

Inhaltverzeichnis

A	Einleitung und Ziel der Arbeit.....	7
B	Rückblick und Kurzbeschreibung des Vorhabens.....	9
B.1	Aufbau des Kugelhaufen-Hochtemperaturreaktors (AVR).....	9
B.2	Forschungsreaktor Merlin.....	12
C	Stand der Wissenschaft und Technik.....	13
C.1	Graphit, Material für Kernreaktoren.....	13
C.1.1	Struktur des Graphits.....	15
C.1.1.1	Polykristalliner Graphit.....	15
C.1.2	Chemische Reaktionen des Graphits.....	16
C.2	Entstehungswege des ^{14}C und ^3H	21
C.2.1	Kohlenstoffs-14-Bildung.....	21
C.2.2	Entstehungsmechanismus des Tritiums (^3H).....	23
C.3	Transportvorgänge im Graphitkörper.....	23
C.3.1	Diffusion.....	23
C.3.2	Sorption.....	25
C.4	Radionuklidinventar der Abfälle aus dem AVR-Reaktor.....	26
C.4.1	Wiederaufbereitung der graphitischen Abfälle.....	27
D	Experimenteller Teil.....	29
D.1	Geräte und Reagenzien.....	29
D.2	Proben.....	31
D.2.1	Unbestrahlter Graphit.....	31
D.2.2	Graphit aus dem AVR-Reaktor.....	31
D.2.3	Graphit aus der thermischen Säule des Merlinreaktors.....	33
D.3	Charakterisierungsverfahren des Graphitmaterialien.....	35
D.3.1	Spezifische Oberfläche.....	35
D.3.2	Röntgenbeugungsanalyse, XRD.....	36
D.3.3	Differenzthermoanalyse (DTA/TG)	36
D.3.4	Autoradiographie.....	37
D.4	Messverfahren zur Bestimmung der Aktivität.....	37

D.4.1	Alpha-Spektrometrie.....	37
D.4.2	Liquid Scintillation Counting (LSC).....	38
D.4.3	Gamma-Spektrometrie.....	39
D.5	Verfahren.....	39
D.5.1	Verbrennung in reinem Sauerstoff.....	39
D.5.1.1	Überprüfung der Verbrennungsanlage.....	41
D.5.2	Thermische Behandlung in inerter Atmosphäre.....	42
D.5.2.1	Kalibrierung des Gasanalysators.....	48
D.5.2.2	Kalibrierung des Gaszuleitungssystems.....	49
D.6	Probenvorbereitung zur Aktivitätsmessung.....	52
D.6.1	Alpha-Spektrometrie.....	54
D.6.2	Liquid Scintillation Counting (LSC).....	54
D.6.3	Gamma-Spektrometrie.....	56
E	Ergebnisse und Diskussion.....	59
E.1	Charakterisierung der Graphitproben.....	59
E.1.1	Bestimmung der spezifischen Oberfläche.....	59
E.1.2	Untersuchung der Kristallinität mittels Röntgenbeugung.....	60
E.1.3	Bestimmung der Oxidationskinetik mittels Differenzthermoanalyse.....	63
E.2	Bestimmung des Radionuklidinventars der Graphitproben.....	65
E.2.1	Gammaspektrometrie der AVR-Graphitproben.....	65
E.2.2	Autoradiographie des Merlin-Graphitblocks.....	67
E.2.2.1	Gammaspektrometrie der Merlinproben für die Verbrennung.....	69
E.2.2.2	Gammaspektrometrie der Merlinproben vor der thermischen Behandlung.....	71
E.3	Ergebnisse aus der Verbrennung.....	72
E.3.1	AVR-Proben.....	72
E.3.2	Merlin, thermische Säule-Proben.....	74
E.4	Ergebnisse aus der thermischen Behandlung.....	78
E.4.1	Behandlung unter Inertgasatmosphäre, N ₂ : Pyrolyse.....	78
E.4.1.1	³ H Freisetzung.....	78
E.4.1.2	¹⁴ C Freisetzung.....	80
E.4.1.2.1	Bestimmung der Korrosion.....	83
E.4.2	Oxidation in Wasserdampf/Stickstoffatmosphäre.....	86
E.4.2.1	³ H Freisetzung.....	86

E.4.2.2	^{14}C Freisetzung.....	87
E.4.2.2.1	Bestimmung der Korrosion.....	89
E.4.3	Oxidation in mit Sauerstoff dotierter Inertgasatmosphäre.....	92
E.4.3.1	^3H Freisetzung.....	92
E.4.3.2	^{14}C Freisetzung.....	94
E.4.3.2.1	Korrosion durch Oxidation.....	95
E.4.4	Luftwirkung auf die in N_2 -Atmosphäre behandelten AVR-Abplatzungen.....	98
F	Resümee und Ausblick.....	103
G	Literaturverzeichnis.....	107
H	Anhang.....	113
H.1	Verzeichnis der Abbildungen.....	113
H.2	Verzeichnis der Tabellen.....	114
	Zusammenfassung/ Abstract.....	122