

## Umwelt und Sicherheit 2007

### Zielstellung

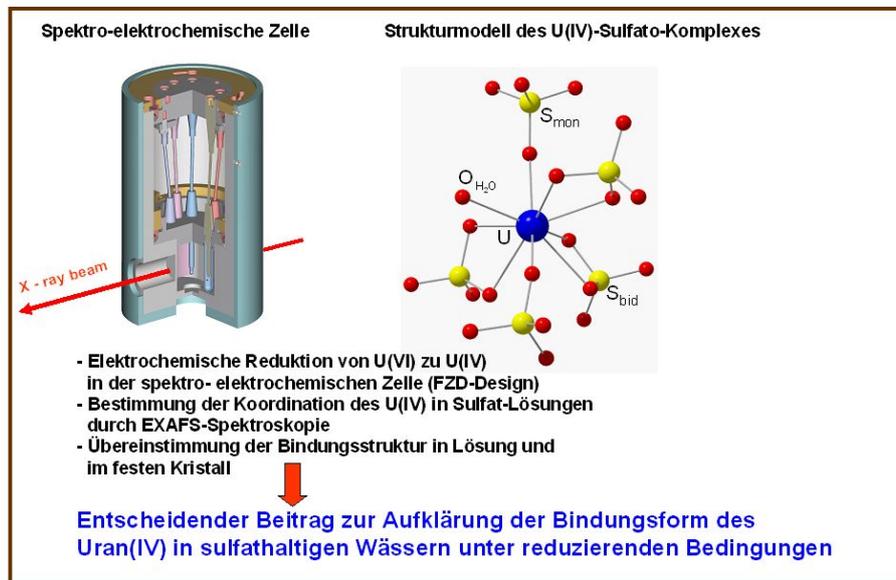
Das Programm mit den Bereichen „Radioökologie“, „Anlagen- und Reaktorsicherheit“ sowie „Thermofluidynamik“ wird von den Instituten für Radiochemie und für Sicherheitsforschung getragen und steht in enger Verbindung mit den anderen Forschungsprogrammen des FZD. Die FE-Vorhaben sind einerseits auf die Bewertung und Minderung der Risiken aus dem Brennstoffkreislauf der Kerntechnik konzentriert. Hier liegt der Fokus auf den Altlasten des Uranerzbergbaus, den Risiken der Energieerzeugung im Kernreaktor und der Entsorgung nuklearer Abfälle. Andererseits sind die Vorhaben auf die Erhöhung der Sicherheit, Effizienz und Umweltverträglichkeit nichtnuklearer technischer Prozesse gerichtet. Die Entwicklung und Validierung von Simulationswerkzeugen für die Prozess-, Störfall- und Langzeitsicherheitsanalyse mit dem Schwerpunkt auf fortgeschrittenen thermo- und fluid-dynamischen Berechnungsverfahren bildet eine wichtige Klammer zwischen den Programmbereichen.

### Wichtigste Ergebnisse

#### Radioökologie

Ziel der Forschung ist es, zum besseren Verständnis des Verhaltens von Actiniden in der Umwelt beizutragen. Dabei ist besonders zu berücksichtigen, dass Actiniden unter umweltrelevanten Bedingungen, in Endlager- und Biosystemen, in unterschiedlichen Oxidationsstufen auftreten, die das Transportverhalten der Actiniden wesentlich bestimmen. Neben den Actiniden müssen vor dem Hintergrund der Endlagerung radioaktiver Abfälle weitere langlebige Radionuklide in die Langzeitsicherheitsanalyse einbezogen werden.

Große Wissensdefizite bestehen zum Verhalten der Actinidenelemente in den niedrigen Oxidationsstufen. Nach Aufklärung des Verhaltens von Uran(VI) im Sulfatsystem wurde die Koordination des Uran(IV) erstmals umfassend beschrieben. Entscheidend für diese Ergebnisse war die Nutzung der im Institut für Radiochemie entwickelten spektro-elektrochemischen Zelle, die an der Beamline ROBL installiert wurde. Die Untersuchungen werden nun auf andere Transuranelemente ausgeweitet [1, 2].



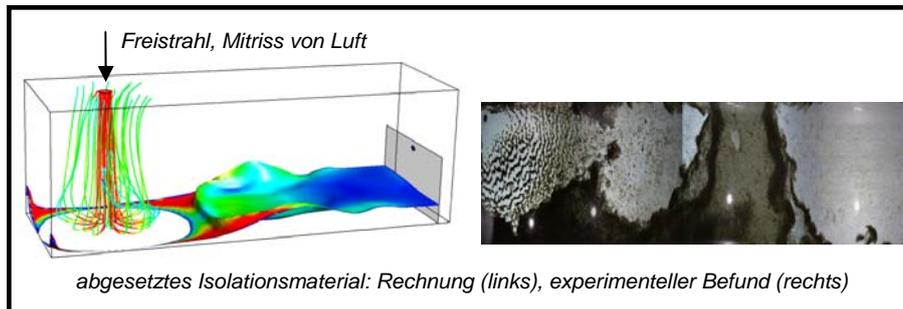
*Bindungsform von Uran(IV) in Sulfat-Lösungen*

Ein Beispiel für die langlebigen Radionuklide ist das Selenisotop  $^{79}\text{Se}$  mit einer Halbwertszeit von  $1,13 \times 10^6$  Jahren. Es wurde gezeigt, dass Eisen-II, das an Tongestein sorbiert ist, die Reduktion des Selenits  $\text{Se(IV)}$  zu unlöslichem Selen  $\text{Se(0)}$  bei gleichzeitiger Oxidation des Eisen(II) zu Eisen(III) an den Kantenflächen des Tons bewirkt. Durch Kombination von Mössbauer- und XANES-Spektroskopie wurde der Prozess, der zu einer Immobilisierung des Selen führt, aufgeklärt [3].

Nanopartikel stehen im Fokus internationaler Forschungen. Neben dem Erschließen umfänglicher neuer technischer Anwendungen, ist das Umweltverhalten dieser Partikel zu untersuchen. Bei der Herstellung, Charakterisierung und technischen Nutzung von Nanopartikeln auf der Basis von S-Layern wurden erhebliche Fortschritte erzielt [4]. Erstmals wurde die Anbindung von Uran an technische Nanopartikel untersucht. Die Oberflächenchemie beeinflusst die Stabilität und die Sorptionseigenschaften maßgeblich, wobei die Anzahl der verfügbaren Carboxyl-Gruppen die Sorption von Schwermetallen (Uran) an diesen Kohlenstoffnanotubes bestimmt. Nanopartikel sind potenzielle Trägerkolloide für Schwermetalle in der Umwelt, können andererseits aber auch zu Abtrennverfahren genutzt werden.

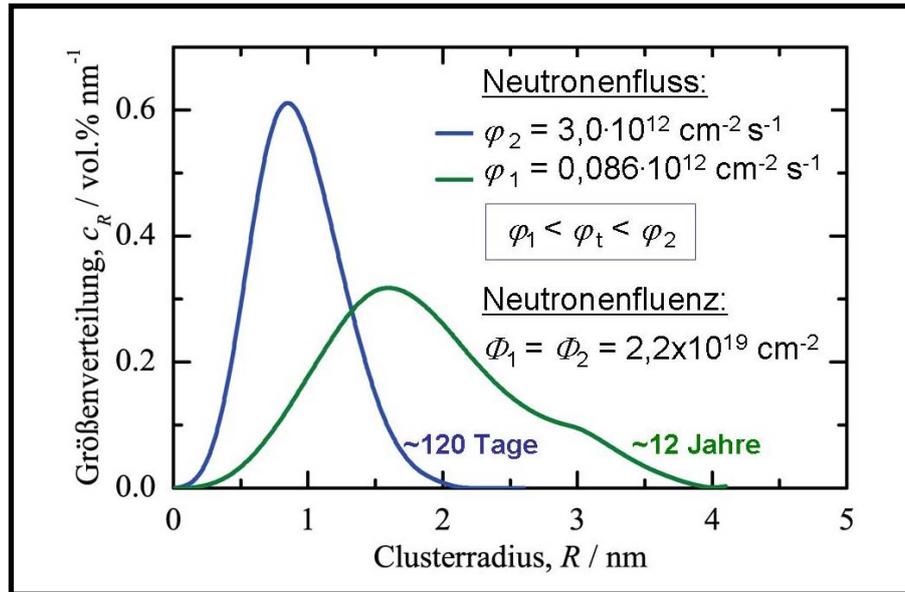
### Anlagen- und Reaktorsicherheit

Bei einem Leckstörfall in einem Kernreaktor wird Isoliermaterial in den Reaktorsumpf eingetragen, aus dem der Langzeit-Notkühlbetrieb erfolgt. Kommt es zu einer Verstopfung der Sumpfansaugsiebe, kann die Notkühlung des Reaktorkerns gefährdet werden. Im FZD werden CFD-Modelle für Mehrkomponentenströmungen (Wasser/Mineralwolle/Luft) entwickelt und an Experimenten an der Hochschule Zittau validiert. Die Modelle erfassen den Transport der Mineralwolle im Sumpfwasser, deren Sedimentation und die Resuspension, den Einfluss von Wasserjets auf die Mineralwollverteilung und den Differenzdruckaufbau über den Rückhaltesieben bei Ablagerung der Mineralwollpartikel. Das Bild zeigt das Ablagerungsmuster des Isoliermaterials, wie es sich in der 3-Phasen/Mehrkomponentenrechnung ergibt, im Vergleich zu typischen experimentellen Befunden an einer Wannengeometrie. Typisch sind die Bodenbereiche, in denen auf Grund des tief eintauchenden Wasserstrahls und des Luftmitrisses in die Wanne keine Mineralwolle abgelagert wird. Großräumige Wirbel der Kühlmittelströmung verhindern die Ablagerung und transportieren die Mineralwolle auf die Sumpfansaugsiebe [5, 6]. In der Tiefe der experimentellen und theoretischen Durchdringung sind die Arbeiten des FZD und der Hochschule Zittau weltweit führend.



*Sedimentation von Isolationsmaterial in einer Wannengeometrie*

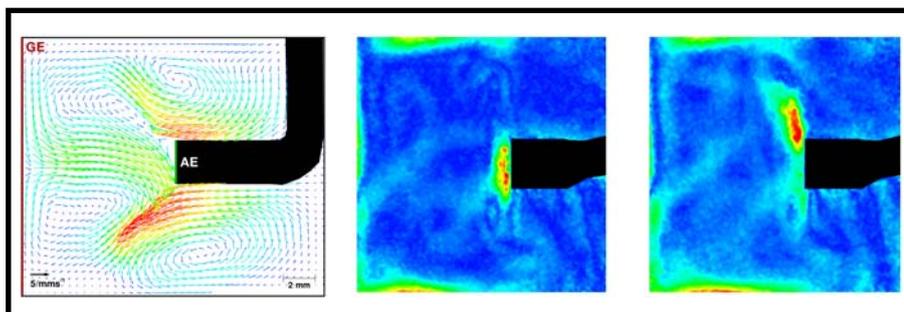
Die Bewertung der Sprödbruchsicherheit des Reaktordruckbehälters (RDB) erfolgt an Hand von Proben, die bei erhöhtem Neutronenfluss bestrahlt werden. Der Einfluss des Flusseffektes auf die Materialschädigung bei gleicher Fluenz ist bislang unzureichend aufgeklärt. Deshalb ist die Übertragung der mechanischen Prüfergebnisse der Proben auf den RDB nicht vollständig abgesichert. Ein typisches RDB-Schweißnahtmaterial wurde bei Neutronenflüssen, die sich um den Faktor 34 unterscheiden, auf gleiche Fluenz bestrahlt. Analysen mit Neutronenkleinwinkelstreuung zeigen, dass sich die Größen der bestrahlungsinduzierten Cu-reichen Defekt-Fremdaton-Cluster im Mittel um den Faktor 2 unterscheiden, während die Volumenanteile der Cluster näherungsweise übereinstimmen (siehe Abbildung). Durch Anwendung eines ratentheoretischen Modells der Clusterbildungskinetik auf die vorliegende Situation wurde nachgewiesen, dass die Wachstumsgeschwindigkeit der Cluster bei niedrigen Neutronenflüssen  $\phi$  flussunabhängig ist, während sie bei höheren Flüssen wie  $1/\sqrt{\phi}$  abfällt. Die ratentheoretische Berechnung der Übergangflussdichte  $\phi_t$  ergab, dass der höhere der beiden Neutronenflüsse in diesen Hochflussbereich fällt, was die beobachtete geringere Clustergröße erklärt [7]. Die unterschiedlichen Clustergrößen wirken sich im vorliegenden Fall nicht auf die mechanischen Eigenschaften des Schweißnahtmaterials aus. Dies stützt die These, dass die bestrahlungsinduzierten Änderungen der mechanischen Eigenschaften durch den Volumenanteil der Cluster bestimmt wird, während die mittlere Clustergröße von untergeordneter Bedeutung ist.



Größenverteilung der bestrahlungsinduzierten Cluster für ein RDB-Schweißnahtmaterial bei unterschiedlichen Neutronenflüssen und gleicher Fluenz

### Thermofluiddynamik

Bei Magnetfeldanwendungen in der Elektrochemie wurde die Verarmung des Elektrolyten vor der Arbeitselektrode, z. B. von Kupfer (mittleres Bild) im Fall stromdichte-parallelen Magnetfeldes bisher der sog. Konzentrationsgradientenkraft zugeschrieben. Detaillierte Analysen der Strömung in der Elektrolysezelle [8] zeigen, dass die Konzentrationsverteilung vielmehr ein Resultat der Lorentzkräfte ist, die sich auf Grund der nicht-idealen Parallelität von Stromdichte und Magnetfeld ergeben. Es entsteht eine Staupunktströmung (linkes Bild), welche die leichtere Lösung vor der Arbeitselektrode festhält. Da die Lorentzkraft vom Elektrolysestrom abhängt, ergibt sich die Auflösung der Konzentrationsverarmung im stromlosen Zustand (rechtes Bild) zwanglos: die Lorentzkraft entfällt und die durch sie getriebene Strömung klingt ab. Die in der Literatur postulierte Konzentrationsgradientenkraft ( $F \sim B^2 \cdot \text{grad } c$ ) kann dieses Verhalten nicht beschreiben. Die korrekte Betrachtung der elektromagnetisch bedingten Strömung liefert die einzig schlüssige Erklärung. Die neuen Erkenntnisse kommen einem Paradigmenwechsel in der Elektrochemie gleich.

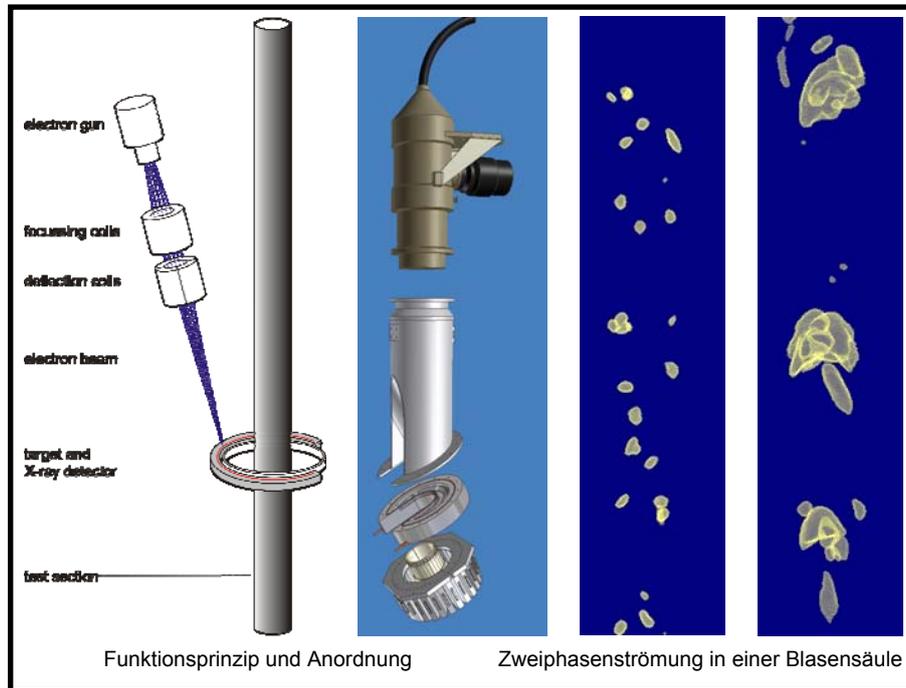


Staupunktströmung an der Arbeitselektrode

Hintergrundschlierenmessung: Cu-arme Lösung vor der Arbeitselektrode (links) steigt im stromlosen Zustand auf (rechts)

Das Arbeitspferd der schnellen Tomographie von Zweiphasenströmungen bei hohen Gas/Dampfgehalten war bisher die Gittersensortechnik, die allerdings invasiv ist. Dieser Nachteil kann mit der ultraschnellen Elektronenstrahl-Röntgen-Computertomographie überwunden werden. Dabei rastert der Elektronenstrahl ein kreisförmiges Wolframtarget auf einem gekühlten Kohlenstoffkörper ab, der die Rohrströmung umschließt (siehe Abbildung). Der wandernde Röntgenfleck durchstrahlt das Objekt derart aus einem Winkelbereich von fast 360°. Die Röntgendetektoren sind ebenfalls

kreisförmig um das Objekt mit geringem Höhenversatz zum Wolframtarget angeordnet. Die neue Technologie [9, 10] erlaubt Bildraten bis 7 kHz und liefert weltweit einzigartige Bilder von Zweiphasenströmungen mit einer Auflösung im Millimeterbereich. Damit wird der Weltrekord in der schnellen Röntgenomographie markiert.



*Ultraschnelle Elektronenstrahl- Röntgen-Computertomographie*

- [1] C. Hennig et al., Inorganic Chemistry 46 (2007) 5882
- [2] C. Hennig et al., Inorganic Chemistry in press, DOI: 10.1021/inc701880h
- [3] A. Scheinost et al., Geochimica et Cosmochimica Acta 71 (2007) 5731
- [4] K. Pollmann, J. Raff und K. Fahmy, Patent „Hochgeordnete Nanostruktur und Sensor und deren Verwendung“ Anmeldung März 2008
- [5] G. Cartland-Glover et al., 6<sup>th</sup> International Conference on Multiphase Flow - ICMF 2007, 09.-13.07.2007, Leipzig
- [6] E. Krepper et al., Annals of Nuclear Energy, DOI: 10.1016/j.anucene.2008.01.001
- [7] F. Bergner et al., Journal of Physics: Condensed Matter 20 (2008) 104262
- [8] T. Weier et al., Electrochemistry Communications 9 (2007) 2479
- [9] M. Bieberle et al., Applied Physics Letters 91 (2007) 123516
- [10] U. Hampel et al., Patent: Anordnung zur Röntgen-Computertomographie mit elektronisch abgelenktem Elektronenstrahl, DE 102007040778.7-54

**Redaktion: Gudrun Zwicker (Vorstandsreferentin)**  
**g.zwicker@fzd.de**