

**Abgabe und Kontrolle Radioaktiver Abfälle
in den Heissen Zellen der KFA**

von

G. Pott, R. Buch, M. Herren

Vortrag anlässlich der Tagung der Arbeitsgruppe
der Europäischen Gemeinschaft

"Heisse Zellen und Fernbedienungstechnik"

Berkeley, Gloucestershire (GB) - 25./26. Juni 1991

Abgabe und Kontrolle Radioaktiver Abfälle in den Heissen Zellen der KFA

von

G. Pott, R. Buch, M. Herren

1. Einführung

Einer der Erzeuger radioaktiver Abfälle innerhalb der KFA sind die Heissen Zellen mit den beiden Labors GHZ und BZL. Sie dienen vornehmlich zur Untersuchung des Verhaltens von aktivierten Reaktorbrennelementen und Strukturmaterialien.

Die nachfolgend aufgeführten Materialien und deren Untersuchungsmethoden charakterisieren die entstehenden Abfälle.

Charakteristische Materialien

- Niedriglegierte Druckbehälterstäbe,
- Austenitische Stähle meist Co arm,
- Al- und Mo-Legierungen,
- Graphitische und sonstige keramische Werkstoffe,
- Hoch angereichertes Uran mit ca. 90 % U5 und Thorium
- Niedrig angereichertes Uran (2-10 %),
- Verschiedene Isotope in Strahlenquellen.

Die fernbedienten Untersuchungen erfolgen in verschiedenen Zellen, wobei in jeder Zelle möglichst gleichartige Untersuchungen ablaufen sollen, so daß man die aus jeder Zelle abgegebenen Abfälle besser charakterisieren kann.

Typische Untersuchungsmethoden

- Zerlegung durch zerspanende Bearbeitung wie Bohren, Fräsen, Sägen, Drehen
- Metallographische Untersuchung
Schleifen, Polieren, U.S.-Reinigen
- Mechanische Werkstoffprüfung wie
Zug-, Druck-, Biegeversuch, Thermoschockprüfung

- Umpacken, Verpacken von Proben
- Zerörungsfreie Untersuchungen (z.B. Gammaskpektrometrie)
- Simulation von Störfallbedingungen an Kernbrennstoffen
- Simulation von Endlagerbedingungen in quinäerer Salzlauge
- *- Desintegration und chemische Behandlung von Proben

Aus beiden Aufstellungen folgt, daß Abfallproben in verschiedener Zusammensetzung anfallen können:

Typische Radioaktive Abfälle

- Brennelemente und Brennelementsegmente mit einem Gewicht im Bereich von g bis kg
- Strukturmaterialproben oder Teile von Proben im Bereich von mehreren g bis kg
- Strukturmaterialien in Form von Spänen, Stäube und kleinere Partikel bis max. 5 g je Partikel
- Stäube, Kleinstpartikel, Schleifschlamm und Kleinstproben von Brennstoffproben im mg-Bereich (Anfall je Untersuchung)
- Aerosole, Kontaminationen in Form von Spalt- und Aktivierungsprodukten in Filtern, an PVC-Folien, Papier und an Geräten (besonders bei der Dekontamination)
- Spaltprodukte in Flüssigkeiten.

2. Abfallmengen und Transportbehälter

Wie schon vorab erwähnt, müssen Abfälle aus 2 Labors entsorgt werden. Folgende Mengen bzw. Aktivitäten sind in den letzten 3 Jahren angefallen (Tab. 1).

| Jahr | 1988 | 1989 | 1990 |
|--|----------------------|----------------------|----------------------|
| <i>kontinuierlich</i> Zahl der Abgaben | 130 | 120 | 350 |
| Volumen m ³ | 33 | 41 | 74 |
| Aktivität Ges. Bq | 3,2x10 ¹⁴ | 1,7x10 ¹⁴ | 2,6x10 ¹⁵ |
| Mittelwert Bq/l | 1,0x10 ¹⁰ | 0,4x10 ¹⁰ | 3,5x10 ¹⁰ |
| Maximalwert Bq/l | 2,0x10 ¹² | 2,0x10 ¹² | 2,0x10 ¹² |
| Minimalwert Bq/l | 1,0x10 ² | 1,0x10 ² | 1,0x10 ² |

Tab. 1: Zusammenstellung von Daten radioaktiver Abfälle aus den Heissen Zellen

Wie diese Aufstellung zeigt, fallen in der Regel Abfälle mit niedriger Aktivität an und nur wenige Abgaben mit hoher Aktivität, in der Regel Kernbrennstoffe und Stahlproben.

Die in den Heissen Zellen erzeugten Abfälle werden von einer besonderen Abteilung - der Abteilung "Lagerung und Dekontamination" - innerhalb der KFA verarbeitet und gelagert.

Verpackt und abgegeben werden die Abfälle in folgenden Behältern:

- Brennbare Abfälle - z.B. Papier, Überschuhe, Folien usw. - in brennbaren Pappfässern, die in 200 ltr. Standard-Rollreifenfässern transportiert werden.
- Nicht brennbare, schwach aktive Abfälle werden in Blechfässern verpackt und vor der Lagerung zu Pellets verpreßt. Für den Fall, daß die Aktivität sehr hoch ist, können die Fässer in Behältern mit 15 cm Bleiabschirmung transportiert werden.
- Stahlproben und ähnlich aktive Proben werden in 5 ltr. Dosen verpackt und in sogenannten Schiebedeckelbehältern mit

15-20 cm Pb Abschirmung zur Abteilung "Dekontamination" transportiert und in andere Abfallgebinde eingebracht.

- Kernbrennstoffe werden ebenfalls in 5 ltr. Blechdosen eingebetont. Der Grenzwert liegt z.Zt. aus lagertechnischen Gesichtspunkten bei 15 g U235 äquivalent. Der Transport erfolgt wie vorab beschrieben.
- Sperrige Gegenstände werden intern in großen Stahlcontainern (10-15 m³ Volumen) eingesetzt. In der Regel haben diese 5 cm Betonabschirmung. Für den Fall, daß die Strahlung an der Oberfläche zu hoch ist, werden zusätzlich Bleimatten zugepackt.
- Für flüssige Abfälle werden zwei Behältersysteme verwendet; ein Cendrillon-Behälter mit bis zu 20 cm Pb Abschirmung und 12-80 ltr. Fassungsvermögen und ein spezieller Transportwagen mit 5 cm Pb Abschirmung und 200 ltr. Fassungsvermögen. Letzterer wird vornehmlich bei der Dekontamination der Zellen verwendet, wenn größere Mengen Flüssigkeiten anfallen.

3. Charakterisierung von Abfällen

3.1 Allgemeine Betrachtung

In der Vergangenheit wurde die Aktivität der radioaktiven Abfälle in der Regel vom Abfallerzeuger aufgrund der Gammadosis- oder Gamma-Impulsratenmessung bestimmt. Dabei wurden empirische Faktoren zur Umrechnung der Meßwerte auf den Aktivitätsinhalt benutzt. Bei Nuklidgemischen waren bisher Angaben wie

- Spaltprodukte
 - bestrahlter Stahl
 - bestrahlter Graphit
 - LAW-Gemisch
- zulässig.

Nach der "Richtlinie zur Kontrolle radioaktiver Abfälle mit vernachlässigbarer Wärmeleistung" ist aber inzwischen die Deklaration einzelner Nuklide notwendig. Voraussetzung sind daher umfangreiche Analysen der Nuklidzusammensetzungen.

Bei der Vielzahl der Forschungsarbeiten ist es natürlich, daß ein breites Isotopenspektrum an Abfällen anfällt, deren Deklaration oft schwierig, in einigen Fällen fast unmöglich ist.

Bei der Herstellung von Strahlenquellen oder Aktivierung von Isotopen für spezielle Anwendungen im Bereich von Chemie, Botanik, Medizin können anfallende Abfälle leicht spezifiziert werden, da bei Probenanlieferung eindeutige Isotopenwerte mitgeliefert werden und es sich in der Regel um ein Isotop je Probe handelt. Schwieriger wird es bei der Übernahme von aktivierten Strukturmaterialien, da neben den eigentlichen Hauptisotopen noch eine Vielzahl von Verunreinigungen im Material vorhanden sind und diese im Falle von keramischen Werkstoffen die hauptsächlichen Strahler sind. Weiterhin ist zu berücksichtigen, daß die Zeit zwischen Aktivierungsende und Abgabe als Abfall mehrere Jahre dauern kann, so daß die meisten kurzlebigen Isotope abgeklungen sind. Weiterhin ist im Entsorgungskonzept zu berücksichtigen, daß in einer Vielzahl von Abfällen Isotope, die reine α - oder β -Strahler sind, einen wesentlichen Anteil haben und nur mit großem Aufwand nachzuweisen sind.

3.2 Kernbrennstoffe und Spaltprodukte

Kernbrennstoffe werden in Form von Brennelementen aus Bestrahlungsexperimenten aus Forschungsreaktoren oder aus Leistungsreaktoren angeliefert. Kernbrennstoffzusammensetzung und Aktivitätsinventar werden mit entsprechenden Programmen berechnet und als Buchführungswerte festgehalten. In den Heissen Zellen erfolgt eine Bearbeitung und Prüfung der Brennelemente. Die Elemente werden später ganz oder in Teilmengen abgegeben, wobei die Massenbestimmung durch Wägen und Dimensionsmessung erfolgt.

Als Abgabewerte werden wieder die Buchungswerte verwendet, wobei endgültig Eingang gleich Ausgang sein muß.

Problematisch ist die Buchung von Kleinstmengen oder Gemischen, die z.B. durch Schleifen und Trennen entstehen. Diese werden als Staub an unterschiedlichen Stellen abgelagert und mit Kleenex, PVC-Folie, Schleifteller vermischt oder in Staubsaugerbeutel abgegeben. Gleichzeitig gelangen Metallstäube und -späne, Graphit mit Spaltprodukten vermischt in den Abfall. Eine eindeutige Charakterisierung dieser Abfälle entsprechend den festgelegten Richtlinien ist nicht möglich.

Die bestrahlten Kernbrennstoffe und auch die Graphite des HTR-Brennelements enthalten eine Vielzahl von Spaltprodukten, die vom Alter und der Brennstoffzusammensetzung beeinflusst werden. Nach einer zweijährigen Abklingzeit wird die Hauptaktivität von etwa 10 Spaltprodukten bestimmt, wobei 4 von diesen reine β -Strahler sind. Mit hohem Brennstoffalter stellen aber nur noch die 4 Isotope Sr 90, Y 90, Cs 137 und Ba 137m einen Anteil von fast 90 % der Aktivität dar. Von diesen Isotopen sind 3 β -Strahler und nur Ba 137m als Gammastrahler zerstörungsfrei in Gebinden nachweisbar. Da das Alter des Brennstoffs in der Regel bekannt ist, ist es möglich, über Schlüsselnuklide kernbrennstoffhaltige Abfallgebinde zu charakterisieren, falls man bestrahlte Kernbrennstoffe verschiedenen Alters und verschiedener Zusammensetzung nicht vermischt.

| Isotop | Gammalinie MeV | % Anteil | | |
|---------|-------------------|----------|--------|--------|
| | | Gem. 1 | Gem. 2 | Gem. 3 |
| Sr 90 | β | 8 | 17 | 22 |
| Y 90 | | | | |
| Ru 106 | β | 5 | 1 | - |
| Rh 106 | | | | |
| Cs 134 | 0,60 | 2 | 8 | 1 |
| Cs 137 | β | 9 | 17 | 23 |
| Ba 137m | | | | |
| Ce 144 | 0,13 | 16 | 5 | - |
| Pr 144 | 0,7/2,2 | 16 | 5 | - |
| Pm 147 | β, 0,12 | 11 | 6 | 3 |
| Eu 154 | 0,12/1,3 | - | 1 | 1 |
| Summe | | 88 | 94 | 94 |
| Rest | | 12 | 6 | 6 |

Tab. 2: Prozentualer Anteil verschiedener Spaltproduktaktivitäten an der Gesamtaktivität eines Spaltstoffgemisches

| | |
|--------|--|
| Gem. 1 | HTR-LEU-Brennelemente ca. 2-4 Jahre alt |
| Gem. 2 | HTR-Brennelemente 3-8 Jahre alt, vornehmlich U/Th |
| Gem. 3 | HTR-Brennelemente 5-13 Jahre alt, U/Th |

3.3 Keramische Werkstoffe einschließlich Graphit

In bestrahltem Reaktorgraphit lassen sich ca. 20 Isotope gammaspektrometrisch nachweisen. Diese stammen aus der Aktivierung der Verunreinigungen des Graphits, die im ppm-Bereich liegen. Wie Tab. 3 zeigt, kann man bei Proben mit 2 Monaten Abklingzeit auf 6 Schlüsselisotope zurückgreifen. Aktivitätsschwankungen treten von Graphitsorte zu Graphitsorte auf und können einen

Faktor von 2-3 ausmachen; in der Regel werden mehrere Sorten gleichzeitig untersucht. Eine Nachmessung von Charge zu Charge ist zu aufwendig und auch nicht immer sinnvoll. Nicht aufgeführt ist das C 14, daß natürlich vorhanden ist.

| Isotop | %-Anteil | Halbwertszeit |
|--------|----------|---------------|
| Sc 46 | 25 | 84 d |
| Mn 54 | 5 | 314 d |
| Co 60 | 25 | 5,3 a |
| Eu 154 | 10 | 8,5 a |
| Ta 182 | 20 | 115 d |
| Pa 233 | 15 | 27 d |
| Summe | 90 | |
| Rest | 10 | |

Tab. 3: Charakteristische Aktivierungsprodukte in bestrahltem Reaktorgraphit nach 2 Monaten Abklingzeit

Auch in diesem Fall können die Abfälle nur über Schlüssel-Nuklide charakterisiert werden.

3.4 Stähle (Tab. 4)

Zur Untersuchung gelangen in der Regel Proben von mehreren Stahlsorten. Theoretisch müßte man je Sorte die Aktivierungsprodukte ausrechnen und bei der Abgabe als Abfall deklarieren. Dies ist nicht praktikabel, weil während der Untersuchungen Durchmischungen des Abfalls auftreten. Auch im vorliegenden Fall empfiehlt es sich, einige Schlüsselnuklide als Indikator einzusetzen, wobei man allerdings zwischen Druckbehälterstahl und Austenitischen Werkstoffen (Cr-, Ni-Stählen) unterscheiden muß.

| | Halbwert- Zeit | Gamma- Aktivität MeV | % Anteil Sorte 1* Sorte 2* | |
|--------|-------------------|----------------------------|-------------------------------|------|
| Cr 51 | 27,8 d | 0,32 | 12 | 22 |
| Mn 54 | 314 d | 0,84 | 10 | 1 |
| Fe 55 | 2,9 a | K | 40 | 20 |
| Co 58 | 71 d | 0,81 | 6 | 5 |
| Fe 59 | 45,1 d | 1,99/1,29 | 22 | 1 |
| Co 60 | 5,27 a | 1,33/1,17 | - | 11 |
| Ta 182 | 115 d | 1,12/1,22 | - | 30 |
| Summe | | | ~ 90 | ~ 90 |

* Sorte 1: Druckbehälterstahl 20 MnMoNi 55
 Sorte 2: Austenitisches Material 1.4981

Tab. 4: Aktivität von 2 charakteristischen Stählen nach ca. 200 d Neutronenbestrahlung und ca. 100 d Abklingzeit

3.5 Filter

Die Zellenabluft wird 3 mal gefiltert und zwar über einen Vorfilter in der Zelle, einem Absolutfilter (für jede Zelle gesondert) und einer Filterbank für die gesamte Abluft. Mehr als 98% der radioaktiven Aerosole werden in den beiden Zellenfiltern zurückgehalten. In erster Näherung kann man davon ausgehen, daß die Filterabfälle die gleiche Zusammensetzung haben, wie die Zellenabfälle. Zur Bestimmung der Aktivität wurde das Absolutfilter einer Zelle zerlegt und eine entnommene "Filterfaltung" in eine dünne PVC-Folie eingeschweißt und untersucht. Die zur Verfügung stehende Fläche hatte eine Abmessung von 500 x 470 mm² und wurde in Einzelmeßflächen von 100 x 94 mm² aufgeteilt. Gemessen wurde die Dosisleistung, wobei eine abgeschirmte Meßanordnung gewählt wurde. Die Aktivität schwankte von Meßfläche zu Meßfläche zwischen 1x10⁵ Bq und 3,5x10⁵ Bq. Die Gesamtaktivität

wurde mit 4×10^8 Bq berechnet. Ca. 99% Aktivität stammte von den Isotopen Sr 90/Y 90 und Cs 137/Ba 137m. Das Verhältnis von Sr 90 zu Cs 137 betrug 9/1, das α/β -Verhältnis 1/5000. Ein solches Ergebnis ist charakteristisch für eine Zelle, in der eine Vielzahl von HTR-Brennelementen gehandhabt bzw. zerstörungsfrei untersucht werden.

4. Aktivitätsbestimmung von Abfallgebinden

Abfälle aus dem Bereich der Heissen Zellen mit hoher Aktivität sind überwiegend kleine Proben, die konzentriert in kleinen 5 ltr. Behältern fixiert abgegeben werden. Näherungsweise können die Proben als Punktquelle betrachtet werden. Die Aktivität wird über eine Dosisleistungsmessung in 1 m Abstand bestimmt.

Die geforderte Aktivitätsangabe von Einzelnucliden ist nur bedingt möglich. Möglich ist die Angabe von Schlüsselnucliden, die Gamma-Emitter sind. Es wurden vorab einige Beispiele der Nuclidzusammensetzung für genau charakterisierte Materialien zusammengestellt. Da es das Ziel eines Forschungsprogramms ist, den Einfluß von Materialvarianten zu untersuchen, schwankt die Isotopenverteilung von Probe zu Probe - nur eine charakteristische Richtanalyse möglich.

Ähnliche Probleme treten natürlich auch bei der Abgabe von bestrahlten Kernbrennstoffen auf. Für den Fall, daß komplette Elemente oder Brennelement-Segmente abgegeben werden, lassen sich über die Bestrahlungsdaten die notwendigen Daten der Nuclidzusammensetzung berechnen. Diese Daten werden bei Abgabe als Abfall fortgeschrieben.

Schwieriger ist jedoch die Abgabe von Gemischen. Diese werden über einen längeren Zeitraum gesammelt und dann zum Waste gegeben. In diesem Fall ist es kaum möglich, realistische Angaben zu machen. Die Zusammensetzung reicht von Spaltprodukten mit einer Abklingzeit von ca. 1/2 Jahr bis zu solchen mit einer mehrjährigen Abklingzeit; hinzu kommen Stäube, Späne und Partikel aus Strukturmaterialien, z.B. Stähle.

Die Spaltprodukt- bzw. die Gesamtaktivität des Abfalls wird über die Messung der Dosisleistung in 1 m Abstand bestimmt. Aufgrund der vorliegenden Erfahrung werden folgende Umrechnungsfaktoren verwendet.

| | |
|--------------------|----------------------------------|
| Spaltprodukte | 1 m Sv/h = 4×10^{10} Bq |
| Stahl | 1 m Sv/h = 4×10^{10} Bq |
| Graphit, Keramik | 1 m Sv/h = 4×10^9 Bq |
| Allgemeiner Abfall | 1 m Sv/h = 4×10^9 Bq |
| Zellenabluftfilter | 1 m Sv/h = 1×10^{11} Bq |

In allen Fällen ist auch die α -Aktivität anzugeben. In den Heißen Zellen der KFA ist der Umgang mit Plutonium jedoch auf ein Minimum reduziert. Aufgrund von Meßwerten in den einzelnen Umgangsorten ist das α - zu β -Verhältnis bekannt, so daß über dieses Verhältnis die α -Aktivität angegeben wird. Folgende Werte wurden reproduzierbar festgestellt (Tab. 5).

| Entnahmeort | α/β -Verhältnis | α -Anteil % |
|---|----------------------------|-----------------------|
| Zelle 601, Metallographie Zerlegung von Proben | 1 : 130 | 0,8 |
| Handschuhbox, Handhabung von Kernbrennstoffen | 1 : 423 | 0,2 |
| * Zelle 501, HTR-Kugelhandhabung | 1 : 38 000 | 0,002 |
| Zelle 304, Brennstoffchemie | 1 : 156 | 0,6 |
| Abluftfilter Zelle 501 | \leq 1 : 5000 | \leq 0,02 |

Tab. 5: Zusammenstellung von Meßwerten zur α -Kontamination in verschiedenen HZ-Arbeitsstellen