



Herstellung uranbasierter Keramiken mittels interner Gelierung zur Konversion trivalenter Actinoiden

Henrik Daniels

Forschungszentrum Jülich GmbH
Institut für Energie- und Klimaforschung (IEK)
Nukleare Entsorgung und Reaktorsicherheit (IEK-6)

Herstellung uranbasierter Keramiken mittels interner Gelierung zur Konversion trivalenter Actinoiden

Henrik Daniels

Schriften des Forschungszentrums Jülich
Reihe Energie & Umwelt / Energy & Environment

Band / Volume 142

ISSN 1866-1793

ISBN 978-3-89336-794-8

Inhaltsverzeichnis

1	Einführung	13
2	Grundlagen	15
2.1	Friedliche Nutzung von Kernenergie	15
2.1.1	Kernkraftwerke zur Energieerzeugung	15
2.1.2	Brennstoffkreislauf	17
2.1.3	Radioaktiver Abfall und Kernbrennstoffwiederaufarbeitung	18
2.1.3.1	Radiotoxizität und Dosisbegriffe	18
2.1.3.2	Radiotoxizität von bestrahlten Kernbrennstoffen	20
2.1.3.3	Rückgewinnung von Uran und Plutonium bei der Wiederaufarbeitung	22
2.1.3.4	Abtrennung der Spaltprodukte und minoren Actinoiden bei der Wiederaufarbeitung	23
2.1.3.5	Abfallklassifizierung	23
2.1.3.6	Verglasung von radioaktiven Abfällen	26
2.1.3.7	Keramische Matrices für die Endlagerung	28
2.1.4	Induzierte Kernreaktionen	29
2.1.4.1	Transmutation	29
2.2	Chemische Grundlagen	31
2.2.1	Chemie ausgewählter f-Elemente	31
2.2.2	Hydrolysechemie der Actinoiden	36
2.2.3	Speziation in Uran, Neodym, Plutonium und Americium Lösungen	37
2.2.4	Berechnung von Gleichgewichtszusammensetzungen in wässrigen Lösungen	38
2.3	Herstellungsverfahren von Kernbrennstoffen	40
2.4	Sol-Gel Prozesse im nuklearen Kontext	42
2.4.1	Externe Gelierung	42

2.4.2	Interne Gelierung	45
2.4.3	Chemie der internen Urangelierung	47
2.4.4	Acid-Deficient Uranyl-Nitrate	49
2.4.5	Parameter der Solformulierung	50
2.5	Thermische Behandlung von uranbasierten Gelen	51
2.5.1	Thermisches Verhalten von Uranoxiden und Mischkristallbildung	52
3	Materialien und Methoden	54
3.1	Materialien	54
3.2	Charakterisierungsmethoden	54
3.2.1	Charakterisierung von Lösungen	54
3.2.2	Charakterisierung von Feststoffen	56
3.3	Bestimmung des Gelierungspunktes	57
3.4	Herstellung von Acid-Deficient Uranyl-Nitrate	57
3.5	Bestrahlung von Harnstoff- und HMTA-Lösungen	58
3.6	Herstellung von Gel-Kernen	59
3.6.1	Arbeiten im IEK-6, Forschungszentrum Jülich	59
3.6.2	Arbeiten bei der CEA, Marcoule, Frankreich	61
3.7	Thermische Behandlung von Gel-Kernen	64
4	Ergebnisse und Diskussion	65
4.1	Gelierungsverhalten von Präkursorlösungen	65
4.1.1	Computergestützte Berechnungen der Speziation in Gelierungs- lösungen	65
4.1.2	Charakterisierung von Gelierungslösungen	71
4.1.2.1	UV-Vis Messungen	71
4.1.2.2	Titrationen	74
4.1.2.3	pH-Isothermen des Harnstoff-HMTA Systems	75
4.1.3	Bestimmung von Gelierungstemperaturen	76
4.2	Acid-Deficient Uranyl-Nitrate	83
4.2.1	Möglichkeiten zur chemischen Denitrierung von Uranylnitratlö- sungen	83
4.2.2	Herstellung durch die Extraktion von Salpetersäure aus einer Uranylnitratlösung	84
4.2.3	Herstellung durch die Auflösung von U_3O_8 in konzentrierter Sal- petersäure	90

4.2.4	Herstellung durch die Auflösung von UO_3 in einer Uranylнитrat- lösung	91
4.3	Bestrahlung von Harnstoff- und HMTA-Lösungen	94
4.4	Herstellung von Uran Gelen	99
4.5	Herstellung von Uran-Neodym Gelen	101
4.6	Herstellung von Uran-Plutonium Gelen	104
4.6.1	Darstellung und Charakterisierung der Uran(VI)-Plutonium(III) Stammlösungen	104
4.6.2	Uran-Plutonium Gelierung	106
4.7	Herstellung von Uran-Americium Gelen	109
4.7.1	Darstellung und Charakterisierung der Uran(VI)-Americium(III) Stammlösung	109
4.7.2	Uran-Americium Gelierung	110
4.8	Thermische Behandlung	113
4.8.1	Thermische Behandlung der Uran- und Uran-Neodym Kerne	114
4.8.2	Thermische Behandlung der Uran-Plutonium Kerne	125
4.8.3	Thermische Behandlung der Uran-Americium Kerne	128
5	Fazit	132
5.1	Zusammenfassung	132
5.2	Ausblick	134
	Abbildungsverzeichnis	135
	Tabellenverzeichnis	141
	Literaturverzeichnis	143
	Danksagungen	153



Energie & Umwelt / Energy & Environment
Band / Volume 142
ISBN 978-3-89336-794-8

 **JÜLICH**
FORSCHUNGSZENTRUM