

Bildung von sekundären Phasen bei tiefengeologischer Endlagerung von Forschungsreaktor-Brennelementen – Struktur- und Phasenanalyse

Andreas Neumann

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

Bildung von sekundären Phasen bei tiefengeologischer Endlagerung von Forschungsreaktor-Brennelementen – Struktur- und Phasenanalyse

Andreas Neumann

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

Band / Volume 153

ISSN 1866-1793

ISBN 978-3-89336-822-8

Inhaltsverzeichnis

Abkürzungen	1
Chemische Zusammensetzung relevanter Minerale und Verbindungen	3
Inhaltsverzeichnis	5
1 Einleitung	9
1.1 Endlagerung radioaktiver Abfälle	9
2 Motivation und Zielsetzung	16
3 Literatur zum Stand von Wissenschaft und Technik	18
3.1 Brennstoffzusammensetzung	18
3.2 Korrosion von UO ₂ -Brennstoff aus Leistungsreaktoren	22
3.3 Korrosion von Glasmatrixen für radioaktive Abfallstoffe.....	24
3.4 Korrosion von Forschungsreaktor-Brennelementen	25
3.4.1 Korrosion von FR-BE im Reaktoreinsatz	25
3.4.2 Korrosion von FR-BE in Zwischenlagerbecken	25
3.4.3 Korrosion von FR-BE unter Endlagerbedingungen	27
3.5 „Layered Double Hydroxides – LDH“ als sekundäre Phasen	30
4 Experimente	33
4.1 Korrosionsexperimente mit unbestrahlten UAl _x -Al- und U ₃ Si ₂ -Al-Proben.....	33
4.2 Aufbereitung der festen und flüssigen Bestandteile der Korrosionsversuche	35
4.3 Synthese europiumsubstituierter LDH	37
4.4 Sorptionsversuche mit Europium und Selenit an Aluminiumchlorohydrat	37
5 Analytische Methodik	39
5.1 Röntgenpulverdiffraktometrie	39
5.1.1 Grundlagen	39
5.1.2 Detektoren von Röntgenstrahlung.....	41
5.1.3 Aufbau der Klimakammer.....	43
5.1.4 Präparation für die Röntgenbeugungsuntersuchungen.....	45
5.1.5 Quantifizierung der sekundären Phasen – theoretische Grundlagen.....	46
5.1.5.1 Rietveld-Methode.....	46
5.1.5.2 Solovyov-Verfahren	54
5.1.6 Beschreibung bevorzugter Orientierung und von Stapelfehlordnungen	55
5.1.6.1 Bevorzugte Orientierung	55
5.1.6.2 Stapelfehlordnung von LDH-Schichtstrukturen	56
5.1.6.3 Bestimmung amorpher Anteile	58

Inhaltsverzeichnis

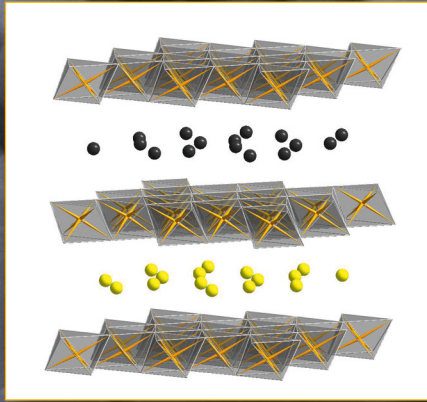
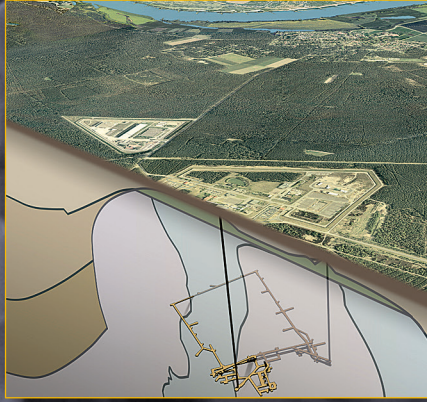
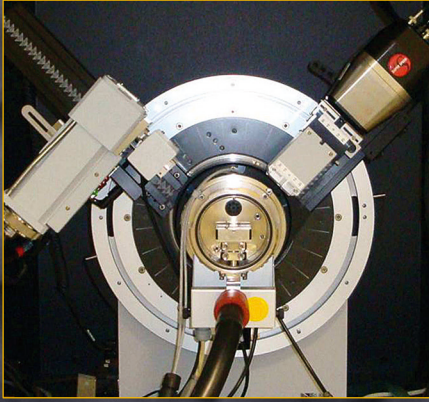
5.2	Rasterelektronen- und Transmissionselektronenmikroskopie	59
5.2.1	Funktionsprinzip des Rasterelektronenmikroskops	59
5.2.2	Probenpräparation für die REM/EDX/BA-Untersuchungen	60
5.2.3	Funktionsprinzip des Transmissionselektronmikroskops	61
5.2.4	Probenpräparation für die TEM-Untersuchungen.....	61
5.2.5	Aktivitätsbestimmung mittels Liquid Scintillation Counting – LSC	62
6	Ergebnisse	63
6.1	Ergebnisse der Untersuchungen der Rasterelektronenmikroskopie.....	63
6.1.1	Morphologie und chemische Zusammensetzung	63
6.1.2	Partikelanalyse der Kornfraktionen.....	68
6.2	Ergebnisse der XRD-Untersuchungen der Korrosionsprodukte aus den Autoklavexperimenten	71
6.2.1	Allgemeine Hinweise zur Ergebnisdarstellung.....	71
6.2.2	System UAl_x -Al in Lauge 2	74
6.2.2.1	UAl_x -Al in Lauge 2, Korngröße < 2 μ m, Isopropanol	74
6.2.2.2	Strukturmodellentwicklung für Lesukit	76
6.2.2.3	UAl_x -Al in Lauge 2, Korngröße 2 – 63 μ m, Isopropanol	87
6.2.2.4	UAl_x -Al – Lauge 2, Korngröße > 63 μ m, Isopropanol	90
6.2.2.5	Massenbilanz der sekundären Phasen für das System UAl_x -Al/Lauge 2 in Isopropanol.....	97
6.2.2.6	UAl_x -Al in Lauge 2, Korngröße < 2 μ m, Wasser	100
6.2.2.7	UAl_x -Al in Lauge 2, Korngröße 2 – 63 μ m, Wasser.....	105
6.2.2.8	UAl_x -Al in Lauge 2, Korngröße > 63 μ m, Wasser	107
6.2.2.9	Massenbilanz der sekundären Phasen für das System UAl_x -Al/Lauge 2 in Wasser	109
6.2.3	System U_3Si_2 -Al in Lauge 2.....	111
6.2.3.1	System U_3Si_2 -Al in Lauge 2, Korngröße < 2 μ m, Isopropanol.....	111
6.2.3.2	U_3Si_2 -Al in Lauge 2, Korngröße 2 – 63 μ m, Isopropanol.....	115
6.2.3.3	U_3Si_2 -Al in Lauge 2, Korngröße > 63 μ m, Isopropanol	119
6.2.3.4	Massenbilanz der sekundären Phasen für das System U_3Si_2 -Al/Lauge 2 in Isopropanol.....	126
6.2.3.5	U_3Si_2 -Al in Lauge 2, Korngröße < 2 μ m, Wasser.....	128
6.2.3.6	U_3Si_2 -Al in Lauge 2, Korngröße 2 – 63 μ m, Wasser.....	132
6.2.3.7	U_3Si_2 -Al in Lauge 2, Korngröße > 63 μ m, Wasser.....	136

Inhaltsverzeichnis

6.2.3.8	Massenbilanz der sekundären Phasen für das System U_3Si_2 -Al/Lauge 2 in Wasser	138
6.2.4	System UAl_x -Al in Mont Terri-Lösung	140
6.2.4.1	UAl_x -Al in Mont Terri-Lösung, Korngröße $< 2 \mu m$, Isopropanol	141
6.2.4.2	UAl_x -Al in Mont Terri-Lösung, Korngröße $2 - 63 \mu m$, Isopropanol	144
6.2.4.3	UAl_x -Al in Mont Terri-Lösung, Korngröße $> 63 \mu m$, Isopropanol	147
6.2.4.4	Massenbilanz der sekundären Phasen für das System UAl_x -Al/Mont Terri-Lösung in Isopropanol.....	150
6.2.5	Zusammenfassung und Diskussion der Autoklavenuntersuchungen.....	151
6.2.5.1	System UAl_x -Al in Lauge 2	154
6.2.5.2	System U_3Si_2 -Al in Lauge 2.....	156
6.2.5.3	System UAl_x -Al in Mont Terri-Lösung	159
6.3	Substitutioneller Einbau von Europium in die LDH-Struktur	161
6.3.1	Ergebnisse der XRD-Untersuchungen des strukturellen Einbaus von Europium in die LDH-Struktur	161
6.3.2	Diskussion der Ergebnisse des Europiumeinbaus in die LDH-Struktur	171
6.4	Radioaktive Sorptionsversuche an Aluminiumchlorohydratphasen	174
6.4.1	Sorption von ^{152}Eu	174
6.4.2	Sorption mit Selenit.....	179
6.4.3	Zusammenfassung und Diskussion der Sorptionsversuche an Aluminiumchlorohydrat	184
7	Ausblick	187
	Zusammenfassung.....	190
	Summary	192
	Danksagung.....	194
	Literaturverzeichnis.....	196
	Abbildungsverzeichnis	206
	Tabellenverzeichnis.....	211
	Anhang A Europiumeinbau – Originaldiffraktogramme und Rietveld-Plots	214
	Anhang B Solovyov-Diagramme	218
	Anhang C Autoklavenversuche – Originaldiffraktogramme und Rietveld-Plots.....	220
	Anhang D Sorptionsversuche in Lauge 2 – Originaldiffraktogramme	231
	Anhang E Strukturen	233
	Anhang F Rietveldparameter.....	260

Inhaltsverzeichnis

Anhang G Geräte und Chemikalien	319
Anhang H Molmassen	320
Anhang I LDH-Steuerdateien für DIFFaX und BGMN.....	321



Energie & Umwelt / Energy & Environment
Band / Volume 153
ISBN 978-3-89336-822-8