

①⑨



Europäisches Patentamt
European Patent Office
Office européen des brevets

①⑪

Veröffentlichungsnummer: **0 061 067**
B1

①⑫

EUROPÄISCHE PATENTSCHRIFT

④⑤

Veröffentlichungstag der Patentschrift:
13.11.85

⑤①

Int. Cl. 4: **G 21 F 5/00, G 21 F 9/36**

②①

Anmeldenummer: **82101891.8**

②②

Anmeldetag: **10.03.82**

⑤④

Verfahren zum Einschliessen verbrauchter Brennstäbe eines Kernreaktors in einem Behälter aus Kupfer.

③⑩

Priorität: **20.03.81 SE 8101778**

⑦③

Patentinhaber: **ASEA AB, S-721 83 Västerås (SE)**

④③

Veröffentlichungstag der Anmeldung:
29.09.82 Patentblatt 82/39

⑦②

Erfinder: **Larker, Hans, Prästvågen 4,
S-915 00 Robertsfors (SE)**
Erfinder: **Tegman, Ragnar, Rödhakevågen 32,
S-902 37 Umeå (SE)**

④⑤

Bekanntmachung des Hinweises auf die Patenterteilung:
13.11.85 Patentblatt 85/46

⑦④

Vertreter: **Boecker, Joachim, Dr.-Ing.,
Rathenauplatz 2-8, D-6000 Frankfurt a.M. 1 (DE)**

⑧④

Benannte Vertragsstaaten:
CH DE FR GB IT LI

⑤⑥

Entgegenhaltungen:
FR - A - 2 375 695
FR - A - 2 375 696
FR - A - 2 430 651
FR - A - 2 432 752
US - A - 4 115 311

**SPRECHSAAL, Jahrgang 113, Nr. 10, Oktober 1980,
Seiten 753-764, Coburg, DE. D. ERMEL: "Endlagerung
von abgebrannten Kernbrennelementen in
Tonerde-Behältern"**

EP 0 061 067 B1

Anmerkung: Innerhalb von neun Monaten nach der Bekanntmachung des Hinweises auf die Erteilung des europäischen Patents im Europäischen Patentblatt kann jedermann beim Europäischen Patentamt gegen das erteilte europäische Patent Einspruch einlegen. Der Einspruch ist schriftlich einzureichen und zu begründen. Er gilt erst als eingelegt, wenn die Einspruchsgebühr entrichtet worden ist (Art. 99(1) Europäisches Patentübereinkommen).

Beschreibung

Die Erfindung betrifft ein Verfahren zum Einschließen verbrauchter Brennstäbe eines Kernreaktors in einem Behälter aus Kupfer gemäß dem Oberbegriff des Anspruches 1.

Bei einem vorgeschlagenen Verfahren zur Handhabung radioaktiven Abfalls zwecks Endlagerung werden verbrauchte Brennstäbe eines Kernreaktors direkt, d. h. ohne Aufarbeitung, in dichte Behälter aus korrosionsbeständigem Material eingeschlossen. Gemäß einem bekannten Verfahren werden dabei verbrauchte Brennstäbe in einem Behälter aus Kupfer plaziert und in dem Behälter in Blei eingebettet, indem dem Behälter geschmolzenes Blei zugeführt wird, das dann im Behälter erstarrt. Danach wird der Behälter mit einem Deckel aus Kupfer versehen, der unter Bildung einer dichten Naht mit dem Behälter zusammengeschweißt wird.

Aus der Druckschrift »Sprechsaal« 113 (1980), Seite 756 ff ist ein Verfahren zum Einschließen verbrauchter Brennstäbe bekannt, bei welchem die Brennstäbe zunächst in einen Stahlbehälter eingeschlossen werden. Dieser Stahlbehälter wird dann lose, also ohne zusätzliches Einbettungsmaterial, in ein aus Tonerde bestehendes Aufnahmegefäß eingebracht. Das Tonerdegefäß wird dann mit einem Deckel versehen, und die gesamte Einheit wird isostatisch heißgepreßt.

Aus der FR-A-2 375 695 ist ein Verfahren zur Einschließung von radioaktivem Abfall bekannt, bei welchem ein in bestimmter Weise aufbereiteter radioaktiver Abfall enthaltender Körper in eine Kupferkapsel eingebracht und in dieser in Kupferpulver eingebettet wird, worauf die gesamte Einheit isostatisch heißgepreßt wird. Voraussetzung für dieses Verfahren ist jedoch, daß das radioaktive Material des in die Kupferhülle eingeführten Körpers bereits in einem gegenüber der Umgebung beständigen Material eingeschlossen ist, nämlich in einer erstarrten Glaschmelze oder einem gesinterten oxydischen oder anderen anorganischen Material. Der radioaktive Abfall muß also vor Anwendung dieses Verfahrens durch ein aufwendiges anderes Verfahren in einen stabilen und druckbeständigen Körper übergeführt werden.

Der Erfindung liegt die Aufgabe zugrunde, ein im Verhältnis zu den bekannten Verfahren einfaches Verfahren der eingangs genannten Art zu entwickeln, durch welches die verbrauchten Brennstäbe in einer gegen Korrosionsangriffe sehr widerstandsfähigen und nach außen dichten Weise geschützt sind.

Zur Lösung dieser Aufgabe wird ein Verfahren gemäß dem Oberbegriff des Anspruches 1 vorgeschlagen, welches erfindungsgemäß die im kennzeichnenden Teil des Anspruches 1 genannten Merkmale hat.

Vorteilhafte Weiterbildungen der Erfindung sind in den Unteransprüchen genannt.

Der Erfindung liegt die Erkenntnis zugrunde, daß erhebliche Vorteile erzielt werden, wenn als Einbettungsmaterial für die verbrauchten Brennstäbe

Kupferpulver anstelle von Blei verwendet wird und wenn das Verschließen des Behälters und des Deckels dabei durch isostatisches Pressen erfolgt. Eine höhere Widerstandsfähigkeit gegen Korrosionsangriffe wird dadurch erreicht, daß der aus dem Kupferpulver, dem Behälter und dem Deckel gebildete massive Körper aus Kupfer gegen Korrosion widerstandsfähiger ist als ein Behälter aus Kupfer mit einem darin angeordneten Körper aus Blei. Dies hängt zum einen damit zusammen, daß Kupfer an sich widerstandsfähiger als Blei ist und zum anderen damit, daß die Schutzschichten aus einem einheitlichen Material bestehen. Ein weiterer Vorteil besteht darin, daß das Innere des Behälters frei von Kavitationen hergestellt werden kann, was beim Eingießen von Blei in den Behälter und Festschweißen eines Deckels kaum möglich ist. Ein weiterer Vorteil besteht darin, daß die Naht zwischen dem Behälter und dem Deckel bei dem Verfahren nach der Erfindung vollkommen dicht und völlig zuverlässig wird. Die Materialien von Behälter und Deckel gehen in diesem Fall ineinander über, ohne daß zwischen Behälter und Deckel eine Fuge oder eine Übergangsstelle mit einer anderen Materialzusammensetzung vorhanden ist. Das Zusammenschweißen von Kupferteilen mit großer Wandstärke, wie dies bei dem bekannten Verfahren der Fall ist, ist mit großen Schwierigkeiten verbunden und ergibt eine Naht, die eine andere Struktur hat, als das daran angrenzende Material. Die Naht kann daher eine geschwächte Stelle im verschlossenen Behälter werden.

Normalerweise kann die gasdichte Kapsel auf dem fertig gepreßten Körper verbleiben, wenn dieser zwecks Endlagerung deponiert wird. Die Kapsel kann aus Blech derselben Qualität wie der Behälter hergestellt werden, d. h. aus Kupfer. Hierdurch wird die Wahrscheinlichkeit, daß ein zusammenhängender Materialfehler oder ein Defekt im Kupfermaterial auftreten kann, erheblich vermindert. Die äußere Kapsel kann auch aus einem anderen Material, das einen ergänzenden Korrosionsschutz für Kupfer ergibt, wie z. B. rostfreier Stahl oder Titan, hergestellt werden.

Der Behälter, der Deckel und das Kupferpulver werden vorzugsweise aus einem Kupfer hochreiner Qualität mit einem niedrigen Sauerstoffgehalt, mindestens 99,95% Cu (einschließlich kleiner Mengen Ag), einer sog. OFHC-Art (Oxygen Free High Conductivity) hergestellt. Es wird angenommen, daß eine solche Qualität dem fertigen Produkt eine gute Korrosionsbeständigkeit gibt. Alternativ kann hochreines Kupfer verwendet werden, das mit kleinen Mengen Phosphor (max. 0,015% P) desoxidiert wurde. Die Partikel des Kupferpulvers sind vorzugsweise sphärisch oder wenigstens zum überwiegenden Teil sphärisch. Partikel mit einer solchen Form haben ein gutes Fließvermögen und ergeben dadurch einen hohen Füllungsgrad. Der Fül-

lungsgrad kann durch die Verwendung von sphärischem Pulver mit mindestens zwei verschiedenen Korngrößen verbessert werden. Eine geeignete Korngröße für die eine der beiden Fraktionen ist dabei 0,5–1,5 mm und für die andere Fraktion 0,1–0,2 mm. Bei der letztgenannten Fraktion kann es sich alternativ um eine gradierte Fraktion mit einer Korngröße von maximal 0,2 mm handeln. Dadurch, daß man den Behälter und/oder die Brennelemente bei Füllen leichten Schlägen oder Vibrationen aussetzt, kann der Füllungsgrad des Kupferpulvers weiter verbessert werden. Außerdem kann zu demselben Zweck vorübergehend eine vibrierende Stampfvorrichtung auf oder in dem eingefüllten Kupferpulver angebracht werden.

Das isostatische Pressen zur Bildung der zusammenhängenden dichten Einheit aus Behälter, Deckel und Pulver geschieht vorzugsweise bei einem Druck von mindestens 10 MPa und bei einer Temperatur von 500–800°C.

Um schnell und sicher ein dichtes und beständiges Zusammenfügen von Deckel und Behälter bei dem isostatischen Pressen zu erreichen, ohne daß es erforderlich ist, hohe Temperaturen und lange Behandlungszeiten zu verwenden, ist es wichtig, daß die zu verbindenden sich berührenden Flächen vor dem Zusammenlegen durch eine geeignete Behandlung, wie z. B. Schruppen, Sandstrahlreinigung, Metallbürsten, Abwaschen oder Ätzen, von fremden Stoffen befreit werden. Besonders wichtig ist es, daß diese Flächen von Oxydbelägen befreit werden, was durch Abwaschen mit Säure oder durch Wasserstoffgasreduktion des Oxydbelags bei erhöhter Temperatur geschehen kann.

Dadurch, daß man den eben genannten Fugenflächen eine gewisse Textur, wie Rillen, Risse oder ein geprägtes Muster, gibt, werden beim Aufbringen des Druckes Teile der Kontaktflächen kräftig plastisch verformt und gleichzeitig werden reine und frische Metallflächen erzeugt. Hierdurch wird der Fugbereich reaktionsfreudiger, was die Bildung einer dichten Naht zwischen Deckel und Behälter bei dem isostatischen Pressen erleichtert. Ferner kann man einerseits durch die genannte Texturierung der Fugenflächen und andererseits dadurch, daß man die aneinander anliegenden Flächen von Deckel und Behälter an mindestens einem dieser beiden Teile stufenförmig oder konisch ausbildet, oder dadurch, daß man den Deckel mit einem zentralen, in den Behälter mit Passung hineinragenden Zylinderteil verzieht, die tatsächliche Fugenlänge im Vergleich mit einem ebenen und glatten Deckel auf das Zwei- bis Dreifache verlängern. Hierdurch wird die Sicherheit weiter vergrößert, bei dem nach folgenden isostatischen Heißpressen eine zusammenhängende dichte Einheit aus Deckel und Behälter zu erreichen. Außerdem wird die Montage des Deckels auf der Kapsel durch die mechanische Führung erleichtert, die durch eine stufenförmige Ausführung der aneinander anliegenden Teile oder durch ein zentrales Zylinderteil erzielt wird. Zugleich wird hierdurch

verhindert, daß beim Aufbringen des Druckes und bei der Kompaktierung Lageverschiebungen eintreten.

Damit jeder Brennstab für sich allseitig in einer vorbestimmten Lage im Behälter eingebettet wird, können die Brennstäbe bei der Zufuhr des Kupferpulvers und dem Schließen des Behälters durch Distanzelemente auf Abstand voneinander gehalten werden. Gemäß einer vorteilhaften Ausführungsform handelt es sich bei den Distanzelementen um Abstandshalter, normalerweise aus rostfreiem Stahl, in welchen die Brennstäbe, zu Brennelementbündeln zusammengefaßt, während des Betriebs im Kernreaktor angeordnet sind. Die Brennelementbündel können dabei, nachdem die Brennstäbe im Reaktor verbraucht sind, ohne Montagearbeit im Kupferbehälter plaziert und gemäß der vorliegenden Erfindung zum Einschließen und zur Endlagerung behandelt werden. Gemäß einer anderen vorteilhaften Ausführungsform der Erfindung bestehen die Distanzelemente aus Kupfer. Diese Ausführungsform ist besonders dann geeignet, wenn die Brennstäbe demontiert, d. h. nicht in Form von Bündeln in Abstandshaltern angeordnet sind. Distanzelemente aus Kupfer mit dem sie umgebenden eingeschütteten Kupferpulver ergeben beim Pressen eine homogene Einheit ohne Übergangsstellen mit anderer Struktur.

Bevor das isostatische Pressen des Behälters mit Deckel und Inhalt zur Bildung einer zusammenhängenden dichten Einheit aus den Kupferbestandteilen durchgeführt wird, werden die Kupferbestandteile gemäß einer besonders vorteilhaften Ausführungsform der Erfindung durch isostatisches Pressen bei einer niedrigeren Temperatur als der, die beim endgültigen Pressen verwendet wird, einer Kriechdehnung unterworfen. Dabei sind die Kupferbestandteile entweder in der verschlossenen gasdichten Kapsel angeordnet, die beim endgültigen Pressen verwendet wird, oder sie sind — wenn ohne Kapsel gearbeitet wird — derart angeordnet, daß der Deckel gasdicht mit dem Behälter verbunden ist. Für die Kriechdehnung wird vorzugsweise mit einem Druck von mindestens 10 MPa und einer Temperatur von 300–500°C gearbeitet. Dadurch, daß man die Teile aus Kupfer auf diese Weise bei einer Temperatur isostatisch preßt, die niedriger ist als die bei dem endgültigen Zusammenfügen der Teile verwendete Temperatur, erzielt man einen effektiven Stützdruck auf die Brennstoffrohre der Brennstäbe während der weiteren Erwärmung. Hierdurch kann man die Gefahr beseitigen oder zumindest wesentlich verringern, daß in den Brennstoffrohren befindliches Gas bei der weiteren Erwärmung auf die Temperatur, die für die Bildung einer zusammenhängenden Einheit aus den Kupferbestandteilen Pulver, Behälter und Deckel erforderlich ist, einen solchen Druck bewirkt, daß in den Brennstoffrohren ein Dehnungsbruch auftritt. Die Brennstoffrohre enthalten nämlich Gase, unter anderem Helium und Spaltgase, die bereits bei Zimmertemperatur einen Druck von 50–80 Bar in den Brennstäben

verursachen können.

Anhand der Figuren soll das Verfahren nach der Erfindung näher erläutert werden. Es zeigt

Fig. 1 eine erste Ausführungsform eines Behälters mit Brennstäben, Pulver und Deckel vor Durchführung des isostatischen Pressens, wobei eine zusätzliche äußere Hülle verwendet wird,

Fig. 2 eine andere Ausführungsform eines Behälters mit Brennstäben, Pulver und Deckel vor dem isostatischen Pressen, jedoch ohne zusätzliche äußere Hülle,

Fig. 3 einen Teil der Anordnung nach Fig. 1 in vergrößertem Maßstab.

In einem Behälter 10 aus Kupfer wird gemäß Fig. 1 eine Vielzahl verbrauchter Brennstäbe 11 eines Kernreaktors angeordnet. Die Brennstäbe, die aus Zirkaloyrohren mit darin gestapelten Tabletten aus Uran-dioxyd bestehen, verbleiben in den Abstandshaltern 12, welche die Brennstäbe jedes Brennelementbündels im Kernreaktor zusammenhalten. In den Fig. 1 und 2 sieht man vier Brennelementbündel 13, 14, 15 und 16.

Die Brennelementbündel können eventuell auf nicht dargestellten Stützen am Boden des Behälters oder auf einem Bett aus Kupferpulver platziert werden. Der Behälter wird danach im Ganzen unter Vibration mit einer Pulvermischung 17 aus 70 Gewichtsteilen eines Pulvers mit sphärischen Partikeln mit einem Durchmesser von 0,5–1,5 mm und 30 Gewichtsteilen eines Pulvers mit sphärischen Partikeln mit einem Durchmesser von 0,1–0,2 mm gefüllt. Danach wird auf dem Behälter ein Deckel 18 aus Kupfer platziert. Behälter, Deckel und Pulver bestehen aus der anfangs genannten Kupferqualität, die 99,95% Cu (einschließlich kleiner Mengen Ag) enthält. Der Teil 19 des Deckels, der an dem Behälter anliegt, ist stufenförmig ausgebildet. Der Deckel hat ein zentrales, unteres Teil 20, das in den Behälter hineinragt. Die aneinander anliegenden Flächen 10a und 18a von Behälter 10 und Deckel 18 sind, wie aus Fig. 3 hervorgeht, texturiert. Die Flächen werden vor dem Aufsetzen des Deckels auf den Behälter gut gereinigt und mit Säure von Oxyd befreit. Der Behälter mit Deckel und Inhalt wird in einer Kapsel 21 aus Kupferblech oder Stahlblech gesetzt, deren aus Kupferblech bzw. aus Stahlblech bestehender Deckel 22 unter Bildung einer gasdichten Naht 23 festgeschweißt wird. Der Deckel ist mit einem Rohrstutzen 24 aus Kupfer bzw. Stahl versehen, der zwecks Evakuierung der Kapsel mit Inhalt an eine Vakuumpumpe angeschlossen werden kann. Nach der Evakuierung wird die Kapsel verschlossen, indem der Rohrstutzen oberhalb der oberen Fläche des Deckels zugeschweißt wird.

Die Kapsel mit Inhalt wird in zwei Schritten isostatisch heißgepreßt mit einem Gas, z. B. Argon, als Druckmittel in einem Ofen zum isostatischen Pressen der Art, wie er in der DE-A-2 747 951 beschrieben wird. Beim ersten Schritt wird die Kapsel 2–10 Stunden lang einem Druck von 80 MPa und einer Temperatur von 450–500°C ausgesetzt. Dabei erfahren das Kupfer des Behälters, des Deckels und das Pulver eine

Kriechdehnung, die zur Folge hat, daß die Füllung aus dem Kupferpulver den Brennstäben einen wirkungsvollen Stützdruck gibt, der einen Dehnungsbruch in den Zirkaloyrohren verhindert, der dadurch auftreten könnte, daß der Druck des in diesen Rohren befindlichen Gases bei weiterer Erwärmung zunimmt. Diese Behandlung hat jedoch nicht zur Folge, daß die Pulverkörner, der Behälter und der Deckel eine Einheit mit voll ausgebildeter Bindung bilden. Dies erreicht man dadurch, daß die Temperatur im Ofen auf ca. 700°C erhöht wird, wobei der Druck ohne weitere Gaszufuhr gleichzeitig auf ca. 100 MPa steigt, und dadurch, daß diese Bedingungen 1 bis 4 Stunden beibehalten werden. Nachdem die Kapsel mit Inhalt während eines zweiten Schrittes also einem isostatischen Pressen unterzogen wurde, läßt man sie mit dem eingeschlossenen Material abkühlen, wonach der Druck auf Atmosphärendruck gesenkt und die Kapsel aus dem Ofen herausgenommen wird. Normalerweise kann die Kapsel auf dem zusammengepreßten Produkt sitzen bleiben, wenn dieses zwecks Endlagerung deponiert wird.

Bei einer alternativen Ausführung wird eine Mischung 17 benutzt, die aus 55 Gewichtsteilen eines Pulvers mit sphärischen Partikeln mit einem Durchmesser von 0,8–1,0 mm und aus 45 Gewichtsteilen eines Pulvers mit sphärischen Partikeln mit einem Durchmesser von 0,2 mm und darunter besteht. Dabei erhält man eine Füll-dichte von 81% der theoretischen Dichte. Nach der Evakuierung der Kapsel 21 mit Inhalt wird die Kapsel auf 350°C erhitzt, worauf sie mit Wasserstoffgas mit einem Druck von 0,1 MPa gefüllt wird. Nachdem diese Temperatur eine halbe Stunde lang aufrechterhalten wurden, wird die Kapsel evakuiert und wieder mit Wasserstoffgas gefüllt. Diese Behandlung mit Wasserstoffgas bei 350°C wird mehrmals, beispielsweise siebenmal, zweckmäßigerweise mit einer sukzessiv verlängerten Behandlungszeit, wie z.B. bis zu 10 Stunden, wiederholt. Die Wasserstoffgasbehandlung bewirkt eine Reduzierung eventuell vorhandener Kupferoxyde. Nach beendeter Wasserstoffgasbehandlung wird die Kapsel evakuiert und, wie im oben beschriebenen Fall, verschlossen. Das isostatische Pressen erfolgt während des ersten Schrittes bei 400–450°C und während des zweiten Schrittes bei 250°C. Diese alternative Ausführung erfolgt im übrigen unter denselben Bedingungen wie im vorher beschriebenen Fall.

Bei dem in Fig. 2 gezeigten Ausführungsbeispiel wird keine besondere Kapsel verwendet, um das Material gasdicht im Behälter einzuschließen. Statt dessen ist der Behälter 10 und der Deckel 18 mit je einem Flansch 25 bzw. 26 versehen. Nach der Platzierung der Brennstäbe im Behälter und Füllung desselben mit dem Kupferpulver werden die Flansche 25 und 26 durch Schweißen oder Kaltpressen zu einer gasdichten Naht 27 zusammengefügt. Der Deckel ist mit einem Rohrstutzen 28 aus Kupfer versehen, der nach der Evakuierung des Behälters mit gasdicht

lungsgrad kann durch die Verwendung von sphärischem Pulver mit mindestens zwei verschiedenen Korngrößen verbessert werden. Eine geeignete Korngröße für die eine der beiden Fraktionen ist dabei 0,5–1,5 mm und für die andere Fraktion 0,1–0,2 mm. Bei der letztgenannten Fraktion kann es sich alternativ um eine gradierte Fraktion mit einer Korngröße von maximal 0,2 mm handeln. Dadurch, daß man den Behälter und/oder die Brennelemente bei Füllen leichten Schlägen oder Vibrationen aussetzt, kann der Füllungsgrad des Kupferpulvers weiter verbessert werden. Außerdem kann zu demselben Zweck vorübergehend eine vibrierende Stampfvorrichtung auf oder in dem eingefüllten Kupferpulver angebracht werden.

Das isostatische Pressen zur Bildung der zusammenhängenden dichten Einheit aus Behälter, Deckel und Pulver geschieht vorzugsweise bei einem Druck von mindestens 10 MPa und bei einer Temperatur von 500–800°C.

Um schnell und sicher ein dichtes und beständiges Zusammenfügen von Deckel und Behälter bei dem isostatischen Pressen zu erreichen, ohne daß es erforderlich ist, hohe Temperaturen und lange Behandlungszeiten zu verwenden, ist es wichtig, daß die zu verbindenden sich berührenden Flächen vor dem Zusammenlegen durch eine geeignete Behandlung, wie z. B. Schruppen, Sandstrahlreinigung, Metallbürsten, Abwaschen oder Ätzen, von fremden Stoffen befreit werden. Besonders wichtig ist es, daß diese Flächen von Oxydbelägen befreit werden, was durch Abwaschen mit Säure oder durch Wasserstoffgasreduktion des Oxydbelags bei erhöhter Temperatur geschehen kann.

Dadurch, daß man den eben genannten Fugenflächen eine gewisse Textur, wie Rillen, Risse oder ein geprägtes Muster, gibt, werden beim Aufbringen des Druckes Teile der Kontaktflächen kräftig plastisch verformt und gleichzeitig werden reine und frische Metallflächen erzeugt. Hierdurch wird der Fugenbereich reaktionsfreudiger, was die Bildung einer dichten Naht zwischen Deckel und Behälter bei dem isostatischen Pressen erleichtert. Ferner kann man einerseits durch die genannte Texturierung der Fugenflächen und andererseits dadurch, daß man die aneinander anliegenden Flächen von Deckel und Behälter an mindestens einem dieser beiden Teile stufenförmig oder konisch ausbildet, oder dadurch, daß man den Deckel mit einem zentralen, in den Behälter mit Passung hineinragenden Zylinderteil verzieht, die tatsächliche Fugenlänge im Vergleich mit einem ebenen und glatten Deckel auf das Zwei- bis Dreifache verlängern. Hierdurch wird die Sicherheit weiter vergrößert, bei dem nach folgenden isostatischen Heißpressen eine zusammenhängende dichte Einheit aus Deckel und Behälter zu erreichen. Außerdem wird die Montage des Deckels auf der Kapsel durch die mechanische Führung erleichtert, die durch eine stufenförmige Ausführung der aneinander anliegenden Teile oder durch ein zentrales Zylinderteil erzielt wird. Zugleich wird hierdurch

verhindert, daß beim Aufbringen des Druckes und bei der Kompaktierung Lageverschiebungen eintreten.

Damit jeder Brennstab für sich allseitig in einer vorbestimmten Lage im Behälter eingebettet wird, können die Brennstäbe bei der Zufuhr des Kupferpulvers und dem Schließen des Behälters durch Distanzelemente auf Abstand voneinander gehalten werden. Gemäß einer vorteilhaften Ausführungsform handelt es sich bei den Distanzelementen um Abstandshalter, normalerweise aus rostfreiem Stahl, in welchen die Brennstäbe, zu Brennelementbündeln zusammengefaßt, während des Betriebs im Kernreaktor angeordnet sind. Die Brennelementbündel können dabei, nachdem die Brennstäbe im Reaktor verbraucht sind, ohne Montagearbeit im Kupferbehälter plaziert und gemäß der vorliegenden Erfindung zum Einschließen und zur Endlagerung behandelt werden. Gemäß einer anderen vorteilhaften Ausführungsform der Erfindung bestehen die Distanzelemente aus Kupfer. Diese Ausführungsform ist besonders dann geeignet, wenn die Brennstäbe demontiert, d. h. nicht in Form von Bündeln in Abstandshaltern angeordnet sind. Distanzelemente aus Kupfer mit dem sie umgebenden eingeschütteten Kupferpulver ergeben beim Pressen eine homogene Einheit ohne Übergangsstellen mit anderer Struktur.

Bevor das isostatische Pressen des Behälters mit Deckel und Inhalt zur Bildung einer zusammenhängenden dichten Einheit aus den Kupferbestandteilen durchgeführt wird, werden die Kupferbestandteile gemäß einer besonders vorteilhaften Ausführungsform der Erfindung durch isostatisches Pressen bei einer niedrigeren Temperatur als der, die beim endgültigen Pressen verwendet wird, einer Kriechdehnung unterworfen. Dabei sind die Kupferbestandteile entweder in der verschlossenen gasdichten Kapsel angeordnet, die beim endgültigen Pressen verwendet wird, oder sie sind — wenn ohne Kapsel gearbeitet wird — derart angeordnet, daß der Deckel gasdicht mit dem Behälter verbunden ist. Für die Kriechdehnung wird vorzugsweise mit einem Druck von mindestens 10 MPa und einer Temperatur von 300–500°C gearbeitet. Dadurch, daß man die Teile aus Kupfer auf diese Weise bei einer Temperatur isostatisch preßt, die niedriger ist als die bei dem endgültigen Zusammenfügen der Teile verwendete Temperatur, erzielt man einen effektiven Stützdruck auf die Brennstoffrohre der Brennstäbe während der weiteren Erwärmung. Hierdurch kann man die Gefahr beseitigen oder zumindest wesentlich verringern, daß in den Brennstoffrohren befindliches Gas bei der weiteren Erwärmung auf die Temperatur, die für die Bildung einer zusammenhängenden Einheit aus den Kupferbestandteilen Pulver, Behälter und Deckel erforderlich ist, einen solchen Druck bewirkt, daß in den Brennstoffrohren ein Dehnungsbruch auftritt. Die Brennstoffrohre enthalten nämlich Gase, unter anderem Helium und Spaltgase, die bereits bei Zimmertemperatur einen Druck von 50–80 Bar in den Brennstäben

verursachen können.

Anhand der Figuren soll das Verfahren nach der Erfindung näher erläutert werden. Es zeigt

Fig. 1 eine erste Ausführungsform eines Behälters mit Brennstäben, Pulver und Deckel vor Durchführung des isostatischen Pressens, wobei eine zusätzliche äußere Hülle verwendet wird,

Fig. 2 eine andere Ausführungsform eines Behälters mit Brennstäben, Pulver und Deckel vor dem isostatischen Pressen, jedoch ohne zusätzliche äußere Hülle,

Fig. 3 einen Teil der Anordnung nach Fig. 1 in vergrößertem Maßstab.

In einem Behälter 10 aus Kupfer wird gemäß Fig. 1 eine Vielzahl verbrauchter Brennstäbe 11 eines Kernreaktors angeordnet. Die Brennstäbe, die aus Zirkaloyrohren mit darin gestapelten Tabletten aus Uran-dioxyd bestehen, verbleiben in den Abstandshaltern 12, welche die Brennstäbe jedes Brennelementbündels im Kernreaktor zusammenhalten. In den Fig. 1 und 2 sieht man vier Brennelementbündel 13, 14, 15 und 16.

Die Brennelementbündel können eventuell auf nicht dargestellten Stützen am Boden des Behälters oder auf einem Bett aus Kupferpulver platziert werden. Der Behälter wird danach im Ganzen unter Vibration mit einer Pulvermischung 17 aus 70 Gewichtsteilen eines Pulvers mit sphärischen Partikeln mit einem Durchmesser von 0,5–1,5 mm und 30 Gewichtsteilen eines Pulvers mit sphärischen Partikeln mit einem Durchmesser von 0,1–0,2 mm gefüllt. Danach wird auf dem Behälter ein Deckel 18 aus Kupfer platziert. Behälter, Deckel und Pulver bestehen aus der anfangs genannten Kupferqualität, die 99,95% Cu (einschließlich kleiner Mengen Ag) enthält. Der Teil 19 des Deckels, der an dem Behälter anliegt, ist stufenförmig ausgebildet. Der Deckel hat ein zentrales, unteres Teil 20, das in den Behälter hineinragt. Die aneinander anliegenden Flächen 10a und 18a von Behälter 10 und Deckel 18 sind, wie aus Fig. 3 hervorgeht, texturiert. Die Flächen werden vor dem Aufsetzen des Deckels auf den Behälter gut gereinigt und mit Säure von Oxyd befreit. Der Behälter mit Deckel und Inhalt wird in einer Kapsel 21 aus Kupferblech oder Stahlblech gesetzt, deren aus Kupferblech bzw. aus Stahlblech bestehender Deckel 22 unter Bildung einer gasdichten Naht 23 festgeschweißt wird. Der Deckel ist mit einem Rohrstutzen 24 aus Kupfer bzw. Stahl versehen, der zwecks Evakuierung der Kapsel mit Inhalt an eine Vakuumpumpe angeschlossen werden kann. Nach der Evakuierung wird die Kapsel verschlossen, indem der Rohrstutzen oberhalb der oberen Fläche des Deckels zugeschweißt wird.

Die Kapsel mit Inhalt wird in zwei Schritten isostatisch heißgepreßt mit einem Gas, z. B. Argon, als Druckmittel in einem Ofen zum isostatischen Pressen der Art, wie er in der DE-A-2 747 951 beschrieben wird. Beim ersten Schritt wird die Kapsel 2–10 Stunden lang einem Druck von 80 MPa und einer Temperatur von 450–500°C ausgesetzt. Dabei erfahren das Kupfer des Behälters, des Deckels und das Pulver eine

Kriechdehnung, die zur Folge hat, daß die Füllung aus dem Kupferpulver den Brennstäben einen wirkungsvollen Stützdruck gibt, der einen Dehnungsbruch in den Zirkaloyrohren verhindert, der dadurch auftreten könnte, daß der Druck des in diesen Rohren befindlichen Gases bei weiterer Erwärmung zunimmt. Diese Behandlung hat jedoch nicht zur Folge, daß die Pulverkörner, der Behälter und der Deckel eine Einheit mit voll ausgebildeter Bindung bilden. Dies erreicht man dadurch, daß die Temperatur im Ofen auf ca. 700°C erhöht wird, wobei der Druck ohne weitere Gaszufuhr gleichzeitig auf ca. 100 MPa steigt, und dadurch, daß diese Bedingungen 1 bis 4 Stunden beibehalten werden. Nachdem die Kapsel mit Inhalt während eines zweiten Schrittes also einem isostatischen Pressen unterzogen wurde, läßt man sie mit dem eingeschlossenen Material abkühlen, wonach der Druck auf Atmosphärendruck gesenkt und die Kapsel aus dem Ofen herausgenommen wird. Normalerweise kann die Kapsel auf dem zusammengepreßten Produkt sitzen bleiben, wenn dieses zwecks Endlagerung deponiert wird.

Bei einer alternativen Ausführung wird eine Mischung 17 benutzt, die aus 55 Gewichtsteilen eines Pulvers mit sphärischen Partikeln mit einem Durchmesser von 0,8–1,0 mm und aus 45 Gewichtsteilen eines Pulvers mit sphärischen Partikeln mit einem Durchmesser von 0,2 mm und darunter besteht. Dabei erhält man eine Füll-dichte von 81% der theoretischen Dichte. Nach der Evakuierung der Kapsel 21 mit Inhalt wird die Kapsel auf 350°C erhitzt, worauf sie mit Wasserstoffgas mit einem Druck von 0,1 MPa gefüllt wird. Nachdem diese Temperatur eine halbe Stunde lang aufrechterhalten wurden, wird die Kapsel evakuiert und wieder mit Wasserstoffgas gefüllt. Diese Behandlung mit Wasserstoffgas bei 350°C wird mehrmals, beispielsweise siebenmal, zweckmäßigerweise mit einer sukzessiv verlängerten Behandlungszeit, wie z.B. bis zu 10 Stunden, wiederholt. Die Wasserstoffgasbehandlung bewirkt eine Reduzierung eventuell vorhandener Kupferoxyde. Nach beendeter Wasserstoffgasbehandlung wird die Kapsel evakuiert und, wie im oben beschriebenen Fall, verschlossen. Das isostatische Pressen erfolgt während des ersten Schrittes bei 400–450°C und während des zweiten Schrittes bei 250°C. Diese alternative Ausführung erfolgt im übrigen unter denselben Bedingungen wie im vorher beschriebenen Fall.

Bei dem in Fig. 2 gezeigten Ausführungsbeispiel wird keine besondere Kapsel verwendet, um das Material gasdicht im Behälter einzuschließen. Statt dessen ist der Behälter 10 und der Deckel 18 mit je einem Flansch 25 bzw. 26 versehen. Nach der Platzierung der Brennstäbe im Behälter und Füllung desselben mit dem Kupferpulver werden die Flansche 25 und 26 durch Schweißen oder Kaltpressen zu einer gasdichten Naht 27 zusammengefügt. Der Deckel ist mit einem Rohrstutzen 28 aus Kupfer versehen, der nach der Evakuierung des Behälters mit gasdicht

angebrachtem Deckel verschlossen wird. Nach dem Verschließen wird der geschlossene Behälter in zwei Schritten derart isostatisch gepreßt, wie es für die verschlossene Kapsel gemäß Fig. 1 beschrieben wurde.

Patentansprüche

1. Verfahren zum Einschließen verbrauchter Brennstäbe (11) eines Kernreaktors in einen Behälter (10) aus Kupfer, wobei die Brennstäbe in ein korrosionsbeständiges Material im Behälter eingebettet werden, dadurch gekennzeichnet, daß die Brennstäbe im Behälter in Kupferpulver (17) eingebettet werden und der Behälter mit einem Deckel (18) aus Kupfer abgedeckt wird, daß der Behälter mit Inhalt und Deckel entweder in einer Kapsel (21, 22) gasdicht eingeschlossen wird oder der Deckel gasdicht mit dem Behälter zusammengefügt wird, und daß der so gewonnene Körper isostatisch gepreßt wird bei einem Druck und einer Temperatur, die ausreichen, um den Behälter, das Pulver und den Deckel in eine zusammenhängende dichte Einheit zu überführen.

2. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß die Kapsel aus Kupfer besteht.

3. Verfahren nach Anspruch 1 oder 2, dadurch gekennzeichnet, daß das isostatische Pressen zur Bildung der zusammenhängenden dichten Einheit bei einem Druck von mindestens 10 MPa und einer Temperatur von 500—800°C durchgeführt wird.

4. Verfahren nach einem der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, daß die Brennstäbe (11) durch Distanzelemente (12) im Behälter (10) auf Abstand voneinander gehalten werden.

5. Verfahren nach Anspruch 4, dadurch gekennzeichnet, daß es sich bei den Distanzelementen (12) um im Kernreaktor verwendete Abstandshalter für Brennelementbündel handelt.

6. Verfahren nach Anspruch 4, dadurch gekennzeichnet, daß die Distanzelemente (12) aus Kupfer bestehen.

7. Verfahren nach einem der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, daß aneinander anliegende Teile (19) zwischen Deckel (18) und Behälter (10) am Deckel und/oder am Behälter stufenförmig ausgebildet sind.

8. Verfahren nach einem der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, daß der Deckel (18) mit einem Teil (20) versehen ist, das mit Passung in den Behälter hineinragt.

9. Verfahren nach einem der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, daß aneinander anliegende Flächen (18a, 10a) von Deckel (18) und Behälter (10) mit Rillen, Rissen oder einem anderen Oberflächenmuster versehen sind.

10. Verfahren nach einem der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, daß vor dem isostatischen Pressen des Behälters (10), des Pulvers (17) und des Deckels (18) bei einem

Druck und einer Temperatur, die ausreichen zur Bildung der genannten zusammenhängenden dichten Einheit, der Behälter mit Inhalt und Deckel entweder gasdicht eingeschlossen in der gasdichten Kapsel (21, 22) oder mit gasdichter Zusammenfügung zwischen Deckel und Behälter derart bei einer niedrigeren Temperatur isostatisch gepreßt wird, daß eine Kriechdehnung des Behälters, des Pulvers und des Deckels eintritt.

11. Verfahren nach Anspruch 10, dadurch gekennzeichnet, daß das isostatische Pressen zur Erzielung der Kriechdehnung bei einem Druck von mindestens 10 MPa und bei einer Temperatur von 300—500°C erfolgt.

Claims

1. Method of enclosing spent fuel rods (11) of a nuclear reactor in a copper container (10) the fuel rods being embedded in a corrosion-resistant material within the container, characterized in that the fuel rods are embedded in copper powder (17) within the container and that the container is covered with a copper lid (18), that either the container with its contents and said lid is gas-tightly enclosed in a capsule (21, 22) or that the lid is gas-tightly connected to the container, and that the body thus obtained is subjected to isostatic pressing at a pressure and a temperature sufficient to transfer said container, said powder and said lid into a coherent dense unit.

2. Method according to claim 1, characterized in that said capsule is of copper.

3. Method according to claim 1 or 2, characterized in that the isostatic pressing for obtaining said coherent dense unit takes place at a pressure of at least 10 MPa and at a temperature of 500 to 800°C.

4. Method according to any of the preceding claims, characterized in that the fuel rods (11) are spaced from each other in the container (10) by means of spacing elements (12).

5. Method according to claim 4, characterized in that said spacing elements (12) are of a type used in the nuclear reactor as spacers for fuel rod assemblies.

6. Method according to claim 4, characterized in that the spacing elements (12) are of copper.

7. Method according to any of the preceding claims, characterized in that each other contacting portions (19) of the lid (18) and the container (10) are provided with steps either on the lid and/or the container.

8. Method according to any of the preceding claims, characterized in that said lid (18) is provided with a portion (20) projecting into the container and fitting closely therein.

9. Method according to any of the preceding claims, characterized in that each other contacting surfaces (18a, 10a) of the lid (18) and the container (10) are provided with grooves, scratches or any other surface pattern.

10. Method according to any of the preceding claims, characterized in that prior to the isostatic

pressing of the container (10), the powder (17) and the lid (18) at a pressure and a temperature sufficient for obtaining said coherent dense unit, the container with its contents and said lid, while either being gas-tightly enclosed in said gas-tight capsule (21, 22) or while the lid and the container are gas-tightly joined, are subjected to an isostatic pressing at a lower temperature such that a creep deformation of the container, the powder and the lid takes place.

11. Method according to claim 10, characterized in that said isostatic pressing for achieving said creep deformation is performed at a pressure of at least 10 MPa and at a temperature of 300 to 500° C.

Revendications

1. Procédé pour enfermer des barreaux combustibles (11) usés d'un réacteur nucléaire dans un récipient (10) en cuivre, les barreaux combustibles étant noyés dans le récipient dans un matériau résistant à la corrosion, caractérisé en ce qu'il consiste à noyer les barreaux combustibles dans le récipient dans de la poudre de cuivre (17), et à recouvrir le récipient d'un couvercle (18) en cuivre, à enfermer d'une manière étanche au gaz le récipient avec ce qu'il contient et le couvercle dans une capsule (21, 22), ou à assembler le couvercle d'une manière étanche au gaz au récipient et à comprimer, par voie isostatique, le corps ainsi obtenu sous une pression et à une température qui suffisent pour transformer le récipient, la poudre et le couvercle en une unité étanche d'un seul tenant.

2. Procédé suivant la revendication 1, caractérisé en ce que la capsule est en cuivre.

3. Procédé suivant la revendication 1 ou 2, caractérisé en ce qu'il consiste à effectuer la compression par voie isostatique pour former l'unité étanche d'un seul tenant, sous une pression d'au moins 10 MPa et à une température de 500 à 800° C.

4. Procédé suivant l'une des revendications précédentes, caractérisé en ce qu'il consiste à maintenir les barreaux combustibles (11) à distance les uns des autres dans le récipient (10) par des éléments d'entretoisement (12).

5. Procédé suivant la revendication 4, caractérisé en ce qu'il s'agit, pour les éléments d'entretoisement (12), d'entretoises utilisées dans le réacteur nucléaire et destinées aux faisceaux d'éléments combustibles.

6. Procédé suivant la revendication 4, caractérisé en ce que les éléments d'entretoisement (12) sont en cuivre.

7. Procédé suivant l'une des revendications précédentes, caractérisé en ce que des parties (19) adjacentes l'une à l'autre entre le couvercle (18) et le récipient (10) sont constituées en gradins sur le couvercle et/ou sur le récipient.

8. Procédé suivant l'une des revendications précédentes, caractérisé en ce que le couvercle (18) est muni d'une partie (20) qui pénètre avec

jeu dans le récipient.

9. Procédé suivant l'une des revendications précédentes, caractérisé en ce que des surfaces (18a, 18b) adjacentes l'une à l'autre du couvercle (18) et du récipient (10) sont munies de gorges, de fentes ou d'une autre configuration superficielle.

10. Procédé suivant l'une des revendications précédentes, caractérisé en ce qu'il consiste, avant la compression du récipient (10), de la poudre (17) et du couvercle (18) par voie isostatique, sous une pression et à une température qui suffisent à former l'unité étanche d'un seul tenant mentionnée, à enfermer d'une manière étanche au gaz le récipient avec ce qu'il contient et le couvercle, dans la capsule (21, 22) étanche au gaz, ou à comprimer par voie isostatique à une température assez basse, en ayant un assemblage étanche au gaz entre le couvercle et le récipient, de manière à produire un allongement par fluage du récipient, de la poudre et du couvercle.

11. Procédé suivant la revendication 10, caractérisé en ce qu'il consiste à effectuer la compression par voie isostatique en vue d'obtenir l'allongement par fluage sous une pression d'au moins 10 MPa et à une température de 300 à 500° C.

