11 Veröffentlichungsnummer:

0 057 430

12

EUROPÄISCHE PATENTANMELDUNG

21) Anmeldenummer: 82100593.1 61) Int. Cl.3: G 21 F 9/36

(22) Anmeldetag: 28.01.82

Priorität: 03.02.81 DE 3103557

Anmelder: Nukem GmbH, Rodenbacher Chaussee 6 Postfach 11 00 80, D-6450 Hanau 11 (DE) Anmelder: Deutsche Gesellschaft für Wiederaufarbeitung von Kernbrennstoffen mbH, Hamburger Allee 4, D-3000 Hannover 1 (DE)

Veröffentlichungstag der Anmeldung: 11.08.82 Patentblatt 82/32

> Erfinder: Vietzke, Horst, Dr. Dipl.Chem., Burgstrasse 19, D-6457 Maintal (DE)

Grünaustrasse 7, D-6450 Hanau 9 (DE) Erfinder: Hrovat, Milan, Dr. Dipl.Ing., Meisenweg 7,

D-6458 Rodenbach 2 (DE)

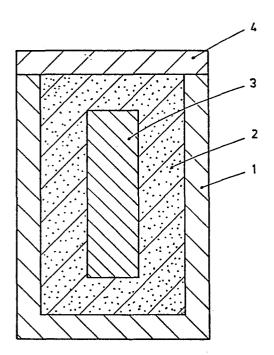
Erfinder: Schmidt-Hansberg, Thomas, Dipl.Chem.,

Lindenring 37, D-6000 Frankfurt 50 (DE)

84 Benannte Vertragsstaaten: BE DE FR GB SE

Transport- und Lagerbehälter für radioaktive Abfälle.

(57) Es wird ein Transport- und Lagerbehälter beschrieben, bestehend aus Aussenbehälter und Innenbehälter, zur Langzeitlagerung radioaktiver Abfälle, insbesondere abgebrannter Brennelemente, bei dem der Innenbehälter so korrosionssicher und druckbeständig ist, dass der Aussenbehälter aus billigem Material gefertigt werden kann. Der Innenbehälter (2) besteht aus einem monolithischen Graphitblock, in den der radioaktive Abfall (3) eingebettet ist.



81 110 KN

5

1

NUKEM GmbH 6450 Hanau 11

•

10

Transport- und Lagerbehälter für radioaktive Abfälle

15

20

Gegenstand der Erfindung ist ein Transport- und Lagerbehälter zur Langzeitlagerung von radioaktiven Abfällen, insbesondere von abgebrannten Brennele-menten, in geeigneten geologischen Formationen, bestehend aus einem Außenbehälter und einem Innenbehälter.

Bestrahlte, abgebrannte Brennelemente werden nach
einer vorübergehenden Aufbewahrung in Wasserbecken
entweder sofort oder nach einer begrenzten weiteren
Zwischenlagerung aufgearbeitet. Dabei werden die
nuklearen Brenn- und Brutstoffe von den Spaltprodukten abgetrennt und wieder dem Brennstoffkreislauf zugeführt. Die Spaltprodukte werden nach bekanten Verfahren, meist unter Verwendung großer
Mengen Wertstoffe, wie zum Beispiel Blei und Kupfer,
konditioniert und in geeigneten geologischen Formationen praktisch nicht mehr entnehmbar endgelagert.

Darüberhinaus wird überlegt (Berichte des Kern-5 forschungszentrums Karlsruhe KFK 2535 und 2650), die bestrahlten Brennelemente in absehbarer Zeit nicht aufzuarbeiten, auf die in ihnen vorhandenen Brennund Brutstoffe zunächst zu verzichten und die Brennelemente - nach einer angemessenen Abklingzeit in 10 dafür vorgesehenen Lagern - gegebenenfalls wieder entnehmbar endzulagern. Die Lagerzeiten können mehrere Generationen bis zu mehreren tausend Jahren betragen, wobei sich das Gefährdungspotential des radioaktiven Inventars in dieser Zeit, den bekannten 15 physikalischen Gesetzen folgend, entsprechend seiner Zusammensetzung außerordentlich stark verringert.

Wegen der unbestimmten Lagerdauer werden an derartige, für die Langzeitlagerung geeignete Behälter, die
gegenüber bekannten Transport- und Lagerbehältern
eine mehrfache Betriebszeit aufweisen müssen, besondere Anforderungen gestellt. Erschwerend kommt hinzu, daß die Behälterlager schwer zugänglich sein
müssen und folglich den Überwachungsmöglichkeiten
Grenzen gesetzt sind.

Es sind teilweise sehr aufwendige Konzepte bekannt, die bestrahlten Brennelementen mittels Behältern aus Metall oder Beton in Salz, Sand oder in Felskavernen zu lagern.

Als Verpackung für radioaktive Stoffe und bestrahlte Brennelemente werden Behälter aus legierten und unlegierten Stählen, aus Kupfer sowie aus Korund vor-

- geschlagen. Die Behälter aus Stahl sind entweder nicht genügend korrosionsbeständig oder wie solche aus Kupfer sehr teuer. Behälter aus Korund sind grundsäztlich geeignet, jedoch fehlen die für die Herstellung notwendigen Erfahrungen. Darüber hinaus müßten die Brennelemente zur Verpackung in die aus herstellungsbedingten Gründen kleinen Korundbehälter zerlegt werden, was mit einem erheblichen Aufwand verbunden ist.
- Solche Behälter erfüllen die Bedingungen der Langzeitlagerung, wie dichter Einschluß bei auftretenden Drucken und Temperaturen, sowie Korrosion gegen
 Salzlaugen, nur zum Teil, oder sie müssen sehr dickwandig ausgebildet werden. Außerdem eignen sie sich
 meist nicht gleichzeitig auch als Transportbehälter,
 sodaß unter erheblichem Aufwand eine Umladung der
 Abfälle vom Transportbehälter in den Endlagerbehälter erfolgen muß.
- 25 Behälter, die zum Transport und zur Lagerung radioaktiver Abfälle dienen, bestehen normalerweise aus
 einem Außenbehälter und einem Innenbehälter. Beide
 Behälterteile sind im allgemeinen aus Metall. Die
 Einhaltung der langen Lagerzeiten erfordern teure
 30 Materialien, da sie als Korrosionsbarrieren eingebaut werden müssen.
- Es war deshalb Aufgabe der vorliegenden Erfindung, einen Transport- und Lagerbehälter zur Langzeitlagerung radioaktiver Abfälle, insbesondere abge-

1

5 brannter Brennelemente, in geeigneten geologischen Formationen zu schaffen, bei dem die radioaktiven Abfälle in einem Innenbehälter korrosionssicher und druckbeständig so eingebracht werden können, daß der Außenbehälter aus billigem, minderwertigem Material hergestellt werden kann. Falls sich dieser Außenbehälter im ungünstigem Falle nach einer bestimmten Zeit im Salz oder in Salzlauge aufgelöst hat, muß der Innenbehälter einem Druck von 300 bar bei 200 °C und Salzlauge bis zum Ablauf der vorgesehenen Lagerzeit widerstehen können.

Diese Aufgabe wurde erfindungsgemäß dadurch gelöst, daß der Innenbehälter aus einem monolithischen Graphitblock besteht, in dem die radioaktiven Abfälle eingebettet sind. Dieser monolithische Graphitblock ist leicht nach bekannten Verfahren herstellbar und kann durch Korrosion nicht angegriffen werden.

Es hat sich gezeigt, daß man Graphitpulver mit Schwefel als Bindemittel bis ca. 120 °C zu Blöcken verpressen kann, bei denen nahezu die theoretische Dichte erreicht wird. Gibt man zu der Mischung noch Metallpulver, wie zum Beispiel Ni, Mn, Fe, Zn, Pb und Sn, die bei etwas höherer Temperatur mit dem Schwefel unlösliche Sulfide bilden, so erweicht der Graphitblock auch bei höheren Temperaturen nicht. Da bei der Herstellung keine höheren Temperaturen erforderlich sind, lassen sich abgebrannte Brennstäbe oder Brennelemente

- in Büchsen in einen solchen Graphitblock einbetten. 5 Ein solcher monolithischer Graphitblock, eventuell noch mit einer Stahlbüchse ummantelt, dient dann als Innenbehälter für einen Transportbehälter bekannter Bauart. Wird dieser Transportbehälter mit dem enthaltenen Graphitblock in tiefen geologischen 10 Schichten, zum Beispiel in Steinsalz endgelagert, dann kann der äußere Metallmantel, der zum Beispiel aus billigem Eisenguß besteht, durch Korrosion zerstört werden, weil der innere Graphitblock korrosionsbeständig ist und den vollen Gebirgsdruck auf-15 zunehmen vermag. Es besteht aber auch die Möglichkeit, den Graphitblock als Innenbehälter dem Außenbehälter zu entnehmen und direkt endzulagern.
- Die Abbildung zeigt schematisch einen erfindungsgemäßen Transport- und Lagerbehälter in beispielhafter Ausführungsform.
- Der Behälter besteht aus einen Außenbehälter (1), beispielsweise aus Gußeisen, und einem monolithi-25 schen Graphitblock (2) als Innenbehälter, in den die radioaktiven Abfälle, die sich vorzugsweise in Büchsen (3) befinden, eingebettet sind. Die Abfälle können vorteilhafterweise als Brennelemente offen oder in Büchsen befindlich in den Graphitblock ein-30 gepreßt werden.Es ist jedoch auch möglich, sie in Bohrungen oder sonstige Hohlräume des Graphitblocks einzubringen. Der Äußenbehälter (1) wird mit einem Deckel (4) verschlossen. Als Material für Außenbehälter und Deckel sind alle dafür bekannten Werk-35 stoffe verwendbar.

1

5

In manchen Fällen ist es vorteilhaft, den monolithischen Graphitblock metallisch zu beschichten, um eventuell noch vorhandene Poren zu verschliessen oder den Wärmeübergang auf den Außenbehälter zu verbessern, z.B. galvanisch oder stromlos.

Folgende Beispiele sollen die Herstellung solcher monolithischen Graphitblöcke als Innenbehälter näher erläutern.

Beispiel 1:

15

20

25

30

35

Zunächst wird ein sechskantiger Graphitblock von 360 mm Schlüsselweite und 4 m Länge mit 210 Kanälen im inaktiven Bereich vorgepreßt. Im heißen Bereich werden dann 210 abgebrannte Brennstäbe in die Kanäle des Blockes eingeführt, der Block oben und unten mit einer ebenfalls vorgepreßten Graphitscheibe versehen und in einer Heißpresse fertiggepreßt.

Als Preßpulver dient zum Beispiel eine Mischung aus 43,3 % Graphitpulver, 36,7 % Nickelpulver und 20 % Schwefelblüte. Zur Verformung des Blockes wird eine 4-Säulenpresse mit 3 hydraulischen Antrieben verwendet. Der Hub des sechskantigen Unterstempels reicht nahezu über die gesamte (4 m) Matrizenlänge. Zur Formung der Kanäle dienen 210 polierte Stahlstäbe, die von unten durch die Matritze eingefahren werden können. Das Pressen geschieht abschnittweise. In der gleichen Presse, jedoch mit glatten Stempeln (ohne Löcher), werden Sechskantscheiben von 180 mm Stärke vorgepreßt, die später als Boden und Deckel dienen.

Die so vorgepreßten Teile werden dann in eine heiße Zelle transportiert und dort in eine Heißpresse eingesetzt. In die Matrize wird zunächst eine vorgepreßte Scheibe (als Boden) gelegt, auf die der 4 m lange Block gestellt wird. Dann werden abgebrannte Brennstäbe (210 Stck.) in die Kanäle eingeführt.

Der obere Freiraum bis zum Brennstab wird mit Preßpulver gefüllt und der vorgepreßte obere Deckel aufgesezt. Wenn der Preßblock durch Heizen und Strahlungswärme 120 °C erreicht hat, wird mit dem Fertig-15 pressen bei 50 MN/m² begonnen. Die Temperatur wird unter Beibehaltung des Druckes weitergesteigert und muß bei Anwendung von Nickelpulver 400 bis 450 °C erreichen, damit der Schwefel quantitativ als NiS abgebunden wird. Unterhalb 400 °C kann der entste-20 hende, hochdichte Graphitblock bereits aus der Matritze ausgestoßen werden. Für den Transport, zum Zwischen- oder Endlager wird dieser Graphitblock in einen Transportbehälter aus Eisengraphitguß einge-25 setzt. Eine Endlagerung ist auch ohne den Außenbehälter möglich, indem der Graphitblock direkt ins Bohrloch eines Salzbergwerkes eingesetzt wird.

30 Beispiel 2:

35

Während bei Beispiel 1 das Brennelement vorher in Einzelstäbe zerlegt werden muß, ist auch die direkte Einbettung ganzer Brennelemente (~235 Brennstäbe) möglich.

Von einem Biblis-Brennelement werden die Endstücke abgesägt, um die Gesamtlänge klein zu halten. Ein Stahlzylinder von 230 mm Innendurchmesser und 4,30 m Länge dient zur Aufnahme des Brennelement-rumpfes. Die Enden des Zylinders bestehen aus Kugelkalotten, die dicht mit dem Zylinder verschweißt werden. Diese Brennelementbüchse soll einen Außendruck von 300 bar aushalten.

In einer heißen Zelle wird diese Brennelementbüchse in einen nach Beispiel 1 vorgefertigten Graphitzylinder mit nur einem Hohlkanal eingesetzt, an den offenen Enden mit vorgepreßten Deckeln in die Heißpresse eingesetzt und wie in Beispiel 1 fertiggepreßt.

Außer Nickelpulver und Schwefelblüte können selbstverständlich auch alle anderen Bindemittel verwendet werden, die bei einer Temperatur, bei der die Spaltprodukte nicht oder kaum flüchtig sind, zu dichtem Graphit führen.

25

30

- 9 -

81 110 KN

5

N U K E M G m b H 6450 Hanau 11

٠, -

10

15

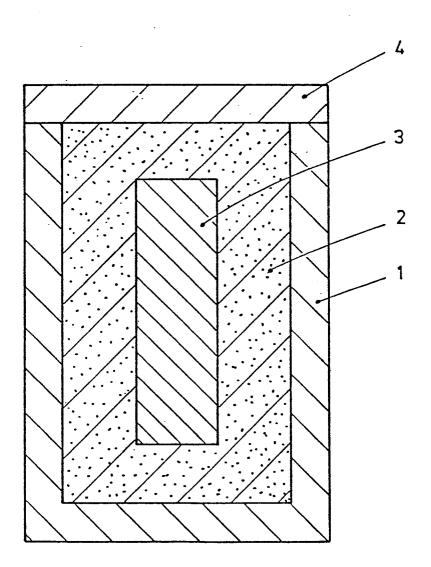
Patentansprüche

20

- 1. Transport- und Lagerbehälter zur Langzeitlagerung von radioaktiven Abfällen, insbesondere von abgebrannten Brennelementen, in geeigneten geologischen Formationen, bestehend aus einem Außenbehälter und einem Innenbehälter, dadurch gekennzeichnet, daß der Innenbehälter (2) aus einem monolithischen Graphitblock besteht, in den die radioaktiven Abfälle (3) eingebettet sind.
- 2. Transport- und Lagerbehälter nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß die Abfälle (3), offen
 - oder in einer Büchse sich befindlich, in den monolithischen Graphitblock (2) eingepreßt sind.

3. Transport- und Lagerbehälter nach Anspruch 1 und2, dadurch gekennzeichnet, daß der Graphitblock(2) metallisch beschichtet ist.

Transport- und Lagerbehälter nach Anspruch 1 bis
 3, dadurch gekennzeichnet, daß der Graphitblock
 Metallsulfide als Bindemittel enthält.



Abbildung



EUROPÄISCHER RECHERCHENBERICHT

Nummer der Anmeldung

82 10 0593

	EINSCHLAG	IGE DOKUMENTE		
ategorie		ts mit Angabe, soweit erforderlich, eblichen Teile	Betrifft Anspruch	KLASSIFIKATION DER ANMELDUNG (Int. Cl. ³)
х	US-A-3 993 579 * Anspruche 1,8		1,2	G 21 F 9/36
х	GB-A-2 048 554 * Ansprüche 1, 2917437	(NUKEM) 4,7 * & DE - A -	1,2,4	
Y	US-A-3 828 197 * Ansprüche 1,4		1	
P,X	DE-A-2 942 092 * Ansprüche 1,3		1	·
				RECHERCHIERTE SACHGEBIETE (Int. Cl. ³)
				G 21 F 9/00 G 21 F 5/00 G 21 F 1/00
				'
Der	vorliegende Recherchenbericht wur	de für alle Patentansprüche erstellt.		
Recherchenort Abschlußdatum der Recherche 28-04-1982		NIC	Prüfer OLAS H.J.F.	
X: vo Y: vo	ATEGORIE DER GENANNTEN Don besonderer Bedeutung allein besonderer Bedeutung in Verbderen Veröffentlichung derselbechnologischer Hintergrund chtschriftliche Offenbarung	petrachtet nac	h dem Anmeldeda	ent, das jedoch erst am ode atum veröffentlicht worden is geführtes Dokument angeführtes Dokument

EPA Form 1503. 03.82