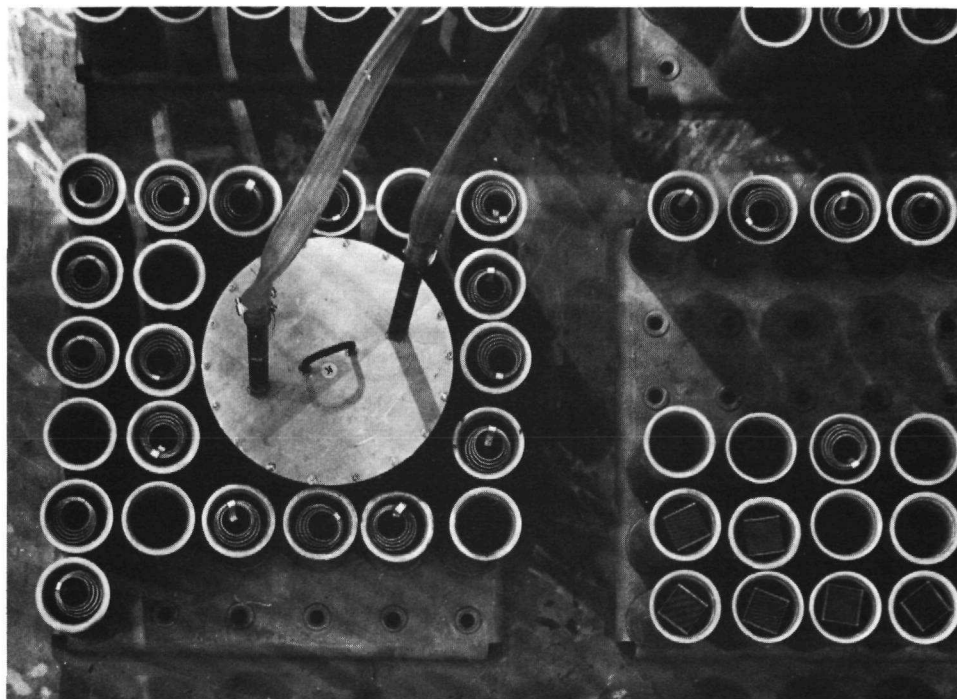


Abb. 13: Behälter in Bestrahlungsposition

Die Versuchsanordnung im Innern befand sich während der Bestrahlungszeit im Hauptfluß der Bestrahlungszone (Abb. 14).

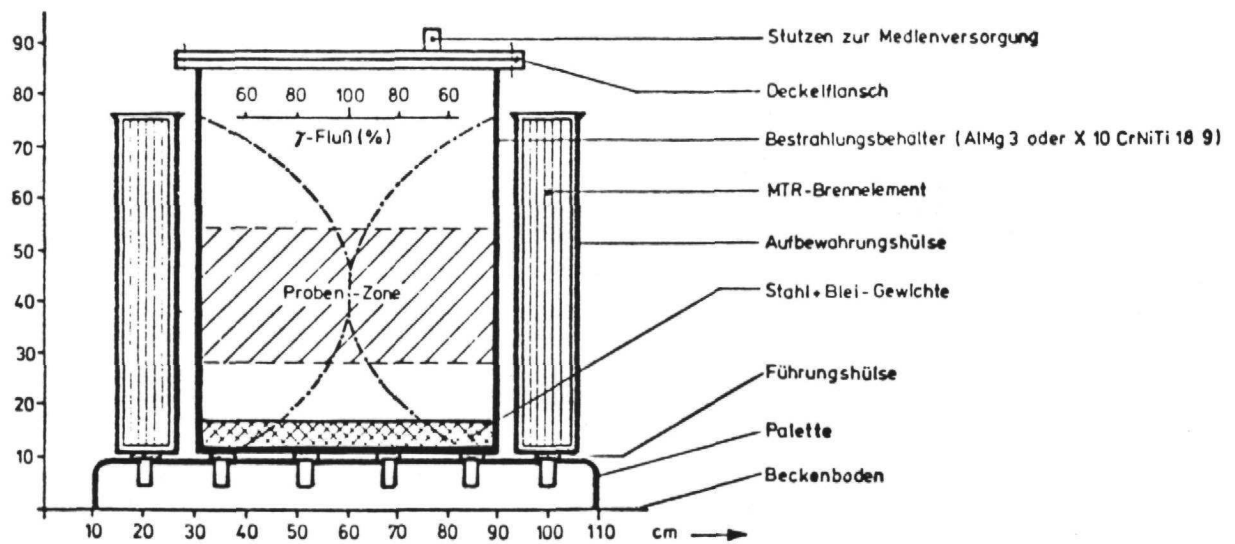


Abb. 14: Relative γ -Flußverteilung in der Versuchsanordnung

Die in der Versuchsanordnung absorbierte γ -Dosis wurde mittels geeichter Glasdosimeter gemessen. Zwei Dosimeter, eines an der Behälterinnenseite und eines zentral oberhalb des Salzkörpers angeordnet, wurden zur Auswertung herangezogen. Die Auswertung erfolgte jeweils nach den kurzfristigen Unterbrechungen zwecks Inspektion. Die Bestrahlungsgeschichte während der 22-monatigen Versuchsdauer ist in Tabelle 1 dokumentiert.

| Bestrahlungszeitraum vom 15.4.1986 bis 24.2.1988 | | MTR-BE Dosisleistung | Behälter Absorbierte Dosis | |
|--|----------------|-------------------------|----------------------------------|----------------------|
| vom Datum | bis Stunden | \dot{D} rad/h | D rad | |
| 15.4. | 15.5.86 | 730 | $7,5 \times 10^3$ | $0,54 \times 10^7$ |
| 15.5. | 22.5.86 | 168 | $7,5 \times 10^3$ | $0,13 \times 10^7$ |
| 22.5. | 17.7.86 | 1344 | 3×10^4 | $0,03 \times 10^7$ |
| 18.7. | 1.9.86 | 1056 | 3×10^4 | $3,17 \times 10^7$ |
| 1.9. | 15.10.86 | 1080 | 3×10^4 | $3,24 \times 10^7$ |
| 15.10. | 15.11.86 | 720 | 9×10^4 | $6,48 \times 10^7$ |
| 15.1. | 23.1.87 | 192 | 3×10^4 | $0,58 \times 10^7$ |
| 23.1. | 5.2.87 | 312 | 3×10^4 | $0,94 \times 10^7$ |
| 9.2. | 26.2.87 | 408 | 3×10^4 | $1,22 \times 10^7$ |
| 26.2. | 19.5.87 | 1968 | 5×10^4 | $9,84 \times 10^7$ |
| 21.5. | 19.5.87 | 720 | 5×10^4 | $3,60 \times 10^7$ |
| 22.6. | 8.1087 | 2568 | 5×10^4 | $12,84 \times 10^7$ |
| 13.10. | 5.11.87 | 552 | 4×10^4 | $2,20 \times 10^7$ |
| 7.11. | 31.12.87 | 1296 | 3×10^4 | $3,8 \times 10^7$ |
| 1.1. | 24.2.88 | 1320 | 3×10^4 | $4,0 \times 10^7$ |
| 15.4.86 | 24.2.88 | 14434 | | $= 5,93 \times 10^8$ |

Tab. 1: Bestrahlungsdauern, absorbierte γ -Dosis und Dosisleistungen während der 22-monatigen Bestrahlung der Versuchsanordnung

Zur Aufrechterhaltung eines bestimmten γ -Flusses wurden von Zeit zu Zeit neue BE in Bestrahlungsposition gebracht. Bei einer mittleren γ -Energie von ca. 0,8 MeV wurde von der Versuchsanordnung insgesamt eine γ -Energiedosis von ca. 6×10^6 Gy (6×10^8 rad) absorbiert. Die für die jeweiligen Bestrahlungsintervalle in der Tabelle 1

angegebenen Dosisleistungswerte wurden aus der Intervalldauer und der dabei absorbierten Dosis berechnet.

Um während der gesamten Versuchsdauer auch gleichzeitig korrosionsfördernde Bedingungen zu schaffen, wurde bei jeder Öffnung und Inspektion des Behälters Wasser zugegeben. Anfänglich waren das ca. 4,5 g und später 9 g Wasser, die portionsweise zur Einstellung einer feuchten Behälteratmosphäre zugegeben wurden. Bei einer Gesamtmenge von ca. 110 g Wasser und einem freien Behältervolumen von ca. 70 l wurde dabei in etwa der Zustand der Sättigungsfeuchte aufrechterhalten.

4. Versuchsergebnisse

4.1 Strahlenbeständigkeit und Langzeitstabilität der eingesetzten Bauteile und Meßwertgeber

4.1.1 Elektrischer Widerstandsheizleiter

Zur Temperaturerhöhung in der Versuchsanordnung wurde zunächst das selbstregelnde Heizband in Betrieb genommen. Die Regeltemperatur sollte mittels Zweipunktregler auf ca. 60°C gehalten werden. Aber bereits nach kurzer Bestrahlungsdauer (ca. 24 h) stieg die Temperatur auf ca. 90°C. Die Überprüfung des Reglers zeigte keinen Defekt, so daß die Ursache dem selbstregelnden Heizband zugeschrieben werden mußte. Die Überprüfung ergab, daß sich der elektrische Widerstand durch die kurze Bestrahlungsdauer erniedrigt hatte und damit eine einwandfreie Funktion des Heizbandes im Strahlenfeld nicht mehr erwartet werden konnte.

Daraufhin wurde das Festwiderstandsheizkabel als Wärmequelle in Betrieb genommen und neben dem fest installierten Heizband ein weiteres ohne Betriebslast zugegeben und bestrahlt. Nach einer Bestrahlungszeit von ca. 30 Tagen und einer Energiedosis von ca. $5,4 \times 10^4$ Gy ($5,4 \times 10^6$ rad) betrug der Widerstand nur noch 66 % und nach einer Bestrahlungszeit von ca. 63 Tagen und einer Dosis von ca. 5×10^5 Gy (5×10^7 rad) nur noch 20 % des anfänglichen Widerstandes. Darüberhinaus zeigte sich nach einer Dosis von ca. 2×10^6 Gy (2×10^8 rad), daß die Isolier- und Mantelmaterialien sowie das Heizelement der Strahlenbelastung nicht standhalten (Abb. 15 und 16).



Abb. 15: Detail der strahleninduzierten Schädigung des selbstregelnden Heizbandes

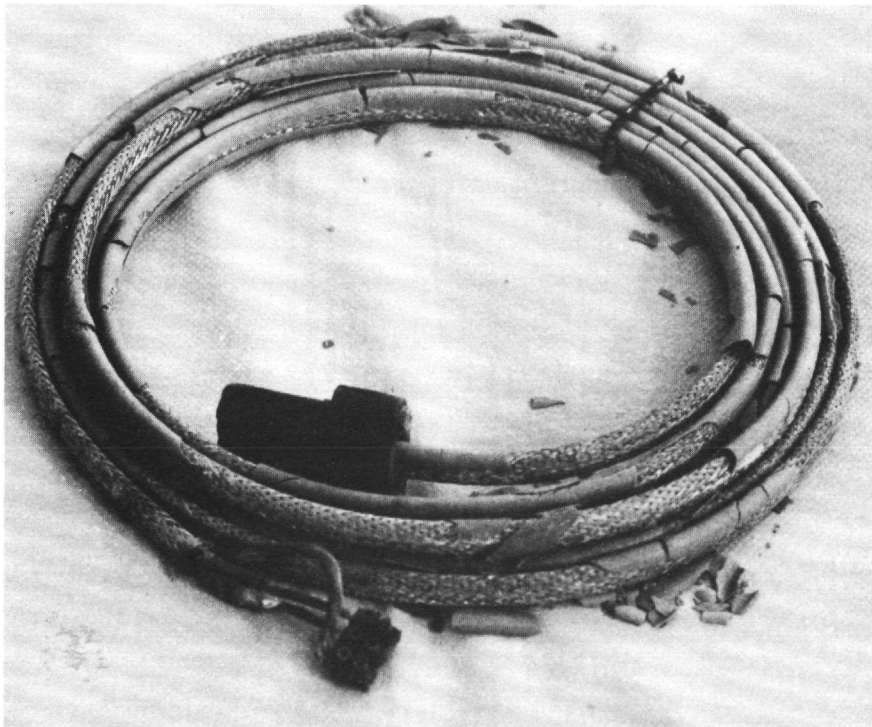


Abb. 16: Durch Strahlung zerstörtes Heizband vom Typ KTV-2-CT-240

Daher schied das Heizband als mögliche Heizquelle für den in situ-Einlagerversuch aus.

Das Festwiderstandsheizkabel dagegen blieb während der gesamten Bestrahlungsdauer funktionsfähig, wobei die Heizleistung gegen Versuchsende erhöht wurde und der Versuch für ca. 2 Monate bei einer Temperatur von ca. 80°C betrieben wurde.

Bei einer für den in situ-Einlagerversuch abdeckenden Energiedosis von ca. 6×10^6 Gy (6×10^8 rad) kann damit eine ausreichende Strahlenbeständigkeit unter Betriebslast als gesichert gelten und die Langzeitstabilität im Hinblick auf die geplante fünfjährige Einsatzdauer durch die fast zweijährige Betriebsdauer ebenfalls als gesichert angesehen werden.

4.1.2 Drehpotentiometer

Die beiden Drehpotentiometer wurden während der gesamten Versuchsdauer mit einer konstanten Speisespannung von 10 V beaufschlagt. Entsprechend dem Drehwinkel bzw. der Schleiferstellung wurde die geteilte Spannung als Meßgröße kontrolliert. Das Spannungsverhältnis U_E/U_T veränderte sich im Strahlungsfeld nicht und blieb konstant. Bei Meßspannungen von 4,965 V und 7,526 V war die Schwankungsbreite im Bereich von $< \pm 2$ mV.

Nach Ende der Bestrahlung konnte der gesamte Drehwinkelbereich von $0^\circ - 360^\circ$ mit der dazu analogen Meßspannung (0 V - 10 V) bei einer Speisespannung von 10 V durchfahren werden. Änderungen der Speisespannung bei festgehaltener Schleiferstellung zeigten dazu proportionale Änderungen der Meßspannung bzw. ein konstantes Spannungsverhältnis.

Im Hinblick auf den in situ-Einsatz als Meßwertgeber der Abstandsmeßsysteme zeigte der Bestrahlungsversuch, daß eine ausreichende Strahlenbeständigkeit gegeben ist. Der vom Hersteller spezifizierte Wert zur ertragbaren Energiedosis von 10^7 Gy (10^9 rad) dürfte realistisch sein, obwohl bei den Bestrahlungstests nur 60 % dieser Dosis verabreicht wurde.

4.1.3 Temperaturfühler

Die an unterschiedlichen Stellen angebrachten Pt 100 Widerstandsthermometer registrierten während der gesamten Bestrahlungsdauer einwandfrei die Temperaturen.

Kontrollmessungen bei Inspektionen zeigten, daß sowohl die Lufttemperatur der Halle als auch die Beckenwassertemperatur richtig wiedergegeben wurden. Nach Versuchsende wurden alle Temperaturfühler mittels Eispunktmessung noch einmal überprüft. Die im Versuch und bei Kontrollen gemessenen Temperaturen lagen jeweils im Rahmen des Toleranzbereiches.

4.1.4 Kabel- und Steckverbindungen

Alle Kabel wurden bei den Inspektionen optisch auf Risse untersucht bzw. durch Biegen qualitativ auf Flexibilität überprüft.

Bis zu einer Bestrahlungsdosis von ca. 2×10^6 Gy (2×10^8 rad) zeigten sich bei dem SIENOPYR-Kabel noch keine Risse, aber die Flexibilität war schon merklich herabgesetzt. Nach einer Dosis von ca. 6×10^6 Gy (6×10^8 rad) war der Mantel teilweise gerissen (Abb. 17) und Biegetests führten zum Bruch des Mantels bzw. der Isolierung.

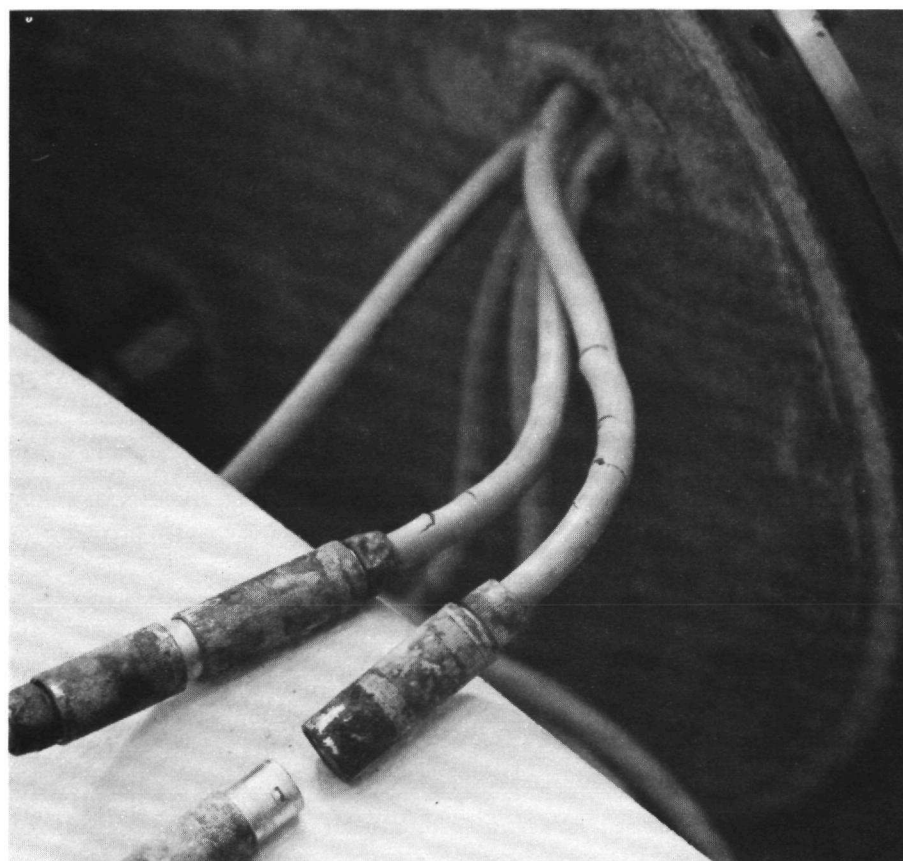


Abb. 17: Strahlengeschädigtes Meßkabel SIENOPYR FRNC X

Das mit Silikon ummantelte und isolierte Kabel, das für die Stromversorgung der Heizkabel eingesetzt wurde, zeigte bereits bei einer Dosis von ca. 2×10^6 Gy (2×10^8 rad) deutliche Risse im Mantel und nach der insgesamt absorbierten Dosis von ca. 6×10^6 Gy (6×10^8 rad) war der Außenmantel teilweise zerbröselte.

Die EPDM ummantelten und isolierten Kabel vom Typ ERR wurden, da sie erst später verfügbar waren, nur bis zu einer Dosis von ca. 2×10^6 Gy bestrahlt. Bis zu dieser Dosis waren keine Risse aufgetreten und die Flexibilität hatte kaum spürbar gegenüber unbestrahltem Kabel nachgelassen.

Ein ähnliches Ergebnis ergab ein Kurzzeitbestrahlungsversuch, bei dem Kabelmuster vom Typ ERR innerhalb einer Zeitspanne von 600 h mit ca. 3×10^6 Gy (3×10^8 rad) beaufschlagt wurden und sich danach weder Risse noch signifikante Änderungen in der Flexibilität feststellen ließen.

Wegen der besseren Flexibilität, des geringeren äußeren Durchmessers und der höheren Einsatztemperatur des KKWM-Kabels gegenüber dem SIENOPYR-Kabel wurde dieses für den in situ-Einsatz favorisiert. Um auch hinsichtlich der Strahlenbeständigkeit sicherzugehen und kurzfristig die betriebsplanmäßige Zulassung des Kabels zu erlangen, wurde der vorgenannte Kurzzeitbestrahlungsversuch parallel zum Hauptversuch durchgeführt.

Da alle Meßwerte über den gesamten Versuchszeitraum störungsfrei gemessen werden konnten, hat keine der Steckverbindungen versagt. Bis auf äußere Korrosionserscheinungen blieb der innere Aufbau der Stecker und Kupplungen intakt. Die Verbindungen konnten auch nach Versuchsende problemlos gelöst und wieder gesteckt werden.

4.2 Korrosion von metallischen Hüll- und Strukturwerkstoffen

Da die Strahlenbeständigkeits- und nicht systematische Korrosionsuntersuchungen im Vordergrund standen, werden hier im wesentlichen qualitative Ergebnisse dargestellt. Die nach Versuchsende z. T. gut mit bloßem Auge erkennbaren Korrosionserscheinungen an metallischen Oberflächen führten allerdings bei keinem der meßwertgebenden bzw. spannungsführenden Bauteile zum Versagen. Neben Ablagerungen von Korrosionsprodukten mit bräunlichem, aber auch grünlichem Aussehen auf Teilen der Oberfläche, die teilweise leicht abgebürstet werden konnten, zeigten die darunter liegenden Flächen ebenso wie nicht belegte Flächen mehr oder weniger stark Lokalkorrosion in Form von Lochfraß (Abb. 18 und 19).



Abb. 18: Lokale Korrosionserscheinungen am Blechmantel und dem Metallmantel-Heizkabel aus austenitischem Cr-Ni-Stahl mit der W.-Nr. 1.4541



Abb. 19: Korrosionserscheinungen an den verchromten Steckverbindungen

Die Wirksamkeit des kathodischen Schutzes durch Kontaktierung unterschiedlich edler Werkstoffe zeigte sich deutlich bei dem Gehäuseaufbau der Abstandsmeßsysteme (Abb. 20).

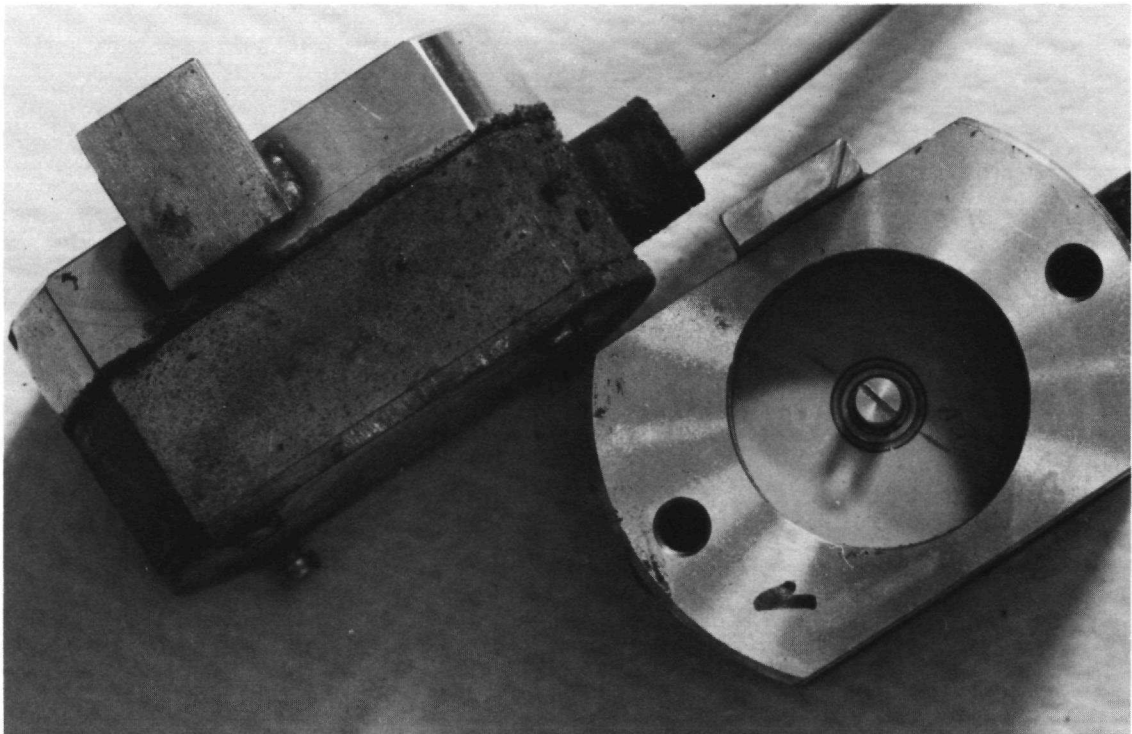


Abb. 20: Unterschiedlich starke Korrosion bei der Materialkombination eloxiertes Aluminium, Messing und austenitischer Cr-Ni-Stahl (1.4541)

Während das aus eloxiertem Aluminium bestehende Gehäuse der Drehpotentiometer keinerlei Korrosion zeigte, waren das Flanschteil aus dem austenitischen Cr-Ni-Stahl W.-Nr. 1.4541 nur gering durch Lochfraß bzw. an der Kontaktfläche stärker durch Spaltkorrosion, und das Messinggehäuse über die gesamte Oberfläche durch Korrosion und lokal durch Lochfraß angegriffen. Letzteres diente damit als unedelstes Material als Opferanode.

Die Tiefe des Korrosionsangriffes bei Messing kann anhand metallografischer Untersuchungen (Abb. 21) mit ca. $80 \mu\text{m}$ und bei dem kathodisch geschützten Stahl mit ca. $4 \mu\text{m}$ angegeben werden.

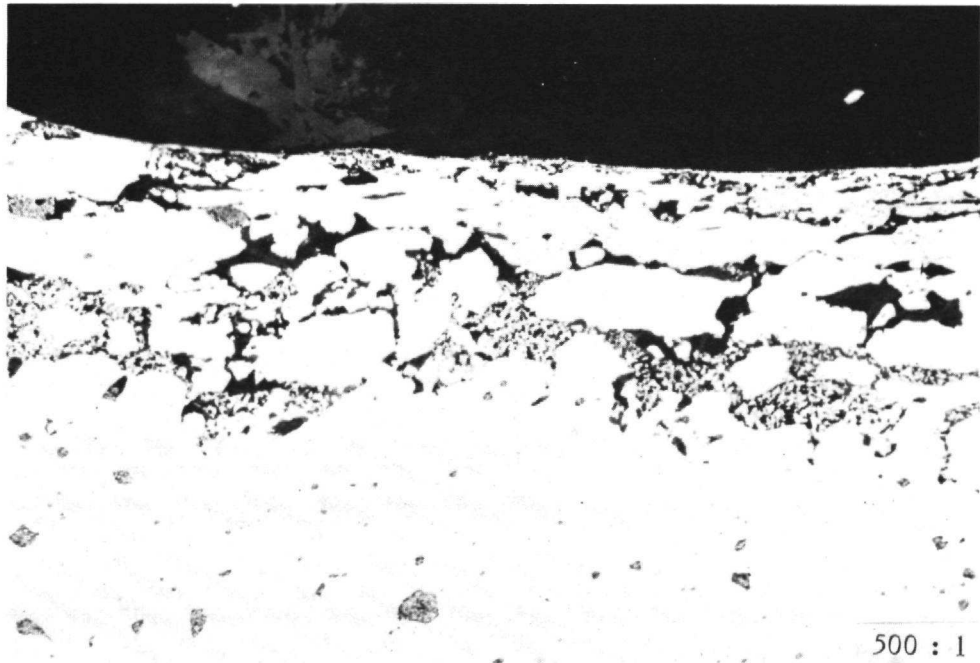


Abb. 21: Querschliff einer Messingprobe nach 22-monatiger Standzeit im feuchten, chloridhaltigen Milieu bei 60°C

Metallografische Schliffe von Proben, die vom Behälterdeckel, vom Blechmantel und vom Heizkabelmantel entnommen wurden, dienten zur Ermittlung der Tiefe von Lochfraßstellen sowie zur Bestimmung der Schichtdicke der Korrosionsbeläge. Bei allen Proben handelte es sich ebenfalls um den Cr-Ni-Stahl mit der Werkstoff-Nr. 1.4541. Die Tiefe der Lochfraßstellen kann danach mit $4\ \mu\text{m}$ - $20\ \mu\text{m}$ angegeben werden (Abb. 22).

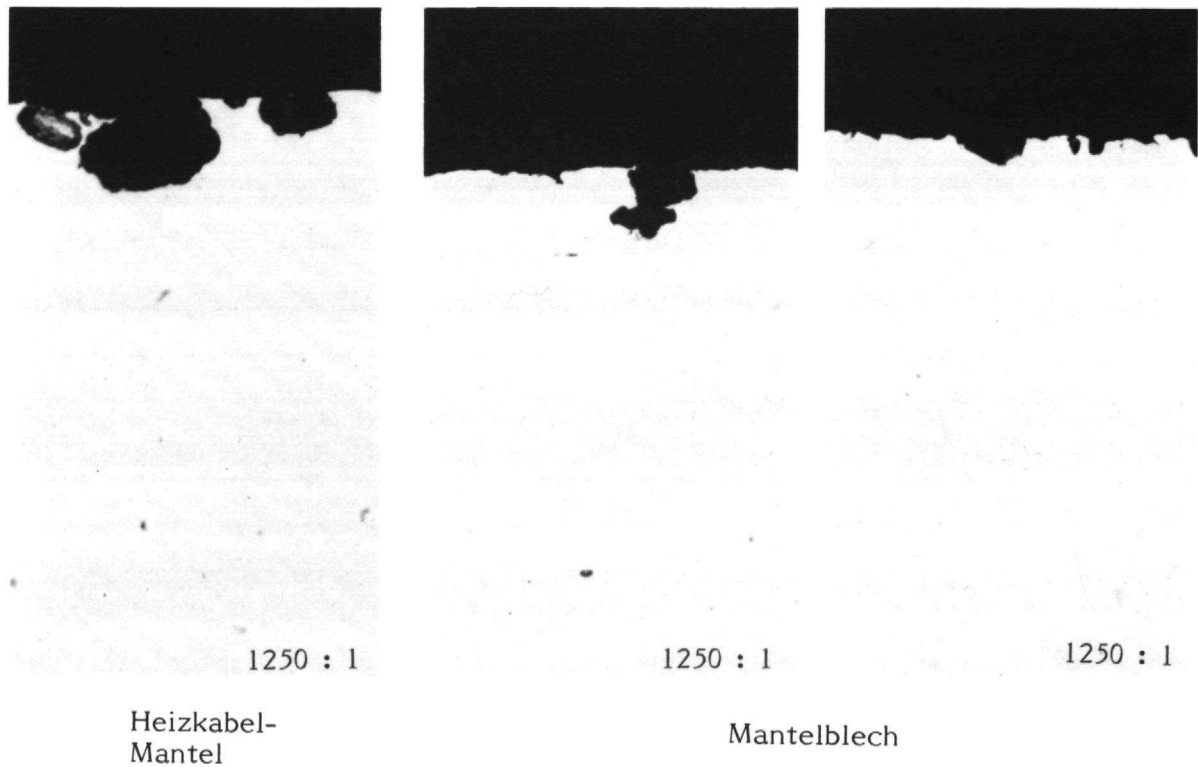


Abb. 22: Lochfraßstellen an Stahlproben (W.-Nr. 1.4541) nach 22-monatiger Standzeit im chloridhaltigen, feuchten Milieu bei 60°C

Da der Behälterdeckel im Gegensatz zur inneren Oberfläche des Bestrahlungsbehälters nicht durch einen Anstrich geschützt und durch die geringere Temperatur (ca. 30°C, Beckenwassertemperatur) als Kondensationsfläche anzusehen war, lagerten sich auf der gesamten Fläche Korrosionsbeläge mit grünlichem und z. T. bräunlichem Aussehen ab (Abb. 23).

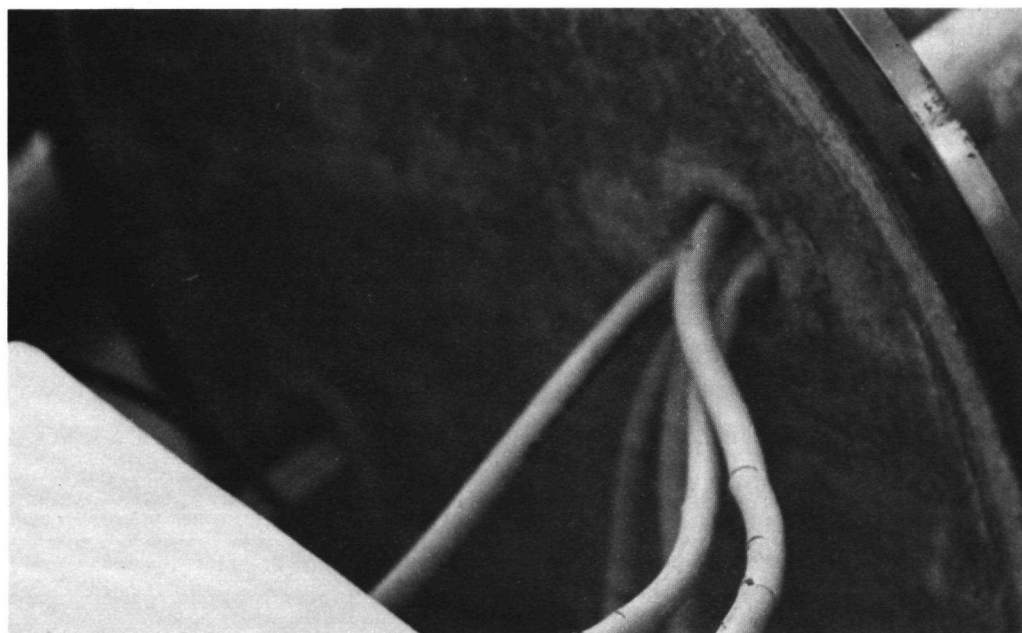


Abb. 23: Korrosionsbeläge auf dem Deckel (W.-Nr. 1.4541) nach 22-monatiger Standzeit bei 60°C

Die Schichtdicke der Korrosionsbeläge am Behälterdeckel kann nach den metallografischen Schliffbildern mit 10 μm - 80 μm angegeben werden. Gleichzeitig zeigen diese, daß der darunterliegende Werkstoff durch Lochfraß angegriffen wurde (Abb. 24).

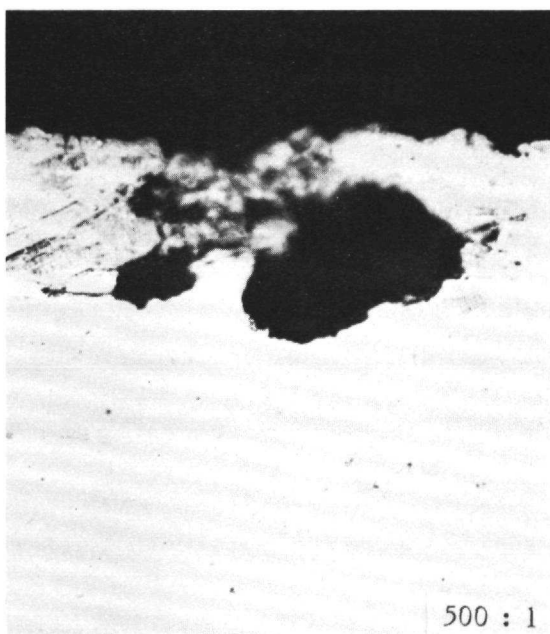
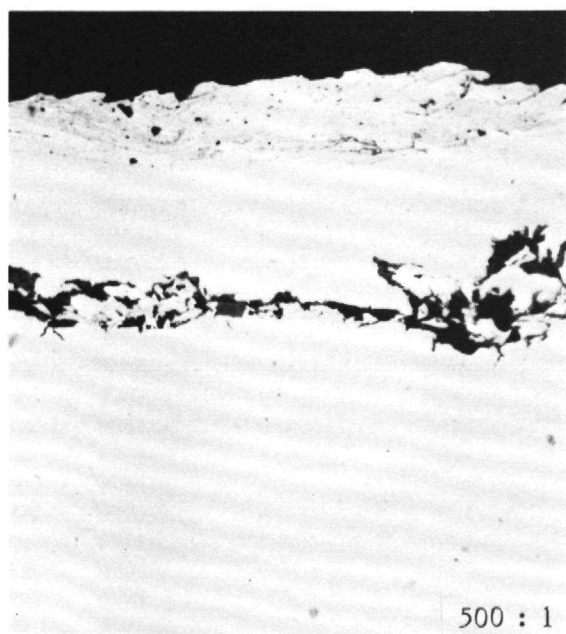


Abb. 24: Lochfraßstelle unter dem Korrosionsbelag des Behälterdeckels

Bei den Mantelwerkstoffen der Temperaturfühler, die direkt mit Salzgrus in Kontakt waren, sind schon makroskopisch Unterschiede im Korrosionsverhalten der verwendeten Werkstoffe zu erkennen (Abb. 25).

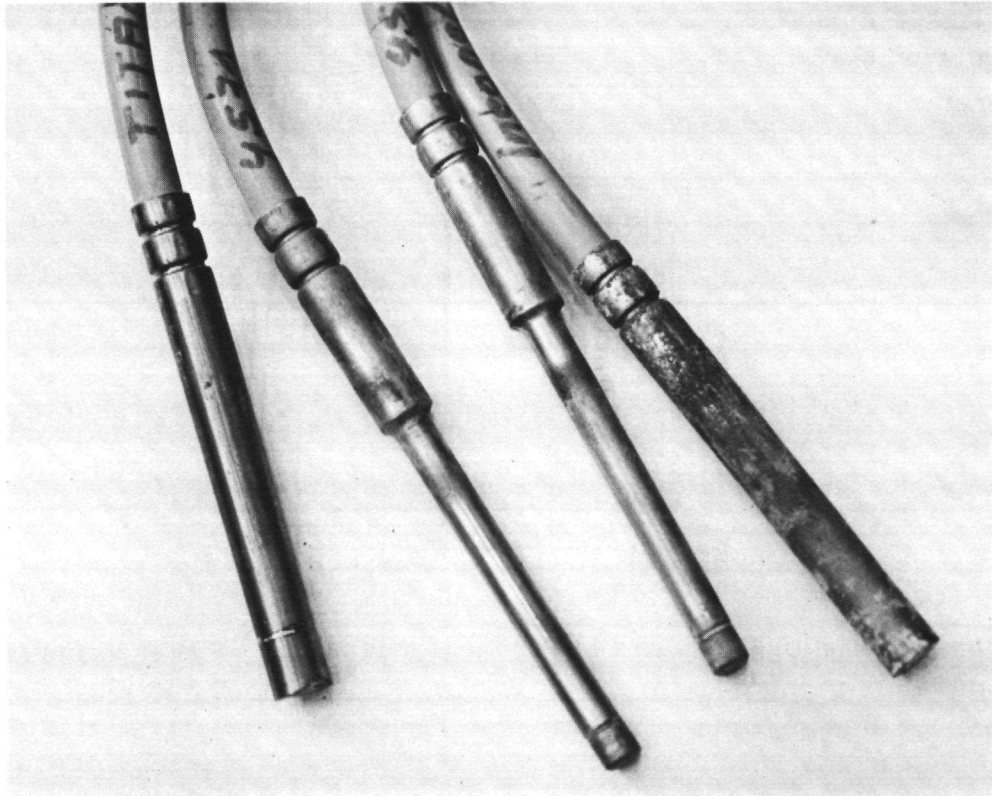


Abb. 25: Korrosionserscheinungen an den Mantelwerkstoffen der der Temperaturfühler bei direkter Kontaktierung mit Salz

Der mit 0,2 % Palladium legierte Mantel aus Titan (links) ist praktisch frei von Korrosion. Das zeigten auch die metallografischen Untersuchungen von daraus entnommenen Proben.

Die Mäntel aus dem Mo-legierten austenitischen Cr-Ni-Stahl (W.-Nr. 1.4571) sind gering lokal korrodiert, wobei mikroskopisch Lochfraß das Korrosionsbild bestimmt (Abb. 26).

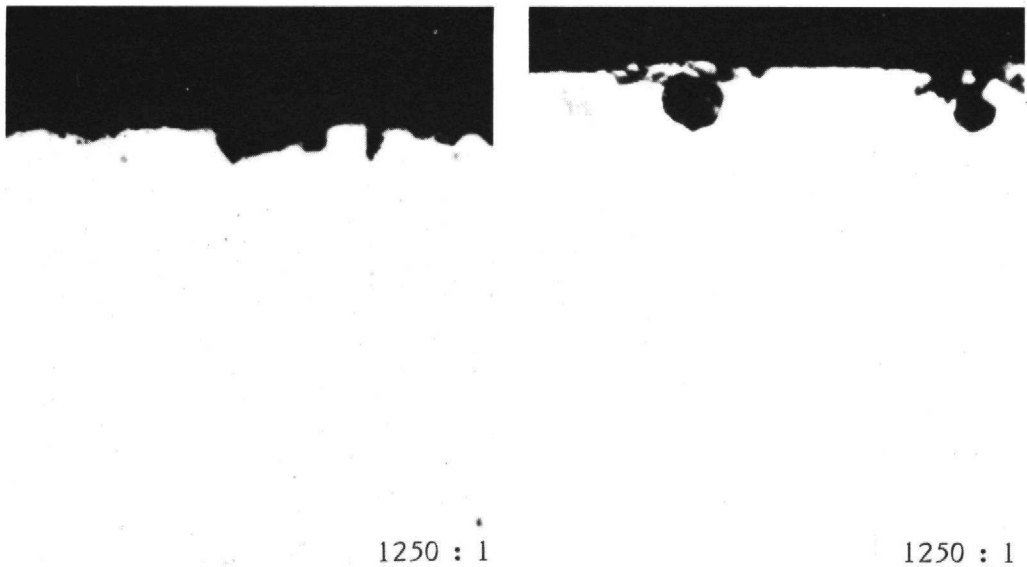


Abb. 26: Lochfraß-Korrosion am Mantelwerkstoff Nr. 1.4571 nach 22-monatiger Standzeit im Salz bei 60°C

Die Tiefe der Lochfraßstellen liegt bei $\leq 10 \mu\text{m}$.

Der Mantel aus Inconel 625 wurde relativ gleichmäßig auf der gesamten Oberfläche korrodiert. Es handelt sich hierbei um Korrosionsbeläge von gründlichem Aussehen, die auf eine Lösung des Nickels unter Bildung von Ni-Salzen schließen lassen. Die Dicke der Beläge wurde mit bis zu $8 \mu\text{m}$ ermittelt (Abb. 27).

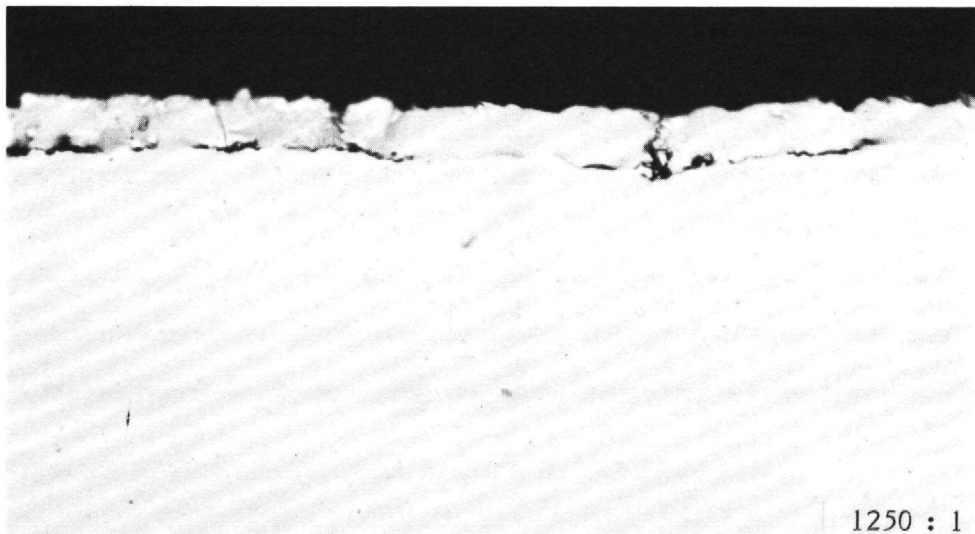


Abb. 27: Korrosionsbelag nach 22-monatiger Standzeit im Salz bei 60°C (Werkstoff Inconel 625)

Die darunterliegenden Werkstoffoberflächen zeigen, daß bei diesem Werkstoff ein mehr flächiger Korrosionsabtrag erfolgt ist und keine tiefergehenden lokalen Lochfraßstellen aufgetreten sind (Abb. 28).

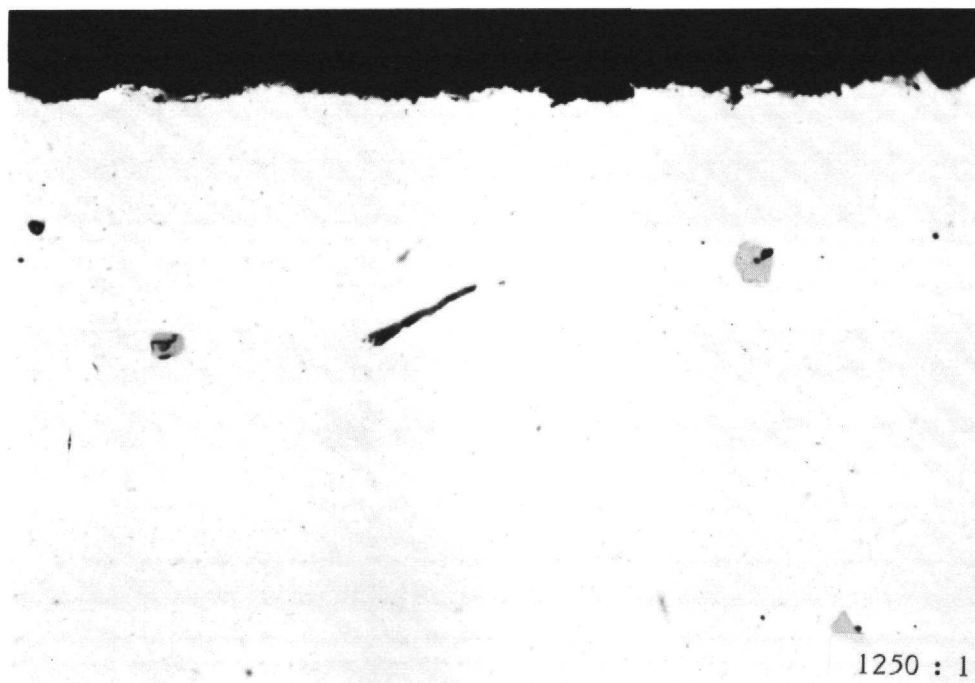


Abb. 28. Querschliffe von Mantelwerkstoffproben aus Inconel 625 nach 22-monatiger Standzeit im Salz bei ca. 60°C

4.3 Radiolysegasbildung und Gasfreisetzung während des Bestrahlungsversuchs

Steinsalz enthält neben Spurenmineralen, die durch erhöhte Temperatur bzw. radioaktive Strahlung zersetzt werden können und flüchtige Komponenten bilden, auch primär eingeschlossene Gase. Tabelle 2 zeigt die bei normaler Gebirgstemperatur experimentell gefundenen maximalen Konzentrationen verschiedener Gaskomponenten /7/.

| | |
|---------------------------|---|
| CO ₂ | bis zu 100 vpm (cm ³ /m ³) |
| CO | bis zu 2 vpm |
| H ₂ | bis zu 2 vpm |
| HCl | bis zu 280 vpm |
| Cl ₂ | bis zu 2 vpm |
| H ₂ S | bis zu 6000 vpm (= 0,6 Vol. %) |
| SO ₂ | bis zu 25 vpm |
| CH ₄ | bis zu 100 vpm |
| höhere Kohlenwasserstoffe | bis zu 5 vpm |

Tab. 2: Maximale, bei normaler Gebirgstemperatur pro m³-Steinsalz experimentell gefundene Gehalte verschiedener Gaskomponenten

Neben der Freisetzung von Gaskomponenten aus dem beim Versuch eingesetzten Salz waren auch radiolytisch gebildete Gaskomponenten aus der Zersetzung, dem Abbau bzw. der durch Strahlung induzierten Oxidation der organischen Isolier- und Mantelmaterialien zu erwarten.

Daher wurden von Zeit zu Zeit Gasproben aus der Behälteratmosphäre entnommen und mittels Gaschromatografie untersucht. In Tabelle 3 sind die nach einzelnen Bestrahlungsintervallen gemessenen Gaskonzentrationen zusammengestellt.

| Bestrahlungszeitraum | | Tage | Dosis D rad | Gaskonzentration in % | | | |
|----------------------|----------|------|-----------------------|-----------------------|----------------|----------------|-----------------|
| von | bis | | | H ₂ | O ₂ | N ₂ | CO ₂ |
| 22.5. | 12.7.86 | 56 | 4,0 x 10 ⁷ | 0,48 | 11,44 | 88,08 | - |
| 18.7. | 24.7.86 | 6 | 4,3 x 10 ⁶ | 0,08 | 17,62 | 78,57 | - |
| 1.9. | 2.10.86 | 31 | 2,2 x 10 ⁷ | 0,33 | 7,97 | 80,03 | 8,79 |
| 15.10. | 12.11.86 | 27 | 5,8 x 10 ⁷ | 0,27 | 10,35 | 83,66 | 7,10 |
| 15.1. | 22.1.8 | 7 | 5,0 x 10 ⁶ | 0,16 | 16,78 | 77,78 | 3,72 |
| 23.1. | 28.1.87 | 5 | 3,6 x 10 ⁶ | 0,16 | 16,57 | 77,81 | 4,15 |
| 22.6. | 8.10.87 | 107 | 1,3 x 10 ⁸ | 1,46 | 4,17 | 81,74 | 13,57 |
| 7.11. | 12.1.88 | 66 | 6,3 x 10 ⁷ | 1,16 | 4,50 | 76,94 | 14,20 |
| 7.11. | 24.2.88 | 109 | 1,0 x 10 ⁸ | 1,88 | 3,07 | 77,06 | 16,72 |

Tab. 3: In der Behälteratmosphäre nach unterschiedlichen Bestrahlungsintervallen gemessene Gaskomponenten

Neben Wasserstoff, der im wesentlichen durch radiolytische Zersetzung der Kohlenwasserstoff-Verbindungen der Isolier- und Mantelmaterialien, des Wassers und durch Korrosion entstanden ist, wurden hohe CO₂-Konzentrationen und eine Verarmung an Sauerstoff gemessen. Die Bildung von CO₂ und der Abbau von O₂ sind im wesentlichen auf die strahlungsinduzierte Oxidation der durch Bestrahlung in den organischen Materialien gebildeten, in der Regel sehr reaktiven Radikale zurückzuführen.

Die Ergebnisse aller durchgeführten Gasanalysen sind in Abbildung 29 grafisch zusammenfassend dargestellt.

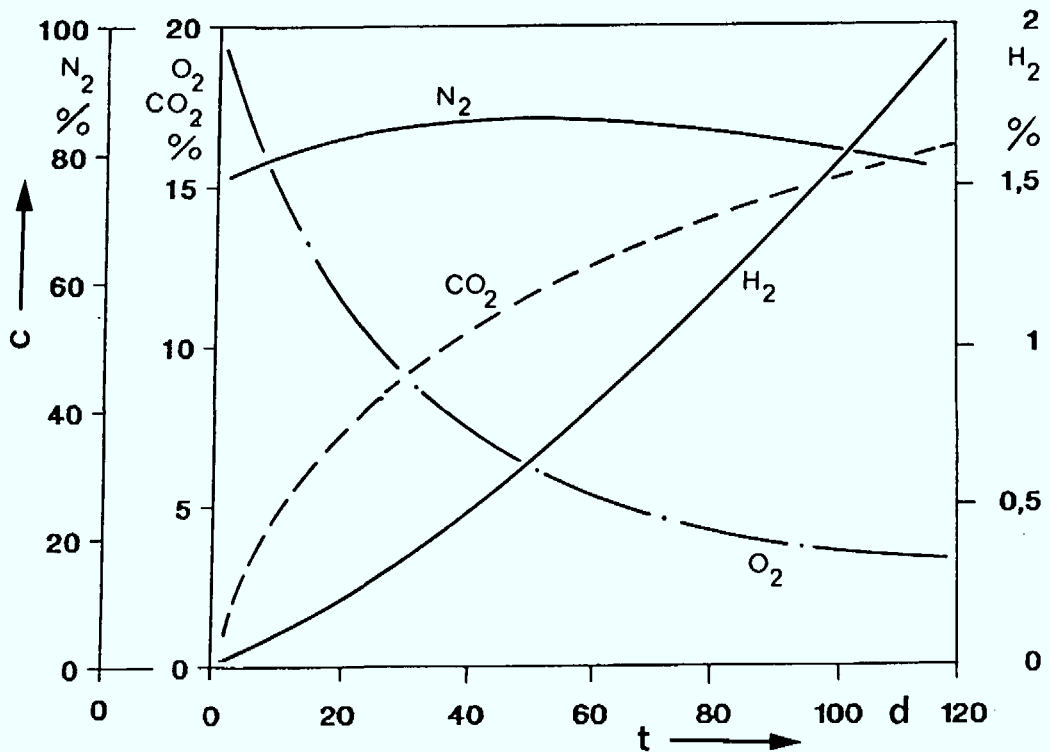


Abb. 29: Strahlungsinduzierte Gasbildung und Änderung der Gaszusammensetzung der Behälteratmosphäre in Abhängigkeit von der Bestrahlungsdauer

5. Zusammenfassung und Bewertung

Der fast zweijährige Bestrahlungsversuch unter simulierten in situ-Bedingungen im Salz hat gezeigt, daß die für den Einlagerungsversuch als sicherheitsrelevant eingestuften Meßwertgeber (Drehpotentiometer, Temperaturfühler) und das zu deren Anschluß vorgesehene Meßkabel vom Typ KKWM der abgeschätzten und maximal während der fünfjährigen Einlagerdauer von den Abfallgebinden zu erwartenden Strahlendosis von ca. $1,3 \times 10^6$ Gy ($1,3 \times 10^8$ rad) sicher standhalten werden. Die im Bestrahlungsversuch aufgebrachte Dosis lag mit 6×10^6 Gy (6×10^8 rad) (Meßwertgeber) bzw. 3×10^6 Gy (3×10^8 rad) (Kabel) um mehr als Faktor 2 höher, ohne daß ein Bauteilversagen hätte festgestellt werden können.

Auch das zum Wärmeeintrag in die Bohrlöcher zum Einsatz kommende Metallmantel-Heizkabel und das zur Stromversorgung ausgewählte Energiekabel vom Typ ERR sind mit Sicherheit strahlenbeständig genug, um das Versuchsziel eines endlagerrele-

vanten Temperaturniveaus während der fünfjährigen Versuchsdauer in den Bohrlöchern aufrechtzuerhalten.

Hinsichtlich der Korrosion der metallischen Hüll- und Strukturmaterialien zeigten sich zwar Unterschiede im Korrosionsverhalten der verschiedenen Materialien, aber die lange Versuchsdauer und die anhand der metallografischen Untersuchungen erkennbaren, geringen Korrosionsschäden berechtigen zu der Annahme, daß ein Versagen der Bauteile durch Korrosion bei dem ca. fünfjährigen in situ-Versuch nicht zu erwarten ist.

Literatur

1. Niephaus, D. et al., MAW- und HTR-BE-Versuchseinlagerung in Bohrlöchern, Jahresbericht 1987, Technischer Bericht ICT-TB-1/88, KFA-ICT, Jülich Sept. 1988
2. Niephaus, D. et al., Bohrlochausrüstung und -instrumentierung und Meßdatenerfassung und -verarbeitung beim Vorlaufstest, Technischer Bericht ICT-TB-3/87, KFA-ICT, Jülich Dez. 1987
3. Nipp, H. K., Auslegungsrechnungen zum MAW-Versuch (EV) in der Asse, Bundesanstalt für Geowissenschaften und Rohstoffe (BGR), Hannover März 1986
4. Nipp, H. K., Auslegungsrechnungen zum MAW-Versuch (EV) in der Asse, 1. Fortsetzung, BGR, Hannover Nov. 1987
5. Niephaus, D. et al., Zusammenfassende Beschreibung der Abfallgebinde für den rückholbaren Einlagerversuch, Technischer Bericht, ICT-TB-7/88 (Revision 1) in Vorbereitung
6. Beynel, P. et al., Compilation of Radiation Damage Test Data, Part III: Materials used around high-energy accelerators, CERN-RD/564-2500, November 1982

7. Jockwer, N., Groß, S., Freisetzung und Diffusion der im Steinsalz enthaltenen Wasser- und Gaskomponenten, Versuchseinlagerung hochradioaktiver Abfälle im Salzbergwerk Asse, Institut für Tief Lagerung, Abschlußbericht zum Vertrag WAS 336-83-7D im Rahmen des Indirekten Aktionsprogramms der Europäischen Gemeinschaft, Braunschweig Juni 1985