

Untersuchungen zum Mengengerüst und den Entsorgungsmöglichkeiten berylliumhaltiger radioaktiver Abfälle in Deutschland



Gesellschaft für Anlagenund Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH

Untersuchungen zum Mengengerüst und den Entsorgungsmöglichkeiten berylliumhaltiger radioaktiver Abfälle in Deutschland

Abschlussbericht

Johannes Nicol Juliane Krüger Peter Kaufholz

November 2022

#### Anmerkung:

Das diesem Bericht zugrunde liegende Eigenforschungsvorhaben wurde mit Mitteln des Bundesministeriums für Umwelt, Naturschutz, nukleare Sicherheit und Verbraucherschutz (BMUV) unter dem Förderkennzeichen 4721E03340 durchgeführt.

Die Verantwortung für den Inhalt dieser Veröffentlichung liegt bei der GRS.

Der Bericht gibt die Auffassung und Meinung der GRS wieder und muss nicht mit der Meinung des BMUV übereinstimmen.

Deskriptoren Beryllium, Endlagerfähigkeit, Konditionierung, Radioaktive Abfälle

# Kurzzusammenfassung

Beryllium hat ein sehr breites Anwendungsspektrum sowohl im kerntechnischen Bereich als auch in der konventionellen Industrie. In Forschungsreaktoren wird Beryllium vor allem als Reflektor- bzw. Moderatormaterial eingesetzt. In Leistungsreaktoren kommt Beryllium hingegen vorwiegend als Material für Primär- und Sekundärquellen zum Anfahren der Reaktoren zum Einsatz. Im vorliegenden Bericht werden die Entsorgungsmöglichkeiten für bestrahlte berylliumhaltige Komponenten aus kerntechnischen Anwendungen aufgezeigt. Hierfür wird ein Mengengerüst für die in Deutschland anfallenden bestrahlten berylliumhaltigen Komponenten erstellt. Im Hinblick auf die Annahmebedingungen des Endlagers Konrad werden diese hinsichtlich ihrer radiologischen als auch stofflichen Eigenschaften bewertet. Außerdem findet eine Ausarbeitung zum aktuellen Stand von W&T zu den Themen Konditionierung und Rezyklierung statt

# Abstract

Beryllium has a very wide range of applications, both in the nuclear sector and in conventional industry. In the nuclear sector, beryllium is primarily used as a neutron reflector or moderator material in research reactors. In nuclear power reactors however, beryllium is mainly used as a material for primary and secondary sources for starting up the reactors. This report outlines the disposal options for irradiated beryllium-containing components. To this end, a quantity structure is drawn up for the irradiated beryllium-containing components produced in Germany. Regarding the acceptance conditions of the Konrad repository, the irradiated beryllium-containing components are assessed primarily in terms of their radiological and material suitability for disposal. In addition, the topics of conditioning and recycling will be addressed

# Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	1
2	Eigenschaften von Beryllium	3
2.1	Herstellung von Beryllium und Berylliumoxid	4
2.2	Chemotoxizität	5
2.3	Korrosion und Löslichkeit	5
2.4	Wasserlöslichkeit von Beryllium	8
2.5	Bestrahlungsverhalten von Beryllium und Berylliumoxid	9
2.5.1	Aktivierung von Verunreinigungen	. 10
2.5.2	Auswirkungen der Neutronenbestrahlung	. 13
3	Verwendung von Beryllium und Berylliumoxid in kerntechnischen Einrichtungen	. 15
3.1	Verwendung als Reflektormaterial	. 15
3.1.1	Forschungsreaktor Geesthacht (FRG-I und FRG-II)	. 16
3.1.2	Rossendorfer Forschungsreaktor (RFR)	. 17
3.1.3	BER-II	. 18
3.1.4	FRM-I	. 19
3.2	Verwendung als Moderator	. 20
3.2.1	FRM-II	. 21
3.3	Verwendung in Neutronenquellen	. 22
3.4	Mengengerüst berylliumhaltiger Abfälle	. 25
3.4.1	Mengen der Moderator- und Reflektormaterialien	. 25
3.4.2	Mengen der Primär- und Sekundärquellen	. 26
4	Einhaltung der Endlagerungsbedingungen Konrad für bestrahltes Beryllium	. 27
4.1	Konditionierungsverfahren	. 27

4.1.1	Bituminieren	. 27
4.1.2	Verglasung	. 28
4.1.3	Phosphatierung	. 28
4.1.4	Konditionierung mit Wachs	. 29
4.1.5	Zementierung	. 29
4.1.6	Verpackung ohne Konditionierungsmatrix	. 30
4.2	Stoffliche Annahmebedingungen	. 31
4.2.1	Beschreibungs- und Deklarationsschwellenwert	. 32
4.2.2	Stofflisteneintrag für Beryllium	. 33
4.3	Radiologische Annahmebedingungen	. 34
4.3.1	Aktivitätsbegrenzungen für den bestimmungsgemäßen Betrieb	. 34
4.3.2	Thermische Beeinflussung des Wirtsgesteins	. 35
4.3.3	Unterstellte Störfälle	. 35
4.3.4	Kritikalitätssicherheit	. 36
4.4	Verpackungskonzepte	. 37
4.5	Einschätzung der Endlagerfähigkeit der berylliumhaltigen radioaktiven Abfälle	. 39
4.5.1	Neutronenquellen	. 39
4.5.2	Moderator- und Reflektormaterialien	. 40
5	Wiederverwendungsmöglichkeiten von bereits bestrahltem Beryllium	. 45
5.1	Beryllium dotierte Kernbrennstoffe	.45
5.2	Beryllium als Breeding-Blanket in Fusionsreaktoren	. 47
5.3	Einsatzmöglichkeiten im nicht nuklearen Bereich	. 50
5.4	Rezyklierung von bestrahltem Beryllium	. 51
5.4.1	Entfernen von Tritium	. 51

5.4.2	Reinigung und Entfernung von Fremdstoffen	. 52
5.4.3	Realisierbarkeit der Rezyklierung	. 54
6	Zusammenfassung	55
	Literaturverzeichnis	59
	Abbildungsverzeichnis	. 69
	Tabellenverzeichnis	.71

## 1 Einleitung

Bei der Entsorgung radioaktiver Abfälle in der Bundesrepublik Deutschland spielt das Element Beryllium, vor allem durch den Rückbau der Forschungsreaktoren, eine besondere Rolle. Bestrahlte berylliumhaltige Komponenten zählen in Deutschland zu radioaktiven Abfällen mit vernachlässigbarer Wärmeentwicklung. Für deren Entsorgung ist die Endlagerung im Endlager Konrad vorgesehen, welches voraussichtlich 2029 fertiggestellt werden soll.

Für die Einlagerung radioaktiver Abfälle im Endlager Konrad sind die "Anforderungen an endzulagernde radioaktive Abfälle" einzuhalten /BFS 15/. Diese enthalten neben Anforderungen an die Endlagergebinde und radiologischen Eigenschaften der Abfälle auch Beschränkungen bzgl. der Einlagerung nichtradioaktiver schädlicher Stoffe, welche aus der gehobenen wasserrechtlichen Erlaubnis (GWE) hervorgehen /NIE 02/. Im Zuge des Genehmigungsverfahrens für die Errichtung und den Betrieb des Endlagers Konrad (22. Mai 2002), wurde die maximal einlagerbare Menge an Beryllium auf 24,5 kg beschränkt. Es überschreiten jedoch bereits die in den deutschen Forschungsreaktoren eingesetzten Berylliumkomponenten die Maximalmengen der GWE um ein Vielfaches /BRU 19/. Zahlreiche berylliumhaltige radioaktive Abfälle werden aufgrund der Stoffmengenbegrenzung in den Endlagerungsbedingungen Konrad für Beryllium in den Abfalldatenbanken als "ggf. nicht Konradgängig" geführt. Darüber hinaus stellt die Aktivierung der Berylliumkomponenten ein weiteres Problem dar. Aufgrund des hohen Neutronenflusses, welchem Berylliumkomponenten im kerntechnischen Betrieb ausgesetzt sind, reichen geringste Mengen von Spurenverunreinigungen bspw. von Natururan aus, um Aktinoide und Spaltprodukte zu erzeugen. Hier muss vor der Endlagerung geprüft werden, inwieweit die radiologischen Endlagerungsbedingungen eingehalten werden können.

Ziel des Forschungsvorhabens war es, mögliche Entsorgungspfade für bestrahlte berylliumhaltige Komponenten zu beschreiben. Dafür wurde unter anderem ein Mengengerüst erstellt, welches in Deutschland zu entsorgende berylliumhaltige radioaktive Abfälle auflistet. Außerdem wurde anhand einer Literaturrecherche eine Charakterisierung der Eigenschaften im kerntechnischen Bereich eingesetzter Berylliumkomponenten erarbeitet. Darüber hinaus wurde aus der verfügbaren Literatur das radioaktive Inventar der in den Forschungsreaktoren eingesetzten Berylliumkomponenten recherchiert. Durch eine Abschätzung des radioaktiven Inventars konnte eine Einschätzung hinsichtlich der Endlagerfähigkeit bestrahlter berylliumhaltiger Komponenten gegeben werden. Neben der Einhaltung der radiologischen Endlagerbedingungen wurden auch die stofflichen

1

Bedingungen für die Endlagerfähigkeit geprüft. Abschließend wurde der aktuelle Stand von Wissenschaft und Technik hinsichtlich geeigneter Verfahren zu Konditionierungsund Entsorgungskonzepten erarbeitet. Insbesondere zu Wiederverwendungsmöglichkeiten im kerntechnischen als auch konventionellen Bereich bzw. zu den Bedingungen für eine Rezyklierung wurde diesbezüglich recherchiert.

## 2 Eigenschaften von Beryllium

**Beryllium** ist ein silberweißes, sehr hartes Leichtmetall, welches bei einer Temperatur von 1285 °C schmilzt und bei 2477 °C siedet. Beryllium hat im Vergleich zu anderen Stoffen ein deutlich höheres Elastizitätsmodul, was zu einer geringeren Duktilität und einer hohen Anfälligkeit für Sprödbruch führt. Die Duktilität von Beryllium ist dabei jedoch von verschiedenen Faktoren, wie bspw. der Temperatur, der chemischen Zusammensetzung (einschließlich Verunreinigungen etc.) der Beschaffenheit der Korngrenzen und dem Grad der Vordehnung des Materials, abhängig. Seine hexagonale Kristallstruktur, die nur wenige Gleitebenen zulässt, verleiht Beryllium eine hohe Festigkeit und ist zudem für die anisotropen Eigenschaften des Elements verantwortlich. Ähnlich wie Aluminium bildet Beryllium in Kontakt mit Wasser eine schützende Hydroxidschicht aus, die einen Angriff durch Wasser verhindert /WIB 01/. Zudem löst sich Beryllium, im Gegensatz zu anderen Elementen der zweiten Hauptgruppe, bei Erhitzung in wässrigen Alkalilaugen auf.

Physikalische Größe	Ве	BeO
Dichte in g/cm <sup>3</sup>	1,85	3,01
Schmelzpunkt in K	1.558	2.575
Spezifische Wärmekapazität (J/kg K)	1.925	-
Thermische Leitfähigkeit in W/m K	216	300
Thermischer Expansionskoeffizient in E-06/°C	11,4	-
Elastizitätsmodul in GPa	303	-
Fließgrenze in MPa	186-262	-
Bruchfestigkeit in MPa	228-352	-
Makroskopischer Absorptionsquerschnitt für thermische Neutro- nen	0,00123	-
Bremsverhältnis Σs / Σa	159	180

 Tab. 2.1
 Eigenschaften von Beryllium und Berylliumoxid /TOM 04/

**Berylliumoxid** ist ein weißer Feststoff, der sich durch eine außergewöhnliche Härte, eine hohe Durchschlagsfestigkeit, sowie eine im Vergleich zu elementarem Beryllium höhere Wärmeleitfähigkeit auszeichnet. Die Durchschlagfestigkeit gibt die elektrische Feldstärke an, welcher ein Stoff standhält, ohne seine isolierende Eigenschaft zu verlieren. Die Wärmeleitfähigkeit beläuft sich auf ungefähr 300 W/(m K) und entspricht damit dem Dreißigfachen der Wärmeleitfähigkeit von Urandioxid. Berylliumoxid besitzt außerdem einen im Vergleich zu metallischem Beryllium deutlich höheren Schmelzpunkt von 2550 °C gegenüber 1285 °C. Aufgrund des im Vergleich zu elementarem Beryllium deutlich höheren Schmelzpunkts wird Berylliumoxid als Material für sog. Hochtemperatur-Leistungsreaktoren in Betracht gezogen. Die Dichte von Berylliumoxid, welches bei Raumtemperatur gesintert bzw. gepresst wird, kann je nach angewendetem Verfahren variieren. Die höchsten Dichten weist Berylliumoxid in einem Temperaturbereich von ungefähr 1700 °C bis 1800 °C auf (3,03 g/cm<sup>3</sup> - 100,66 % der theoretischen Dichte). Bei Temperaturen, die eine Grenze von 1800 °C übersteigen, führt ein rapides Wachstum der Korngrößen zu einem Verlust an Festigkeit. Je nach Herstellungsverfahren variieren auch die thermophysikalischen Eigenschaften stark.

#### 2.1 Herstellung von Beryllium und Berylliumoxid

Beryllium wird in Ländern wie den USA, Kasachstan aber auch Brasilien, Argentinien, Indien, China und zentralafrikanischen Ländern gewonnen. Außerhalb der Vereinigten Staaten, welche mit ca. 170 Mg ungefähr 66 % der weltweiten Gesamtfördermenge berylliumhaltiger Mineralien fördern, folgt China mit ungefähr 26 % /USGS 20/. Seit den 1960iger Jahren stammt das in westlichen Ländern eingesetzte Beryllium zu einem großen Teil aus den USA, aus einer Fördermine in Utah, in der Be in Form von Bertrandit-Kristallen (Be<sub>4</sub>Si<sub>2</sub>O<sub>7</sub>(OH)<sub>2</sub>) vorliegt.

Ein gängiger Prozess zur Gewinnung von elementarem Beryllium ist die sog. Schmelzelektrolyse. Als Schmelzelektrolyt hat sich dabei basisches Berylliumfluorid bewährt, welches eine hohe Leitfähigkeit und geringe Flüchtigkeit bei hohen Temperaturen aufweist. Des Weiteren ist es möglich elementares Beryllium bei niedrigeren Temperaturen zu elektrolysieren und durch Umschmelzprozesse bzw. Sintern des komprimierten Be-Pulvers bei 1150 °C herzustellen. Berylliumoxid kann entweder durch fluorhaltige Stoffe oder über Schwefelsäureverbindungen hergestellt werden. Durch einen Auflöseprozess in Schwefelsäure werden die berylliumhaltigen Mineralien gereinigt. Aluminium wird durch die Ausfällung als Ammonium-Sulfat abgetrennt. Das übrig gebliebene sulfathaltige Pulver wird daraufhin kristallisiert und bei einer Temperatur von 1150 °C zu Beryllium-Oxid kalziniert.

Je nach Herkunft, Produktionsverfahren und Produktionscharge variieren die Verunreinigungen im Beryllium bzw. Berylliumoxid stark. Ein wesentlicher Unterschied der Zusammensetzungen des Berylliums aus den USA im Vergleich zu Kasachstan ist der Urangehalt. Für industrielle Anwendungen ohne Neutronenbestrahlung ist der Urangehalt nicht von Interesse. Dies ändert sich jedoch im kerntechnischen Betrieb, wo die Neutronenbestrahlung von Beryllium zur Ansammlung von Transuranen führt.

#### 2.2 Chemotoxizität

Laut EU Verordnung (EG) Nr. 1907/2006 (REACH) zählt Beryllium in seiner Einstufung zur krebserzeugenden Kategorie 1B und STOT RE1 und erfüllt damit die Anforderungen für SVHC-Substanzen (Substances of Very High Concern) /EUR 13/. Für Beryllium besteht eine hohe Wahrscheinlichkeit für eine krebserzeugende, fortpflanzungsgefährdende als auch erbgutverändernde Wirkung. Dadurch, dass die biochemischen Prozesse von Beryllium im menschlichen Körper immer noch nicht vollständig geklärt sind, gibt es keine Schwellenwerte bei deren Einhaltung die gesundheitliche Beeinträchtigung ausgeschlossen werden kann /NAG 16/. Während eine orale Aufnahme weniger gefährlich ist, kann es bei einer inhalativen Aufnahme schon bereits nach kurzen Einwirkungen und bei geringen Mengen zu schweren Lungen-, Leber- und Hautschäden kommen. Entscheidende Faktoren für die Wirkung bei inhalativer Aufnahme sind dabei die Partikelgröße als auch die Löslichkeit in der Lungenflüssigkeit. Kommt es zur Inhalation hoher Berylliumkonzentrationen, kann dies zu akuter Berylliose (Pneumonitiden) führen. Wird die Inhalation von berylliumhaltigem Staub, Dampf oder Rauch, über Jahre fortgesetzt kann es auch bei relativ niedrigen Konzentrationen zu chronischer Berylliose (Chronic beryllium disease - CBD) kommen.

#### 2.3 Korrosion und Löslichkeit

Beryllium reagiert in Kontakt mit Wasser bzw. Luft und es können sich dabei Berylliumoxid (BeO), Berylliumhydroxid (Be(OH)<sub>2</sub>) aber auch Berylliumhalogenide und andere Verbindungen ausbilden. Die Hauptreaktionen sind:

$$Be + H_2 O \to BeO + H_2 \tag{2.1}$$

$$Be + 2H_2O \rightarrow Be(OH)_2 + H_2 \tag{2.2}$$

Die Bildung einer schützenden Oxidschicht macht Beryllium für weitere Korrosionsreaktionen überaus beständig. Laut /DRU 19/ ist die Bildung von Be(OH)<sub>2</sub> in einem pH-Bereich von 4 bis 10,7 thermodynamisch günstig, was die sehr gute Passivität von Beryllium erklärt. Korrosionsreaktionen laufen dementsprechend langsam ab und treten in einem pH-Bereich von 2 bis 12,5 vorwiegend in Form von gleichmäßiger Korrosion auf. Verunreinigungen im Metall können jedoch dazu führen, dass die Passivierungsschicht an einigen Stellen fehlt und es dadurch zu lokalen Korrosionsprozessen kommt /STR 62/, /MIL 67/, /HIL 98/. Halogenide wie bspw. Chlorid- und Sulfat-Ionen können unter anderem Lochfraßkorrosion hervorrufen /PUN 10/. Diese entsteht dadurch, dass es zur Ausbildung einer galvanischen Zelle zwischen den Verunreinigungen und dem elementaren Beryllium kommt /HAW 05/. Da Beryllium anodisch zu den meisten Metallen, mit Ausnahme von Magnesium, Zink und Mangan wirkt, kommt es in unmittelbarer Nähe zu den Verunreinigungen zur Korrosion. Außerdem kann es zu galvanischer Korrosion kommen, wenn Beryllium mit anderen Metallen, wie bspw. Edelstahl, in Kontakt kommt. In diesem Fall ist der nichtrostende Stahl kathodisch geschützt und die Korrosion des Berylliums beschleunigt sich.

Problematisch bei der Korrosion von Beryllium ist vor allem die Freisetzung von Wasserstoff, welche zu Rissbildung und damit zur Mobilisierung von Radionukliden in den Abfallgebinden führen kann. Die experimentelle Datenlage zur Korrosion und Reaktivität von metallischem Beryllium unter Endlagerbedingungen, in Bezug auf die Wasserstoffausbildung, ist jedoch noch weitgehend unerforscht. In /LON 02/ wird beschrieben, dass bestrahltes und nicht bestrahltes Beryllium hinsichtlich der Korrosion die gleichen Eigenschaften aufweisen. Um die Korrosionsraten für Beryllium zu ermitteln, wurden am Idaho National Lab (INL) Experimente durchgeführt. Beryllium-Proben wurden dafür in die Erde eingebracht. In den Experimenten konnte eine Proportionalität zwischen der Tiefe im Boden und der Korrosionsrate festgestellt werden. Aus den Ergebnissen der Langzeitkorrosionsexperimente, welche über einen Zeitraum von einem Jahr stattfanden, konnte ermittelt werden, dass es 350 bis 1.600 Jahre benötigt um 1 mm der Oberfläche korrodieren zu lassen. Außerdem wurden auf einigen der Coupons nach 3 Jahren Sulfit-Reduzierende Bakterien festgestellt. Laut /LON 11/ reagiert Beryllium empfindlicher gegenüber Verunreinigungen im Wasser wie Chlorid-, Sulfat- bzw. Fluorid-Ionen, welche die Korrosionsprozesse beschleunigen.

In /BUK 24/ wurden die Korrosionsraten von metallischem Beryllium in alkalischen wässrigen Lösungen, die den pH-Wert des Porenwassers in OPC-basierten zementhaltigen Materialien nachahmen, mit verschiedenen Methoden untersucht. Die Korrosionsraten wurden zum einen durch eine Messung des Massenverlusts aber auch durch eine Bestimmung der im Fluid gelösten Be-Konzentrationen bestimmt. Beide Messmethoden konnten einen starken Anstieg der Korrosionsraten mit steigendem pH-Wert in hyperalkalischen Lösungen (pH > 12) aufzeigen. Die Korrosionsraten korrespondierten außerdem mit der Freisetzung von Wasserstoff. Mikroskopische Untersuchungen des

6

Berylliums vor und nach der Korrosion wiesen auf Lochfraßkorrosion als Haupttreiber der Korrosionsprozesse hin. Mechanische Defekte im Material wie Hohlräume oder Kratzkanten auf der Oberfläche der Berylliumkomponenten konnten als Initiator für die Lochfraßkorrosion ausgemacht werden.



Abb. 2.1 Die in /BUK 24/ ermittelten Korrosionsraten von metallischem Beryllium und Al im Vergleich zu verfügbaren Literaturdaten /PRO 66/, /ENG 55/, /CHA 52/, /CAU 14/

Interessanterweise konnte durch ergänzende Experimente, welche mit Al-Folien unter ähnlichen Bedingungen durchgeführt wurden, aufgezeigt werden, dass die Korrosionsraten von Al unter stark alkalischen Bedingungen um mehrere Größenordnungen höher sind als die von Be-Metall. Dies deutet darauf hin, dass das Korrosionsverhalten von Aluminium nicht, wie in der Literatur mehrfach geschehen /DRU 19/, /LON 11/, für die Bewertung des Korrosionsverhaltens von metallischem Beryllium in zementhaltigen Umgebungen herangezogen werden kann. Dadurch, dass Beryllium unter stark alkalischen Bedingungen deutlich weniger reaktiv als ursprünglich angenommen ist, wird in /BUK 24/ darauf verwiesen, dass die Konditionierung von metallischem Be in zementhaltigen Matrizen unter gewissen Umständen eine praktikable Option sein kann. Problematisch ist nichtsdestotrotz die Bildung von Wasserstoff und die damit verbundene Steigerung der Porosität und Rissbildung. Aus diesem Grund sollte zur Konditionierung mit Zementen gearbeitet werden, die Porenlösungen mit einem pH-Wert von unter 13 aufweisen.

## 2.4 Wasserlöslichkeit von Beryllium

Zur Löslichkeit von Stoffen gibt es unterschiedliche Definitionen. Die Grenze, ab welcher Stoffe als unlöslich beschrieben werden, hängt vom Anwendungsbereich ab. Allgemein anerkannte Einstufungen stammen vom Europäischem Arzneibuch, der International Union of Pure and Applied Chemistry (IUPAC) und dem CRC Handbook of Chemistry and Physics. Einige gängige Einheiten in der die Löslichkeit angegeben wird, sind z. B.: Massenkonzentration (g/I), Massenanteil (g/g), Stoffmengenkonzentration. Nach Einordnung der United States Pharmacopeial (USP) ist beispielsweise Calciumnitrat (ein Düngemittel) mit einer Löslichkeit von 15,87 g/I (m<sub>LSM</sub>/m<sub>FST</sub> = 0,63)<sup>1</sup> eine sehr gut lösliche Substanz (m<sub>LSM</sub>/m<sub>FST</sub> <1) und Bariumsulfat (Weißpigment und Füllstoff) mit einer Löslichkeit von 2,45 E-3 g/I (m<sub>LSM</sub>/m<sub>FST</sub> = 409.000) ein Beispiel für eine unlösliche Substanz (siehe Tab. 2.2).

Löslichkeit	m <sub>lsm</sub> /m <sub>fst</sub>	Verbindung	m <sub>lsm</sub> /m <sub>fst</sub>
sehr gut löslich	< 1	CaNO <sub>2</sub>	0,64
//	//	//	//
schwer löslich	100 bis 1.000	CaSO <sub>4</sub>	490
kaum löslich	1.000 bis 10.000	CaHPO <sub>4</sub>	5.000
unlöslich	≥ 10.000	BaSO <sub>4</sub>	409.000
		Be(OH) <sub>2</sub> pH > 12,5	10.000 bis 100.000*
		Be(OH) <sub>2</sub> pH ~ 7	1.000.000 /CEV 20/

iele

Nach /CRC 13/, /CRC 86/, /WHO 16/ gelten Beryllium und Berylliumoxid als unlöslich in Wasser. Be(OH)<sub>2</sub> wird nach /WIB 01/ als kaum löslich in Wasser definiert. Außerdem wird in /KNU 08/ aufgeführt, dass die EU nach Überprüfung der EPA-Datenbank Protection Agency AQUIRE (AQUatic toxicity Information REtrieval) und nach Auswertung von Löslichkeitstests Beryllium in metallischer Form nicht weiter klassifiziert wird. Dies bestätigt, dass Beryllium selbst unter extremen Bedingungen keine toxischen Mengen an Beryllium-Ionen freilässt. Die Tests umfassten dabei feines Berylliumpulver und einen hohen Säuregehalt.

<sup>&</sup>lt;sup>1</sup> m<sub>LSM</sub> – Masse des Lösungsmittels, m<sub>FST</sub> – Masse des Feststoffs

#### 2.5 Bestrahlungsverhalten von Beryllium und Berylliumoxid

Als Reinelement kommt Beryllium nur als Isotop Be-9 vor. Durch thermische Neutronen kann es in Folge einer ( $n,\gamma$ )-Reaktion in das Isotop Be-10 überführt werden. Der Wirkungsquerschnitt für diese Reaktion ist mit 0,0088 barn allerdings relativ gering und Be-10 ist mit einer Halbwertszeit von 1,787 E+6 Jahren vor allem relevant für die Endlagersicherheit /LIE 10/. In Folge der Bestrahlung von Beryllium mit schnellen Neutronen sind folgende Kernreaktionen von Bedeutung:

$${}^{9}Be + n \rightarrow 2 {}^{4}He + 2n (E_n > 2,7 MeV)$$
 (2.3)

$${}^{9}Be + n \rightarrow {}^{7}Li + {}^{3}H (E_n > 10,5 MeV)$$

$${}^{7}Li + n \rightarrow {}^{4}He + {}^{3}H + n$$

$$(2.4)$$

$${}^{9}Be + n \rightarrow {}^{6}He + {}^{3}H (E_n > 0, 6 MeV)$$

$${}^{6}He \rightarrow {}^{6}Li + \beta^{-}\vartheta$$

$${}^{6}Li + n \rightarrow {}^{3}H$$

$$(2.5)$$

Mit schnellen Neutronen führt die Bestrahlung von Be-9 zur Bildung von inaktivem Helium, welches zum Aufquellen des bestrahlten Materials führt (siehe Gl. 2.3 – 2.5.). Außerdem kann sich, wie aus den Gleichungen 2.4. und 2.5. hervorgeht, über aufeinanderfolgende Reaktionen radioaktives Tritium ausbilden. Die verschiedenen Aktivierungswege von Be-10 bzw. von Tritium und von Helium sind in Abb. 2.2 noch einmal dargelegt. Aufgrund des hohen Wirkungsquerschnitts für die Reaktionen mit schnellen Neutronen, entstehen dabei signifikante Mengen an Tritium und Helium.



Abb. 2.2 Aktivierungswege für die Bildung von Tritium und Helium /INL 07/

#### 2.5.1 Aktivierung von Verunreinigungen

Dadurch, dass Verunreinigungen infolge der Bestrahlung durch Neutronen maßgeblich zum Radionuklidinventar bestrahlter Berylliumkomponenten beitragen, spielen diese gerade bei der Entsorgung berylliumhaltiger radioaktiven Abfälle eine zentrale Rolle. Bei den Verunreinigungen sind insbesondere Eisen bzw. Cobalt von Bedeutung. Über Neutroneneinfangreaktionen kann sich bspw. durch Eisen-Verunreinigungen das Isotop Fe-59 bilden, welches als Beta-Strahler zu Co-59 zerfällt. Durch nachfolgende (n, y)-Reaktionen mit thermischen Neutronen entsteht Co-60 mit einer Halbwertszeit von 5,3 Jahren, welches, bedingt durch die Doppel-Emission zweier Photonen mit Energien von jeweils 1,17 MeV und 1,33 MeV, wesentlich zur Gammadosisleistung von Beryllium beiträgt. Co-60 kann aber auch über die Aktivierung von Co-59 gebildet werden, welches zu Co-60 aktiviert wird /HZB 21/. Weitere relevante Aktivierungsprodukte sind C-14  $(t_{1/2}=5.730 \text{ a})$ , das durch Neutroneneinfang aus N-14 gebildet wird und Nb-94 (t<sub>1/2</sub>=20.300 a), das ebenfalls durch Neutroneneinfang aus Nb-93 entsteht. Gerade das radioaktive Kohlenstoff-Isotop C-14, ist als Bestandteil unvermeidlich, da der Herstellungsprozess, bei dem pulverförmiges Beryllium verpresst bzw. gesintert wird, in Luft stattfindet. Hierbei lagert sich Stickstoff in Beryllium an, welcher dann zu radioaktivem C-14 aktiviert wird.



Abb. 2.3 Verschiedene Arten der Aktivierung von Transuranen-Verunreinigungen im Beryllium. Ausschraffierte Isotope sind für die Endlagerung von besonderer Bedeutung /LON 11/

Weiterhin nimmt U-238 eine zentrale Rolle bei den Verunreinigungen ein. U-238 transmutiert durch Neutroneneinfangreaktionen zu Plutonium und einer Reihe von langlebigen minoren Aktinoiden wie bspw. Pu, Am und Cm (vgl. Abb. 2.3). Außerdem kommt es in Folge von Kernspaltungsreaktionen zur Entstehung einer Reihe von Spaltprodukten. Hier sind insbesondere Cs-137 und Cs-134 zu nennen. Die Verunreinigung durch Uran spielt aufgrund des hohen Neutronenflusses, welchem Berylliumkomponenten im Reaktorbetrieb ausgesetzt sind, bei der Entsorgung eine entscheidende Rolle. Untersuchungen in den USA hinsichtlich der Aktivierung bestrahlter Berylliumreflektoren am Idaho National Laboratory ergaben so hohe Werte, welche die Einordnung der Berylliumkomponenten als Transuranabfall zur Folge hatte.

Eine Übersicht zu den für die Aktivierung relevanten Verunreinigungen ist in Tab. 2.3 für fünf verschiedene Produktklassen anhand von Herstellerangaben aufgelistet. Aus den Angaben in Tab. 2.3 ist ersichtlich, dass die Menge der Verunreinigungen, welche in Beryllium bzw. Berylliumoxid auftreten, je nach Abbauort und Produktionsverfahren variiert. So unterscheidet sich bspw. die Urankonzentration für Beryllium aus den USA im Vergleich zur Produktion aus Kasachstan signifikant.

Aktivierungspro- dukt	Verunreini- gung	<b>S-65</b> /LON 02/	<b>S-200F</b> /JAE 04/	S-200E	<b>TShG</b> /LON 02/
C-14	Ν	50	230	50	280
Co-60, Fe-60	Fe	600	790	600	500-1500
Co-60	Со	7	8	7	<10
Ni-59, Ni-63	Ni	100	109	100	10-100
Nb-94	Nb	50		50	10
Ag-108	Ag	5	<3	5	0,3
Pu-238, Pu-239 Pu-242, Am-241 Am-242, Am-243, Cm-243, Cm-245, Cm-246	U-238	15	72	20-100	

Tab. 2.3Verunreinigungen in Beryllium fünf verschiedener Produktklassen in μg pro<br/>g /JAE 04/

In /KOL 16/ wurden 20 Proben von handelsüblichem Beryllium aus kasachischer Produktion (TShG) untersucht und es konnte gezeigt werden, dass die Urankonzentration in kommerziellem Beryllium zwischen 0,16 und 18,0 ppm liegt. In destilliertem Beryllium kann diese sogar auf Werte von 0,05 bis 0,92 ppm sinken.



Abb. 2.4 Uran-Konzentration in Beryllium aus Mine aus Kasachstan /KOL 16/

Aus Abb. 2.5 geht hervor, dass die Beryllium-Legierungen der Firma Brush-Wellman aus amerikanischer Produktion im Vergleich dazu deutlich höhere Verunreinigungen an Uran, in einer Größenordnung von 20-120 μg/g, aufweisen. Laut /KOL 16/ beträgt der Urangehalt in Beryllium der Sorte S-65 bis zu 150 μg/g.



Abb. 2.5 Uran-Verunreinigungen für Beryllium-Legierungen der Firma Brush-Wellman /LON 02/

Die in Deutschland eingesetzten Beryllium-Reflektoren und Moderatoren als auch Anfahrquellen wurden größtenteils von der Firma Brush-Wellmann (heute MATERION) hergestellt. So stammen die Spezifikationen S-65, S-200F und S-200E alle von Brush-Welman. Bekannt ist, dass für die Reflektoren der Forschungsreaktoren FRG-I/II, FRM-I und des BER-II die Spezifikation S-200F eingesetzt wurde /HZB 21/. Laut /LON 02/ weisen die Produktklassen S-200F, S-200E und S-65 einen Beryllium-Anteil von 98,5 %, 98 % und 99 % auf. BeO kommt dabei maximal zu jeweils 1,5 %, 2 % und 1,0 % vor. Beryllium aus sowjetischer Produktion, mit der Spezifikation TShG, wurde in Deutschland nur im Forschungsreaktor-RFR eingesetzt. Hier kann davon ausgegangen werden, dass die Aktivierung der Berylliumkomponenten durch Transurane bzw. durch Spaltprodukte geringer ausfällt als bei den Berylliumkomponenten der anderen deutschen Forschungsreaktoren.

#### 2.5.2 Auswirkungen der Neutronenbestrahlung

Die Bestrahlung von **Beryllium** bei Temperaturen unter 400 °C mit hochenergetischen Neutronen generiert im Metall Versetzungsringe, sog. *"dislocation loops"* /SNE 05/, /GEL 92/. Außerdem bilden sich in einem Temperaturbereich von 325 bis 600 °C intergranular Gasbläschen aus Helium um die Versetzungen herum aus /GEL 94/ /BEE 67/. Laut /RAB 04/ spielt die Gasbildung von Tritium bzw. Helium in der Bewertung der strukturellen Integrität und der Abschätzung der Lebensdauer bestrahlter berylliumhaltiger Komponenten dabei eine deutlich entscheidendere Rolle als durch Strahlung induzierte Gitterschäden. Heliumblasen, welche durch die Bestrahlung entstehen, verhindern unter anderem das Versetzungsgleiten, was zu einer eingeschränkten Duktilität und einer erhöhten Festigkeit und Härte führt /BEE 67/. Die Schädigung wird durch gasbildende Reaktionen mit schnellen Neutronen verstärkt und kann bei hohen Fluenzen zu einer Auflösung des Materials führen /HEC73/. Weiterhin ist die Bildung von Tritium von signifikanter Bedeutung, was Sicherheitsaspekte in der Handhabung angeht. Das Bestrahlungsverhalten bei niedrigen Temperaturen unterscheidet sich dabei deutlich von dem bei hohen Temperaturen. Unterhalb von 500 °C schwillt elementares Beryllium unter Neutronenbestrahlung nur gering an /BAR 00/. Ein signifikantes Anschwellen in einer Größenordnung von >> 1 % tritt erst bei höheren Temperaturen auf. Neben der Temperatur wirkt sich auch die Korngröße proportional auf das Anschwellen aus /BAR 00/. Generell gilt, dass bei Temperaturen über 600 °C die Festigkeit von Beryllium signifikant abnimmt.

Berylliumoxid zeigt bei erhöhter Temperatur eine Abnahme der Duktilität bzw. der Streckgrenze. Die Ursache hierfür ist nicht vollständig erforscht, hängt wahrscheinlich aber mit dem sog. "loop swelling" oder der Ansammlung von Helium zusammen. Weiterhin nimmt die thermische Leitfähigkeit mit Zunahme der Neutronendosis ab. /ELS 61/ ermittelten eine um 80 % reduzierte thermische Leitfähigkeit bei einer Neutronendosis von 6E+19 n/m<sup>2</sup> und einer Temperatur von 100 °C. Treten Mikrorisse im Material auf, nimmt die thermische Leitfähigkeit noch einmal, gerade bei hohen Bestrahlungstemperaturen, rapide ab. Auch bei Berylliumoxid ist das Anschwellen proportional zur Anzahl der schnellen Neutronen und stellt sich schon bei Temperaturen von ungefähr 100° C ein. Die Ausdehnung ist dabei anisotrop und entlang der basalen Ebene ungefähr zehnmal so ausgeprägt wie entlang der prismatischen Ebene. Die Schädigung durch Neutronen bei niedrigen Temperaturen erfolgt zunächst durch Gitterexpansion, welche durch die anisotrope Expansion der Kristallite zu einer Korngrenzen-Trennung führt. Bei höheren Temperaturen spielt die Schädigung durch Heliumblasenbildung eine deutlich größere Rolle. Von /HIC 66/ wurde diesbezüglich ein Modell entworfen, welches das strahleninduzierte Anschwellen von Berylliumoxid ohne Rissbildung beschreibt. Ähnlich wie bei elementarem Beryllium kommt es auch bei niedrigen Strahlendosen durch Versetzungsverankerungen zu einer erhöhten Festigkeit und einem erhöhten Elastizitätsmodul /CLA 63/. Bei Neutronendosen von mehr als 1E+24 n/cm<sup>2</sup> und Energien von E> 1 MeV kommt es zu signifikanten mikroskopischen Ausdehnungen und zu einer Zersetzung der Gitterstruktur. Die Volumenausdehnung verhält sich dabei proportional zu den auftretenden Strahlenschäden.

# 3 Verwendung von Beryllium und Berylliumoxid in kerntechnischen Einrichtungen

Im Folgenden soll auf den Einsatz von Beryllium als Moderator- und Reflektormaterial als auch auf den Einsatz als Neutronenquellen eingegangen werden.

Elementares Beryllium als auch Berylliumoxid weisen ein gutes Bremsvermögen für schnelle energiereiche Neutronen auf /HOU 22/. Hinzu kommt, dass beide Materialien einen geringen Absorptionsquerschnitt für Neutronen besitzen und sich gut als Reflektormaterial in Reaktoren eignen, wo eine kompakte Bauweise wünschenswert ist. Beryllium als Moderator- bzw. Reflektormaterial einzusetzen, ist immer dann erstrebenswert, wenn es darum geht eine verbesserte Neutronik bzw. Brennstoffausnutzung zu erreichen /HEC73/, /INL 07/. Darüber hinaus weisen elementares Beryllium als auch Berylliumoxid gute Eigenschaften bei hohen Temperaturen auf, wodurch sich ein breites Anwendungsspektrum in Kernreaktoren ergibt /HOU 23/. Zu diesen Eigenschaften zählen unter anderem eine hohe Festigkeit und Elastizität, eine hohe Wärmeleitfähigkeit und eine hohe chemische Stabilität bei erhöhten Temperaturen. Des Weiteren generiert Beryllium unter Neutronenbeschuss, einmal durch eine (n,2n)-Reaktion und durch eine (γ,n+2a)-Reaktion, Neutronen.

#### 3.1 Verwendung als Reflektormaterial

Die am häufigsten eingesetzten Materialien für Neutronenreflektoren sind neben leichtem und schwerem Wasser vor allem Grafit, Beryllium und Berylliumoxid und damit fast identisch mit den Materialien, die zur Moderation eingesetzt werden. Die Anforderungen an die Materialien für Neutronenreflektoren ähneln generell denen von Neutronenmoderatoren und umfassen:

- einen niedrigen Absorptionsquerschnitt,
- einen hohen Reflexionskoeffizienten,
- einen hohen Streuquerschnitt und
- mechanische Stabilit
   ät bei erh
   öhter Temperatur und Neutronenbestrahlung.

Zumeist fungiert Beryllium tatsächlich sowohl als Moderator als auch als Reflektor. Beryllium verlangsamt die durch Spaltung erzeugten Neutronen und reflektiert diese zurück in den Reaktorkern. Der Einsatz von Beryllium als Neutronen-Reflektor kann also den Verlust von Neutronen verringern und eine kompaktere Bauweise des Reaktorkerns ermöglichen. Außerdem ergibt sich bei der Bestrahlung mit schnellen Spaltneutronen oberhalb einer theoretischen Energieschwelle von 1,85 MeV eine Wahrscheinlichkeit zu einer (n,2n)-Reaktion, durch die Beryllium als zusätzliche Neutronenquelle die Kettenreaktion und damit die Neutronenökonomie positiv beeinflusst.

## 3.1.1 Forschungsreaktor Geesthacht (FRG-I und FRG-II)

Der auf dem Forschungsgelände Geesthacht betriebene Forschungsreaktor Geesthacht 1 (FRG-1) war ein Schwimmbadreaktor, vom Typ MTR. Der Reaktor war vom 23.10.1958 bis zum 28.06.2010 im Einsatz und wurde mit einer Leistung von 5 MW<sub>th</sub> bei einem Neutronenfluss von 1E+14 n/cm<sup>2</sup> betrieben. Der zweite Forschungsreaktor FRG-II war ebenfalls ein Schwimmbad-Reaktor vom Typ MTR mit einer thermischen Leistung von 15 MW<sub>th</sub> und wurde vom 16.03.1963 bis zum 17.01.1995 betrieben. Beide Reaktoren wurden zusammen in einer gemeinsamen Reaktorhalle, jedoch in unterschiedlichen Reaktorbecken betrieben /BRE 19/. Durch eine am 06.09.1967 ausgestellten Betriebsgenehmigung, können beide Reaktoren (FRG-1 und FRG-2) als eine Reaktoranlage angesehen werden.

Im FRG-1 war ein Beryllium-Metallblockreflektor zur Reflexion und Bündelung von Neutronen eingesetzt und ermöglichte eine Optimierung von Experimenten. Im Jahr 1986 erfolgte ein Genehmigungsbescheid für den Einbau von 40 Berylliumreflektoren in FRG-1 wodurch der Reaktorkern zunächst von 39 auf 26 Brennelemente reduziert werden konnte. Im Jahr 2000 erfolgte eine nukleare Umstellung des Forschungsreaktors und eine Reduzierung auf einen 3x4 Kompaktkern mit 12 Brennelementen (vgl. Abb. 3.1). Gegenstand dieses weiteren Genehmigungsbescheids war unter anderem der Einbau eines Beryllium-Blockreflektors. Der Kern des FRG-2 wurde 1980 neben einem Graphitreflektor auch mit einem Berylliumreflektor bestückt. Das verwendete Beryllium stammt aus US-amerikanischer Produktion und entspricht der Spezifikation S-200F(H) /KONEKT 2021/.



Abb. 3.1 Belegung der Kernpositionen des FRG-I nach der zweiten Kernreduzierung auf insgesamt 12 BE /SCH 98/

Insgesamt fielen am FRG-1 und FRG-2 681,2 kg berylliumhaltiger Abfälle an /HZB 21/, davon sind 554,1 kg elementares Beryllium und 127,1 kg Berylliumoxid. Im Reaktorbecken befinden sich 34 Berylliumoxidreflektoren von denen drei nicht bestrahlt wurden. Die Aktivität der Berylliumoxidreflektoren ist im Vergleich zu den Metallblockreflektoren vernachlässigbar und trägt nicht zur Gesamtaktivität bei /ISE 21/.

## 3.1.2 Rossendorfer Forschungsreaktor (RFR)

Der Rossendorfer Forschungsreaktor (RFR), ein Leichtwasser-moderierter Reaktor sowjetischer Bauart vom Typ WWR-S(M), wurde auf dem Gelände des Helmholtz-Zentrums Dresden Rossendorf (HZDR) betrieben. Der Reaktor wurde am 16.12.1957 mit einer Leistung von 2 MW<sub>th</sub> in Betrieb genommen. Die Leistung konnte mit der Umrüstung von low-enriched Uranium (LEU) auf medium-enriched Uranium (MEU) Brennelementen und nach dem Einbau eines Berylliumreflektors bis zum Jahr 1968 sukzessive auf 10 MW<sub>th</sub> erhöht werden. Der RFR wurde bis zum 27.06.1991 betrieben. Die Entlassung aus dem AtG wurde am 21.10.2018 durch den Betreiber beantragt /BRE 19/.

Der Reaktorkern bestand aus einem Spaltzonenkorb (Aluminium-Zylinder) auf einer 40 mm dicken Grundplatte. Der Spaltzonenkorb weist einen außenliegenden festen

Berylliumreflektor mit Bohrungen für Bestrahlungskanäle und eine hexagonale Innenzone mit insgesamt 217 hexagonalen Gitterplätzen für Brennelemente, Absorberstabführungskanäle, feste Absorber, Berylliumreflektorelemente und vertikale Bestrahlungskanäle auf /BUN 97/. In Abb. 3.2 ist der Querschnitt des Reaktorkerns schematisch dargestellt. Die Beryllium-Reflektorelemente entsprechen in ihrer äußeren Form den Brennelementen. Im äußeren Bereich konnten einfache als auch dreifache Berylliumelemente angeordnet werden, um die Abmessungen des festen äußeren Berylliumreflektors und damit seine Reflektorleistung zu variieren.



#### Abb. 3.2 Kernaufbau des RFR mit Kernbeladung /BUN 97/

Insgesamt liegen beim RFR aus dem Normalbetrieb des Reaktors 368,26 kg bestrahltes Beryllium vor. Das bestrahlte Beryllium ist auf zwei 580-Liter Fässer aufgeteilt welche im Zwischenlager für radioaktive Abfälle Rossendorf (ZLR) lagern. Im ersten Fass befinden sich 193,05 kg bestrahltes Beryllium und 14,95 kg einer AlMgSi3 Legierung. Im zweiten Fass ist Beryllium mit einer Masse von 175,21 kg und einem Massenanteil von 75,18 % eingelagert /HZB 21/.

## 3.1.3 BER-II

Der BER-II war ein Schwimmbadreaktor mit MTR-Brennelementen vom Typ TRIGA. Ursprünglich für eine Leistung von 5 MW<sub>th</sub> konzipiert, erfolgte von 1985-1989 der Ausbau auf 10 MW<sub>th</sub> /HZB 15/. Im Zuge des Umbaus wurde der Reaktorkern verkleinert und mit einer inneren und äußeren Beryllium-Reflektorschicht ummantelt. Der rechteckige Mantel aus massiven Berylliumblöcken wirkt als Reflektor durch welche die austretenden Neutronen zurückgestreut werden. Mit der Verkleinerung des Kerns wurde eine Verkleinerung der Kerngitterplatte von 60 auf 42 Positionen erwirkt. Auf den 42 Positionen der Kerngitterplatte konnten sowohl MTR-Brennelemente, als auch Kontrollelemente bzw. Reflektorelemente beliebig angeordnet werden /HZB 21/.

Das im BER-II eingesetzte Beryllium ist vom Typ S-200F(H) mit einer Korngröße von 6,9 bis 9,8 µm und wurde vom US-Hersteller Brush Wellman (MATERION) bezogen /HZB 21/. Da Modellrechnungen eine Versprödung der inneren Reflektorschicht vorausgesagt hatten, wurde die innere Schicht im Jahr 2006 ausgetauscht. Das ausgediente Beryllium wird in einem MOSAIK-Behälter am BER-II gelagert. In /HZB 21/ wurde bei der Beryllium-Bestandsaufnahme des BER-II eine Gesamtmasse von 1.758,8 kg ermittelt. Die Massen der inneren Reflektorschichten welche von 1991 - 2006 bzw. von 2006 - 2019 im Einsatz waren, betragen jeweils 611 kg. Die Masse der äußeren Reflektorschicht beträgt 997,4 kg. Darüber hinaus kamen 16 Beryllium-Reflektorelemente mit einer Gesamtmasse von 118,4 kg sowie Beryllium-Reflektor-Stopfen mit einer Gesamtmasse von 29,4 kg sowie Berylliumtabletten in den Zugankern mit einer Gesamtmasse von 2,4 kg zum Einsatz /HZB 21/. Das Gesamtvolumen des anfallenden Berylliums be-trägt 9,5E-01 m<sup>3</sup>.

#### 3.1.4 FRM-I

Der FRM-I war ein Schwimmbadreaktor amerikanischer Bauart mit einer thermischen Leistung von 4 MW<sub>th</sub> und einem Neutronenfluss von 7E+13 n/cm<sup>2</sup>. Die Anlage ging im Jahr 1957 mit LEU-Brennelementen und einer Leistung von zunächst 1 MW<sub>th</sub> in Betrieb. Die LEU-Brennelemente wurden 1960 auf HEU-Brennelemente umgestellt. Zusätzlich wurde die thermische Leistung des Reaktors schrittweise auf 4 MW<sub>th</sub> im Jahr 1968 erhöht. Im Jahr 1978 wurden 24 berylliumhaltige Reflektorelemente verbaut. Diese bestehen aus einem quaderförmigen metallischen Berylliumblock mit jeweils einem Kopf- und Fußstück aus AIMg<sub>3</sub> und waren bis Juli 2000 im Einsatz. Zwei unterschiedliche Typen (Typ I und Typ II) von Reflektor Elementen wurden im FRM-I verbaut, welche sich einzig dadurch unterscheiden, dass Typ II eine seitliche Aussparung hat (vgl. Abb. 3.3). Insgesamt liegen 168 kg bestrahltes Be vor /LIE 10/.



Abb. 3.3 Skizze der beiden Reflektortypen aus Beryllium, welche im FRM-I verbaut waren /LIE 10/

Um Kosten zu sparen, wurde die Konditionierung der metallischen Beryllium-Reflektorelemente in einem Behälter angestrebt. Ausgehend von der Aktivitätsberechnung wurde ein zulassungspflichtiger Typ B(U) Behälter der Bauart Mosaik II-15 EI mit einer zusätzlichen Blei-Abschirmung gewählt. Zurzeit lagern die 24 Beryllium-Reflektorelemente auf dem Gelände des FRM-I /HZB 21/.

## 3.2 Verwendung als Moderator

Zu den am häufigsten eingesetzten Neutronen-Moderatormaterialien gehören unter anderem leichtes Wasser (H<sub>2</sub>O), schweres Wasser (D<sub>2</sub>O), Grafit, Beryllium (Be) bzw. Berylliumoxid. Gute Eigenschaften eines Neutronenmoderators zeichnen sich dabei durch einen kleinen thermischen Neutronenabsorptionsquerschnitt, eine geringe Abbremsleistung und ein hohes Moderationsverhältnis aus. Die Eigenschaften einer Reihe von Moderator-Materialien sind in Tab. 3.1 aufgelistet. Da Beryllium bzw. Berylliumoxid nur eine geringe Tendenz dazu haben, Neutronen zu absorbieren eignen sich beide Materialien sehr gut als Moderatormaterialien in /HEC73/. Das bessere Moderationsvermögen gegenüber anderen Materialien wie Grafit ergibt sich aus einer höheren Dichte, einem höheren Streuquerschnitt und höheren Energieverlusten pro Neutronenstoß.

	Neutronen Absorbtions- querschnitt [1/barn]	Abbremsvermö- gen [1/cm]	Moderations- querschnitt /SNE 22/, /LI 2021/
H <sub>2</sub> O	H: 0,333, O: 0,00019	1,35-2,63	62-72
D <sub>2</sub> O	D: 0,00052, O: 0,00019	0,188-0,3700	2000-12000
Ве	Be: 0,0076	0,154-0,195	145-207,3/SNE 22/
BeO	Be: 0,0076, O: 0,00019	0,13-0,151	180-266,9
Grafit	C: 0,0035	0,064-0,079	165-249,9

 Tab. 3.1
 Eigenschaften von Neutronenmoderator-Materialien /HOU 23/

#### 3.2.1 FRM-II

Der modernste in Deutschland betriebene Forschungsreaktor ist die Hochflussneutronenquelle FRM-II in Garching. Hierbei handelt es sich um einen leichtwassergekühlten Schwimmbadreaktor mit einem Kompaktkern, beladen mit hochangereichertem Uran (HEU) als Brennstoff und schwerem Wasser als Moderator /BRE 19/. Die Anlage weist einen Neutronenfluss von 8E+14 n/cm<sup>2</sup> auf, was sie bei einer thermischen Leistung von 20 MW<sub>th</sub> zu einer der flussstärksten Neutronenquellen weltweit macht. Die Inbetriebnahme des FRM-II erfolgte am 02.05.2003 und am 02.03.2004 wurde erstmals Kritikalität erreicht. Das Brennelement besteht im FRM-II aus einer zylinderförmigen Anordnung von gebogenen Brennstoffplatten mit einem Außendurchmesser von 24,5 cm, einem Innendurchmesser von 13 cm und einer Höhe von 70 cm (vgl. Abb. 3.4). Zur Kühlung wird das Brennelement zentral von Wasser durchflossen. Im Zentrum des Brennelements befindet sich ein beweglicher Regelstab, der aus einem Hafnium-Absorberteil und einem unten abschließenden Beryllium-Moderator besteht. Zum Anfahren und zur Regelung des Abbrands wird der Regelstab nach oben gezogen, wobei der unterhalb des Absorbers angebrachte Beryllium-Innenmoderator anstelle des Absorbers in die Mitte des Brennelementes gelangt. Zur Abschaltung des Reaktors wird der Regelstab in den Kern eingefahren, womit der Moderator aus dem zentralen Kanal entfernt wird und der Absorber diesen Platz einnimmt. Der Berylliumabschnitt aus dem Innenmoderator des Regelstabes weist eine Masse von ca. 15 kg Beryllium auf. Der Regelstab samt Innenmoderator muss alle fünf bis sieben Jahre ausgetauscht werden /TUM 93/. Die bis zum jetzigen Zeitpunkt eingesetzte Berylliummasse des Moderators beläuft sich demzufolge auf ca. 60 kg.



Abb. 3.4 Querschnitt durch das Brennelement, den Regelstab und das Zentralkanalrohr des FRM-II /TUM 93/

## 3.3 Verwendung in Neutronenquellen

In Leistungsreaktoren werden sowohl Primär- als auch Sekundärquellen eingesetzt, welche die Aufgabe haben, das Anfahren des Reaktors aus dem unterkritischen Zustand sicherzustellen. Es lassen sich dabei drei unterschiedliche Typen von Neutronenquellen klassifizieren:

- Alpha-Beryllium-Neutronenquellen: Mischung aus einem Alphastrahler und Beryllium mit einem großen Wirkungsquerschnitt f
  ür eine (α,n)-Reaktion
- Gamma-Beryllium-Neutronenquellen: Mischung aus einem Gammastrahler und Beryllium, mit einem großen Wirkungsquerschnitt f
  ür eine (γ,n)-Reaktion
- Kombiquellen: Sekundäre Sb/Be Quellen kombiniert mit natürlichen Neutronenemittern (meistens Cf-252)

Die im Betrieb der Leistungs- und Forschungsreaktoren am häufigsten eingesetzten Alpha-Beryllium und Gamma-Beryllium-Neutronenquellen werden im folgenden Abschnitt genauer beschrieben.

#### Primärneutronenquellen

Primärneutronenguellen vom Typ ( $\alpha$ ,n) bestehen im Gegensatz zu Sekundärneutronenquellen aus einem Alphastrahler, der mit metallischem Beryllium oder Berylliumoxid vermischt ist. Die emittierte Alphastrahlung ruft im Beryllium eine ( $\alpha$ ,n)-Reaktion hervor, wobei ein Neutron emittiert wird. Gängige Alpha-Emitter für ( $\alpha$ ,n)-Neutronenquellen sind Am-241, Cm-242, Po-210, Ra-226, Ac-227, Th-228 und Pu-238/239. Alpha-Beryllium-Neutronenquellen, zum Anfahren von Leistungsreaktoren, produzieren üblicherweise 5E+08 Neutronen pro Sekunde. Das Energiespektrum der freiwerdenden Neutronen liegt im MeV-Bereich und hängt im Einzelnen von den verwendeten Nukliden und Materialien ab. Die am häufigsten eingesetzten ( $\alpha$ ,n) Neutronenquellen sind Pu-Be Quellen /KRI 05/. Diese werden vor allem als Quellen für schnelle Neutronen eingesetzt. Bei Alpha-Beryllium-Quellen mit anderen Radionukliden wie bspw. Ra-226 entsteht nach dem Neutronenbeschuss eine signifikante Menge an Gamma-Strahlung. Außerdem wandelt sich Ra-226 bei der Bestrahlung in Ac-227 und Th-228, zwei weitere α-Emitter. Die Produktion der Neutronen durch Beryllium wird fortan also nicht mehr nur durch die α-Strahlung der Radium Nuklide, sondern auch durch Ac-227 und Th-228 angeregt. Dies kann den Neutronenertrag um einen Faktor 50 steigern. Die Hüllrohre der Neutronenquellen bestehen aus austenitischem Edelstahl, welcher besonders resistent gegenüber strahlungsinduzierter Spannungs-Riss-Korrosion ist. Neben der Wärmeproduktion in den Primärquellen über die α-Zerfallswärme, entsteht auch γ-Zerfallswärme der Hüllrohrund Quellmaterialien. Besonders die Heliumbildung in den Quellen in Folge der Neutronenbestrahlung führt zum Aufbau eines Innendruckes, welcher über längere Zeiträume zur Rissbildung führen kann. Gewöhnlicherweise werden Primärquellen nach einer ersten Brennstoffkampagne, d. h. nach wenigen Monaten aus dem Reaktor entfernt. Der Grund dafür liegt darin, dass sich die chemische Zusammensetzung der Isotope in der Primärquelle durch den thermischen Neutronenfluss verändert und die Lebensdauer der Quellen dadurch vermindert wird.

#### Sekundärneutronenquellen

Die Sekundärquellen brauchen im Vergleich zu den Primärquellen mindestens einen Reaktorzyklus um ausreichend aktiviert zu werden und eine suffiziente Anzahl an Neutronen im folgenden Zyklus zu generieren. Bei den Sekundärquellen erfolgt zuerst eine Aktivierung des Antimons mit Hilfe von Neutronen, welches γ-Quanten erzeugt, die in Wechselwirkung mit Beryllium Neutronen produzieren. Dabei wird auf verschiedene Arten Helium gebildet (vgl. Kapitel 2.4). Im Reaktor produziert eine Antimon-Beryllium Neutronenquelle nahezu monochromatische Neutronen mit einem dominanten Peak bei einer Energie von 23 keV. Im Vergleich zu Primärquellen produzieren die Antimon-Beryllium Quellen eine hohe Anzahl an Photonen, was bzgl. des Strahlenschutzes zu Schwierigkeiten führen kann. Aktiviertes Antimon ist ein starker Gamma-Strahler mit einer Halbwertszeit von 60 Tagen. Außerdem ist der Ertrag an Neutronen im Vergleich zu ( $\alpha$ , n) Quellen deutlich geringer. Die Sekundär-Neutronenquellen aus Antimon und Beryllium sind im Vergleich zu Alpha Neutronenquellen relativ voluminös, wodurch sie sich eher für den Einsatz in Leistungsreaktoren eignen. Für kleinere Reaktoren bspw. in Atom-U-Booten bieten sie sich nicht an.

Ein Problem der Sekundärquellen im Leistungsbetrieb ist ihre thermische Stabilität. In Folge von elastischen und inelastischen Neutronenreaktionen und Absorbtionsreaktionen der Gammastrahlen kommt es zu einer Selbsterhitzung der Sekundärneutronenquellen im Reaktorbetrieb /VAN 83/. Ein weiteres Problem ist das Anschwellen der Komponenten. Durch den Neutronenbeschuss wird neben Tritium auch Helium gebildet, welches sich in der Kristallstruktur anlagert und für ein Anschwellen und einen erhöhten Innendruck in den Hüllrohren sorgt. Dies führt zu einem Aufplatzen der Edelstahlhülle. Aus diesem Grund müssen die Quellen in einem periodischem Zeitfenster ausgetauscht werden /TRA 05/. Laut /SNE 05/ ist eine Neutronenquelle dabei insgesamt für ungefähr neun Reaktorzyklen im Einsatz, bevor sie ausgetauscht werden muss. Die Einsatzzeiten der Sekundärquellen betragen laut /ARE 14/ ungefähr fünf bis sieben Jahre. Dadurch, dass Antimon ein starker Gammastrahler ist, muss eine Kontamination des Kühlmittels mit den Strukturmaterialien nach Möglichkeit vermieden werden.

Zahlreiche Kernkraftwerke, vor allem Druckwasserreaktoren und Siedewasserreaktoren, nutzen Antimon-Beryllium-Quellen als Sekundärquellen zum Anfahren des Reaktors nach einem Brennelementwechsel. Für einen Druckwasserreaktor der 1.300 MW-Klasse werden zwei Brennelement-Positionen im Kern mit entsprechenden Sekundärquellen belegt. Die Quellen haben die Form eines Steuerelementes, von dem 12 Stabpositionen mit entsprechenden Quellstäben belegt sind. Die eigentliche Quelle besteht aus einer 1.000 mm hohen Säule, aufgebaut aus 100 Sb-Be Pellets. Das Sb-Be Material besteht aus einer gesinterten 50-50 Vol. % Mischung von Antimon und Beryllium mit einer Dichte von 3,4 g/cm<sup>3</sup>. Das gesamte System, bestehend aus einer Sb-Be Säule und einer unteren und oberer Stützsäule, ist von einem Edelstahl-Hüllrohr umgeben, welches an seinem oberen Ende mit der Aufnahme-Spinne für Quellen und Drosselfinger verschraubt ist (vgl. Abb. 3.5).



Abb. 3.5 Diagramm einer Standard Sekundär-Neutronenquelle /HAW 94/

## 3.4 Mengengerüst berylliumhaltiger Abfälle

## 3.4.1 Mengen der Moderator- und Reflektormaterialien

In Deutschland wurde Beryllium in sechs Forschungsreaktoren eingesetzt. Die Forschungsreaktoren sind zum jetzigen Zeitpunkt entweder abgeschaltet (BER-II, FRG-1/2), befinden sich in Stilllegung (FRM) bzw. sind aus dem Geltungsbereich des AtG entlassen (RFR). Der FRM-II befindet sich als einziger Forschungsreaktor deutschlandweit noch in Betrieb. Die durch den Einsatz als Moderator bzw. Reflektor in deutschen Forschungsreaktoren anfallenden Beryllium-Mengen sind in Tab. 3.2 anlagenspezifisch aufgelistet. Hieraus ergibt sich eine Gesamtmenge von ca. 3.036,26 kg.
Tab. 3.2Übersicht über Mengengerüst der in Deutschland in Forschungsreaktoren<br/>eingesetzten Beryllium als Neutronenreflektor bzw. -moderator

Institution Anlage			Be-Menge [kg]	Referenz
Forschungszentrum Rossendorf	RFR	Abschaltung 1991 und Entlassung aus AtG 2019	368,26	/HZB 21/
GKSS-Forschungs-	FRG 1	Abschaltung 28.06.2010	681,2	/HZB 21/
Zendum	FRG 2	Antrag auf Stilllegung gestellt		
Helmholtz Zentrum Berlin	BER-II	Abschaltung 11.12.2019 Antrag auf Stilllegung gestellt	1.758,8	/HZB 21/
Technische Universi-	FRM	28.07.2000 in Stilllegung	168	/LIE 10/
tat munchen	FRM II	In Betrieb	ca. 60	/TUM 93/
Summe			3.036,26	

## 3.4.2 Mengen der Primär- und Sekundärquellen

In /HAW 94/ sind amerikanische Typen von Sekundärquellen für Druckwasserreaktoren (DWR) in ihrer Zusammensetzung beschrieben. Die Gesamtmasse pro Neutronenquellen-Element wird in einem Bereich von 91-226 g angegeben. Die Berylliummasse der Primärquell-Elemente wird mit 91 g angegeben. Laut /NEE 97/ sind die Neutronenquellen-Elemente an zwei Positionen im Kern angebracht. Geht man davon aus, dass die Gesamtlaufzeit der deutschen Reaktoren im Leistungsbetrieb insgesamt 707 Jahre beträgt (506 für die DWR und 179 Jahre für SWR) und die Quellen alle 5-7 Jahre ausgetauscht wurden so kann die Berylliummasse aus den Sekundärquellen konservativ mit 64 kg abgeschätzt werden. Dies deckt sich in etwa mit den Angaben aus /BUC 05/ welche die Gesamtmasse an Beryllium aus dem Betrieb der Leistungsreaktoren mit 54,41 kg für elementare Beryllium und mit 1,25 kg für Berylliumoxid angeben.

# 4 Einhaltung der Endlagerungsbedingungen Konrad für bestrahltes Beryllium

Für die Endlagerung berylliumhaltiger, bestrahlter Komponenten im Endlager Konrad müssen eine Reihe stofflicher Rahmenbedingungen eingehalten werden. Zusätzlich dazu gibt es eine Reihe radiologischer Anforderungen, die von den Abfällen aber auch von den Abfallgebinden eingehalten werden müssen /BFS 15/. Auf die Endlagerfähigkeit der bestrahlten Berylliumkomponenten, die anhand der Vorgaben der EBK geprüft wurden, soll im folgenden Kapitel näher eingegangen werden. Zuallererst soll jedoch auf die Konditionierungsverfahren eingegangen werden, die für die Endlagerung von Beryllium in Frage kommen.

## 4.1 Konditionierungsverfahren

Um die Annahmebedingungen für die Endlagerung einzuhalten, gibt es verschiedene Verfahren zur Konditionierung radioaktiver Abfälle. Dies umfasst die Behandlung der Abfälle aber auch die anschließende Verpackung in entsprechend zugelassenen Behältern. Da es bei der Konditionierung bestrahlter Berylliumabfälle noch keine etablierten Entsorgungsrouten gibt und sich ein Großteil der Konditionierungsoptionen in der Entwicklung befinden bzw. sich bisher nur im Labormaßstab realisieren lassen, ist eine Beurteilung der Verfahren schwierig. Deswegen soll auf eine Einschätzung hinsichtlich der Eignung einzelner Konditionierungsverfahren verzichtet werden.

#### 4.1.1 Bituminieren

Der Prozess des Bituminierens wird vielfach bei der Konditionierung von schwach- und mittelaktiven Schlämmen, Verdampferkonzentraten und Ionenaustauscherharzen angewendet. Bei der Konditionierung von Beryllium kam der Prozess bisher nicht zum Einsatz, was unter anderem mit seiner technischen Komplexität zu tun hat. Problematisch bei der Konditionierung von Beryllium ist, dass es sich bei den Komponenten um große Bauteile handelt. Liegt das zu konditionierende Material in Form solch großer Komponenten vor, härtet heißes Bitumen, sobald es in Kontakt mit kalten Metallstücken kommt, zu schnell aus. Dadurch entsteht das Problem, dass Bitumen die Zwischenräume zwischen den Berylliumteilen nicht vollständig ausfüllt /DRU 03/. Dies ist vor allem hinsichtlich einer störfallfesten Verpackung von Bedeutung, bei der ausgeschlossen werden muss, dass sich im Zuge der Konditionierung Hohlräume ausbilden. Weiterhin problematisch ist, dass in Folge des Bituminierens Korrosionsprozesse und eine damit verbundene Gasbildung auftreten können. Vorteilhaft ist, dass sich keine hohen pH-Werte ausbilden, wodurch eine niedrigere Korrosionsrate zu erwarten ist als bspw. bei der Zementierung. Bitumen besitzt jedoch ein geringeres Gewicht als bspw. Zement oder Mörtel, was bei der Einhaltung des zulässigen Gesamtgewichts pro Abfallgebinde von Vorteil ist.

## 4.1.2 Verglasung

Die Verglasung wird als Konditionierung von hochradioaktiven Abfällen, die aus der Wiederaufarbeitung bestrahlter Brennstoffe resultieren, angewendet. Der Prozess der Verglasung setzt sich aus den Schritten Kalzinierung, Schmelzen, Glasguss und der Nachbehandlung der Gussformen zusammen. Beim Kalzinierer handelt es sich um ein elektrisch beheizten Drehrohrofen, in dem die hochradioaktiven Abfälle kontinuierlich verdampft getrocknet und denitriert werden. Im Anschluss fällt das trockene Pulver in einen induktiv beheizten Schmelzofen, wo es mit inaktiver Glasfritte vermengt und aufgeschmolzen wird. Hier wird die Mischung erhitzt und dabei durch Zugabe von Argon oder Luft durchmischt. Bei Erreichen einer Temperatur von 1150 °C fließt der Schmelzofeninhalt in eine darunter platzierte Kokille. Laut /DRU 03/ kann der Prozess der Verglasung auch auf berylliumhaltige Abfälle angewandt werden. Beryllium könnte in Salpetersäure aufgelöst, anschließend kalziniert und das so erhaltene Berylliumoxid mit geschmolzenem Glas vermengt werden. Die Verwendung von Glas als immobilisierende Matrix für die geologische Endlagerung von hochradioaktiven Abfällen in Tonschichten wurde unter anderem am SCK-CEN umfassend untersucht /ISE 99/. Hierbei konnte festgestellt werden, dass das Langzeitverhalten von Beryllium, immobilisiert in einer Glasmatrix, generell von Vorteil ist, da Beryllium während des Verglasungsprozesses vollständig oxidiert. Dadurch können Korrosionsprozesse und eine damit einhergehende Wasserstoffproduktion während der geologischen Endlagerung nahezu ausgeschlossen werden. Der verglaste Abfall ist äußerst beständig und weist nur geringe Korrosionsraten in der Größenordnung von ungefähr 1 µm/Jahr auf /DRU 03/.

#### 4.1.3 Phosphatierung

Phosphatkeramiken werden am IPN-Orsay in Frankreich als Materialien zur Konditionierung von Uran, Plutonium und Neptunium untersucht /DRU 03/. Bei der Phosphatierung handelt es sich um ein Nassverfahren, bei dem gelöste Stoffe mit Phosphorsäure vermischt, verdampft und anschließend bei einem Druck von 300-800 MPa und einer Temperatur von 1250 °C gesintert werden. Phosphat-Matrizen, welche Radionuklide immobilisieren, weisen besonders niedrige Korrosionsraten von nur etwa 0,003 µm/Jahr auf. Zum Verfahren gibt es zurzeit jedoch nur Versuche im Labormaßstab und eine Realisierung eines solchen Verfahrens im industriellen Maßstab innerhalb der nächsten Jahre ist fraglich /DRU 03/.

## 4.1.4 Konditionierung mit Wachs

In /INL 05/ wurde die Möglichkeiten der Konditionierung berylliumhaltiger Komponenten mit einem auf Paraffin basierenden Mörtel (WAXFIX) im Hinblick auf die Langzeitbeständigkeit untersucht. Bei dem Verfahren wird das Vergussmaterial injiziert und die Abfälle dadurch verfestigt. So soll eine Wasserundurchlässigkeit der Komponenten erzeugt werden. In /INL 05/ wurden für die Beurteilung des Verfahrens bestrahlte Proben aus Berylliumblöcken des Advanced Test Reactors experimentell untersucht. Die Ergebnisse konnten zeigen, dass das Konditionierungsverfahren durch strahleninduzierte Schädigung nicht signifikant beeinflusst wird und mehrere hundert Jahre stabil ist. Auch die durch Strahlung induzierte Wasserstoffentwicklung hat keine negativen Effekte auf die strukturelle Integrität des Mörtels. Eine Degradation durch Mikroorganismen ist jedoch möglich. Modellrechnungen hierzu ergaben, dass eine 0,46 m dicke Paraffin-Schicht, voraussichtlich nach einer Zeit von 1.000 bis 3.600 Jahren vollständig korrodiert. Da das Konditionieren mit WAXFIX bisher nur in Experimenten erprobt wurde, ist nicht abschätzbar, ob und wann es im industriellen Maßstab für die Konditionierung berylliumhaltiger Komponenten eingesetzt werden kann.

## 4.1.5 Zementierung

Die Zementierung ist eine bewährte Methode zur Behandlung schwach- und mittelaktiver radioaktiver Abfälle bei der diese in einem Zementbett fixiert werden. Bei dem für radioaktive Abfälle üblicherweise genutzten Zement handelt es sich um sog. Standard-Portlandzement (OPC). Häufig werden jedoch auch Zusatzstoffe wie bspw. Flugasche und Hochofenschlacke hinzugefügt, um die Eigenschaften der Zementmatrix zu verbessern. Das Zementieren ist ein vergleichsweise, unkompliziertes und kosteneffizientes Verfahren. Bei der Behandlung berylliumhaltiger Abfälle ist jedoch der sehr hohe pH-Wert der Zementmatrix der üblicherweise in einer Größenordnung von ungefähr 12,5 liegt problematisch, da es dadurch zu signifikanten Korrosionsreaktionen kommt /DRU 19/. Dabei wird Wasserstoff freigesetzt, was wiederum den Austritt von Radionukliden begünstigt und die Endlagersicherheit gefährdet. In letzter Zeit gab es jedoch Ansätze, die Konditionierungsmöglichkeiten bestrahlter berylliumhaltiger Abfälle in Zement neu zu untersuchen. In /BOU 22/ wurde für fünf unterschiedliche Zementtypen ermittelt , inwieweit sich diese für die Konditionierung von bestrahltem Beryllium einsetzen lassen. Neben aktiviertem Schlackenzement, Portlandzement und Calciumsulfoaluminatzement wurden auch Magnesiumphosphatzement und Brushit-Zement untersucht. Dadurch, dass nur wenig experimentelle Daten zum Korrosionsverhalten von Beryllium vorliegen, wurde außerdem die Reaktivität in Wasser in Abhängigkeit vom pH-Wert untersucht.

Basierend auf Pourbaix-Diagrammen, welche für Beryllium in den 1960iger Jahren erstellt wurden, galt für berylliumhaltige Abfälle, dass diese nicht in stark alkalischen Lösungen konditioniert werden können. Das würde aktivierten Schlackenzement, Portlandzement und Calciumsulfoaluminatzement als Konditionierungsmaterialien ausschließen. Bezüglich des pH-Wertes, ist Magnesiumphosphatzement als neutrales Medium die einzige Zementsorte, welche eine sichere Konditionierung berylliumhaltiger Abfälle ermöglicht. In /BOU 22/ wurden die Pourbaix-Diagramme für Beryllium neu berechnet. Hierbei zeigte sich, dass Beryllium auch in neutralen bis stark alkalischen Lösungen durchaus stabil ist. Auch andere aktuelle Arbeiten /BUK 24/, die das Korrosionsverhalten untersuchen, konnten zeigen, dass bestrahltes Beryllium bis in einen hohen pH-Bereich von ungefähr 13,5 stabil ist. Beryllium wird vor allem durch die Hydroxid-Festphase Be(OH)<sub>2</sub> in OPC, CSA und MPC passiviert. Korrosion ist nur im Brushit-Zement und in der aktivierten Schlacke signifikant hoch und schließt diese als Konditionierungsmaterialien aus /BOU 22/. Nuklearberyllium kann also durchaus in Portlandzement, Calciumsulfoaluminatzement oder Magnesiumphosphatzement konditioniert werden. In Korrosionsexperimenten konnte festgestellt werden, dass für Magnesiumphosphatzement Korrosionsreaktionen während der ersten Tage auftraten, während Beryllium in OPC für den gesamten untersuchten Zeitraum stark passiviert war. Laut /BOU 22/ ist es also durchaus möglich, Beryllium mit Hilfe ausgewählter Betonsorten zu konditionieren, ohne dass es dabei zu einer beschleunigten Korrosion bzw. zu einer erhöhten Wasserstoffbildung kommt. Problematisch an der Konditionierung mit Beton ist, dass es sich dabei um ein schweres Vergussmaterial handelt und ein Überschreiten der Masse für einzelne Gebinde geprüft werden muss.

#### 4.1.6 Verpackung ohne Konditionierungsmatrix

In Belgien wurde am SCK der Ansatz verfolgt, Beryllium ohne Konditionierungsmatrix direkt einzulagern. Das bestrahlte Beryllium wurde hier in versiegelten Behältern mit trockenem Sand zur Auffüllung der Zwischenräume und einem äußeren Behälter zur Abschirmung gelagert. Die Gebinde wurden in einem belüfteten Raum gelagert, um die Ansammlung von Tritium durch Diffusion im Gebinde zu minimieren. Die direkte Endlagerung ist die kostengünstigste Methode und bietet den Vorteil einer einfachen Wiedergewinnung des Berylliums, falls sich ein wirtschaftlicher Nutzen ergeben sollte. Die Nachteile dieser Methode sind die gleichen wie bei der Einkapselung in Zement oder Bitumen. Es kommt zur Wasserstoffentwicklung durch Korrosion und die Toxizität des Berylliummetalls erschwert die Handhabung der Abfälle.

## 4.2 Stoffliche Annahmebedingungen

Die Menge an nichtradioaktiven schädlichen Stoffen, die im Endlager Konrad eingelagert werden dürfen, wird im Planfeststellungsbeschluss Konrad (Anhang 4 - Gehobene wasserrechtliche Erlaubnis zur Endlagerung von radioaktiven Abfällen im Endlager Konrad) bestimmt. Darin wird die Einlagerung von Stoffen, die gemäß Liste I und II der Grundwasserverordnung bzw. nach § 137 des Niedersächsischen Wassergesetzes das oberflächennahe Grundwasser schädlich verändern können, geregelt. Die Verordnung regelt bspw. die Einlagerung radioaktiver Abfälle mit den darin enthaltenen nichtradioaktiven schädlichen Stoffen unter bestimmten Beschränkungen und Nebenbestimmungen im Endlager Konrad. Zu den Nebenbestimmungen zählt unter anderem eine fortlaufende Überwachung, Erfassung und Bilanzierung der in den Abfallgebinden enthaltenen, nichtradioaktiven schädlichen Stoffe.

Für die Beschreibung der stofflichen Zusammensetzung der für das Endlager Konrad bestimmten Abfälle wird mit einer sog. Stoffliste gearbeitet. Die Stoffliste enthält Angaben über die zur Einlagerung vorgesehenen radioaktiven Abfälle mit vernachlässigbarer Wärmeentwicklung einschließlich der dafür vorgesehenen Fixierungsmittel, Materialien zum Vergießen von Resthohlräumen und Behälterwerkstoffen. Außerdem enthält die Stoffliste neben einer eindeutigen Stoffbezeichnung auch Beschreibungs- und Deklarationsschwellenwerte zur Erfassung und Bilanzierung der schädlichen Stoffbestandteile. Die Stoffliste weist jedem endlagerbaren Stoff einen bestimmten Code zur eindeutigen Bestimmung zu und ermöglicht eine Beschreibung der im Abfall enthaltenen Stoffbestandteile auf Grundlage hierarchischer Ebenen /BFS 15/.

Um die Zusammensetzung der Abfallgebinde zu erfassen, dabei jedoch eine erneute stoffliche Charakterisierung für jede Abfallcharge oder jedes Abfallgebinde zu vermeiden, wird die stoffliche Zusammensetzung durch Stoffvektoren angegeben. Dies sind in ihrer prozentualen Zusammensetzung abfallspezifisch definierte Stoffgemische anhand derer sich Abfallströme beschreiben lassen. Stoffvektoren setzen sich aus Bausteinen, Werkstoffen oder Verbindungen zusammen, die wiederum aus chemischen Verbindungen und Elementen bestehen. Es ist dabei erforderlich, dass alle im Stoffvektor als Bestandteil eines Abfallstroms genannten Stoffe bereits in der Stoffliste vorhanden sind. Die Angaben zur Zusammensetzung eines Abfallstromes kann dadurch auf die Ebene, der im Planfeststellungsbeschluss Konrad begrenzten Stoffe und Stoffgruppen heruntergebrochen werden. Die zur Beschreibung der Zusammensetzung notwendigen Substanzen sind in einem Verzeichnis gespeichert, welches zudem notwendige Angaben für die Erfassung und Bilanzierung von schädlichen Substanzen beinhaltet. Das Verzeichnis ist Bestandteil einer zentral verwalteten, abfallspezifischen Datenbank und umfasst alle deklarationspflichtigen Komponenten der zur Endlagerung bestimmten Abfälle. Bei den Angaben zur stofflichen Zusammensetzung unter Verwendung der Stoffvektoren gemäß der Stoffliste wird durch Deklarationsschwellen- bzw. Beschreibungsschwellenwerte das zu bilanzierende Inventar der nichtradioaktiven schädlichen Stoffe erfasst.

#### 4.2.1 Beschreibungs- und Deklarationsschwellenwert

Der Deklarationsschwellenwert (DSW) gibt den Massenanteil eines nichtradioaktiven schädlichen Stoffes an, bei dessen Überschreitung nachteilige Veränderungen im oberflächennahen Grundwasser nicht ausgeschlossen werden können. Bei einer Überschreitung des DSW müssen die Massenanteile bilanziert werden und dürfen die im Planfeststellungsbeschluss Konrad angegebenen Gesamtmassen nicht überschreiten. In der Stoffliste sind die DSW für Stoffe, chemische Verbindungen und Materialien zusammengefasst /BFS 15/.

Der Beschreibungsschellenwert (BSW) gibt den Massenanteil eines nicht radioaktiven schädlichen Stoffes im Abfallprodukt an, bei dessen Überschreitung ein Abfallverursacher verpflichtet ist, den Stoff als Teil eines Abfallgebindes namentlich und mit Mengenangabe in der Beschreibung des Abfallgebindes zu führen /BFS 15/. Mit dem BSW wird also die Genauigkeit festgelegt, mit der die schädlichen Stoffe in einem Abfallgebinde aufgeschlüsselt werden müssen. Für Neuabfälle beträgt der BSW in der Regel 1 % der Abfallbruttogebindemasse. Für Altabfälle wird der BSW gewöhnlicherweise mit einem Faktor fünf multipliziert, liegt damit also deutlich höher. So soll die stoffliche Zusammensetzung von Altabfälle nach einem "best-estimate" abgeschätzt werden, ohne durch eine erneute Überprüfung eine unverhältnismäßige Erhöhung der Strahlenbelastung für das kontrollierende Personal zu verursachen. Stoffe, die ein großes Gefährdungspotential für die Qualität des oberflächennahen Trinkwassers haben, können jedoch auch deutlich geringere Beschreibungsschwellenwerte haben. Gilt für einen Stoff bspw. ein Beschreibungsschwellenwert von weniger als 1 %, so gilt derselbe Wert auch für den Deklarationsschwellenwert /BFS 15/. Generell gilt, dass für diejenigen Stoffe, die in der Regel nicht in schädlicher Form vorliegen, Deklarationsschwellenwerte von > 100 % angegeben werden. Eine Übersicht, der Beschreibungsschwellenwerte und den daraus abgeleiteten Deklarationsschwellenwerten ist in Tab. 4.1 aufgeführt.

Wertebereich De- klarationsschwel- lenwert (DSW <sub>N</sub> )	Deklarations- schwellenert Altab- fall (DSW <sub>A</sub> )	Beschreibungs- schwellenwert Neu- abfall (BSWN)	Beschreibungs- schwellenwert Altabfall (BSWA)
0 < DSW <sub>N</sub> ≤ 1 %	5·DSW <sub>N</sub>	DSWN	DSWA
1 % ≤ DSW <sub>N</sub> ≤ 5 %	5 %	1 %	DSWA
5 %< DSW <sub>N</sub>	DSW <sub>N</sub>	1 %	5 %

 Tab. 4.1
 Beschreibungs- und Deklarationsschwellenwerte für Alt- und Neuabfälle

 /BFS 15/

Die verbindlichen Beschreibungsschwellenwerte für Stoffe, chemische Verbindungen und Materialien sind in der sog. Stoffliste hinterlegt. Werden die in Tab. 4.1 aufgeführten Werte überschritten, so sind durch die Abfallverursacher entsprechend Angaben zu den nichtradioaktiven schädlichen Stoffen zu machen. Diese müssen dann einzeln von der Bundesgesellschaft für Endlagerung (BGE) geprüft werden.

## 4.2.2 Stofflisteneintrag für Beryllium

Wie in Tab. 4.2 aufgeführt, existieren sowohl für lösliches Beryllium (ABK085) als auch für elementares Beryllium (AAE004) und Berylliumoxid (ABK190) in metallisch massiver Form Stofflisteneinträge. Diese wurden durch das Bundesamt für Strahlenschutz beantragt und durch den Niedersächsischen Landesbetrieb für Wasserwirtschaft, Küstenund Naturschutz (NLWKL) am 18.04.2014 freigegeben.

Für die Einlagerung fester metallischer Komponenten aus Beryllium gilt ein BSW von 1 % und ein DSW von 101 %. Für einen DSW von 101 % existiert praktisch keine Massenbegrenzung. Dieser Wert gilt jedoch ausdrücklich für Beryllium in nicht löslicher Form. Für die Beschreibungs- und Deklarationsschwellwerte von löslichem Beryllium gelten mit jeweils 0,0001 % der Abfallgebindemasse deutlich strengere Vorgaben, da hier von einem höheren Gefährdungspotential für das oberflächennahe Grundwasser ausgegangen werden kann.

Tab. 4.2Übersicht über Beryllium Basisstoffe mit entsprechenden Deklarations- und<br/>Beschreibungsschwellwerten die für die Endlagerung in Konrad freigegeben<br/>sind /ÖFF 17/

Code	Name	Revi- sion	Verfah- rensstatus	DSW neu in %	BSW neu in %	Gültigkeitsbereich
AAE004	Beryllium	3	Freigege- ben	101	1	Metallisch in massi- ver Form (rein oder in Legierungen)
ABK190	Berylli- umoxid, - hydroxid	1	Freigege- ben	101	1	Metallisch in massi- ver Form
ABK085	Beryllium (löslich)	0	Freigege- ben	0,0001	0,0001	Beryllium als Be- standteil von lösli- chen Verbindungen welche keinem ande- ren Basisstoff zuge- ordnet werden kön- nen

#### 4.3 Radiologische Annahmebedingungen

Neben den stofflichen Rahmenbedingungen existieren für die Einlagerung nicht wärmeentwickelnder radioaktiver Abfälle in den Endlagerbedingungen Konrad eine Reihe radiologischer Rahmenbedingungen, auf die im Folgenden genauer eingegangen werden soll. Die dabei zulässigen Aktivitäten von Radionukliden und Radionuklidgruppen resultieren aus Sicherheitsanalysen für die Betriebs- und Nachbetriebsphase des Endlagers Konrad und finden sich in /BFS 15/. Sie basieren auf einer Reihe von Analysen, welche sich mit den Auswirkungen der in das Endlager eingebrachten Abfälle auf das Wirtsgestein, die Kritikalitätssicherheit, Störfälle in der Betriebsphase, befassen. Außerdem ist der sichere Einschluss der ins Endlager eingebrachten Radionuklide entscheidend. Unterschieden werden muss zwischen einer realen bzw. einer scheinbaren Aktivität. Wobei sich die scheinbare Aktivität rechnerisch aus unzureichenden Berechnungsverfahren ergeben. Diese wird jedoch genauso bilanziert und es besteht die Möglichkeit, dass die Aktivitätsgrenzwerte ausgeschöpft sind, obwohl die vorhandene Aktivitätsmenge diese eigentlich nicht erreicht.

#### 4.3.1 Aktivitätsbegrenzungen für den bestimmungsgemäßen Betrieb

Die Endlagerbarkeit von radioaktiven Abfällen mit vernachlässigbarer Wärmeentwicklung wurde in Sicherheitsanalysen auf Grundlage eines 156 umfassenden Radionuklidspektrums untersucht. Aus den Sicherheitsanalysen konnten für 108 Radionuklide Aktivitätsbegrenzungen abgeleitet werden. Die Garantiewerte pro Abfallgebinde sind in Tabelle II im Anhang der EBK aufgeführt. Die in das Endlager Konrad eingelagerten Aktivitäten der hier aufgeführten Radionuklide und Radionuklidgruppen müssen nuklidweise bilanziert werden. Die Aktivität der Radionuklide H-3, C-14, I-129 und Ra-226 muss dabei unabhängig von einem Deklarationswert angegeben werden. Zeigt die Bilanzierung für ein bestimmtes Radionuklid oder eine bestimmte Radionuklidgruppe für ein Betriebsjahr, dass die Richtwerte der pro Jahr in das Endlager Konrad einlagerbaren Aktivität nicht ausgeschöpft werden, können auch Abfallgebinde eingelagert werden, welche die Garantiewerte pro Abfallgebinde überschreiten. Hier ist jedoch die Zustimmung der BGE vor einer Anlieferung der betreffenden Abfallgebinde erforderlich.

#### 4.3.2 Thermische Beeinflussung des Wirtsgesteins

Die Grenzwerte der Radionuklide in einem Abfallgebinde welche sich aus der Analyse der thermischen Beeinflussung des Wirtsgesteins ergeben, müssen einem Summenkriterium genügen, welches einem in Wärmeausbreitungsrechnungen ermittelten Aktivitätswert entspricht.

$$S_w(B) = \frac{A(i)}{G_w(i,B)} \quad mit \quad Sw(B) < 1 \tag{4.1}$$

Hierbei stellt S<sub>w</sub> den Summenwert mit dem Index w für Wärme dar. A<sub>(i)</sub> gibt die Aktivität des Radionuklids oder einer Radionuklidgruppe i im Abfallgebinde an. G<sub>w</sub> stellt den aus Wärmeausbreitungsrechnungen errechneten Aktivitätswert eines Radionuklids oder einer Radionuklidgruppe i. Die Höhe des Aktivitätswerts G<sub>w</sub> ist dabei vom Abfallbehälter B abhängig. Auch wenn Summenwerte S<sub>w</sub>  $\geq$  1 pro Abfallgebinde erreicht werden, ist die Einlagerung prinzipiell möglich, wenn diese mit Abfallgebinden zusammen gelagert werden, deren Summenwert entsprechend kleiner als 1 ist. Hier muss eine volumengewichtete Mittelung der Summenwerte vorgenommen werden und der so bestimmte mittlere Summenwert muss unter 1 liegen. Grundsätzlich ist auch hier die Zustimmung der BGE notwendig /BFS 15/.

#### 4.3.3 Unterstellte Störfälle

Basierend auf einer Störfallanalyse gelten für Leitnuklide und alle sonstigen nicht spezifizierten Radionuklide bestimmte Aktivitätsgrenzwerte in Abhängigkeit der Abfallbehälterklasse und der jeweils zugehörigen Abfallproduktgruppe. In der Abfallbehälterklasse II wird dabei nicht weiter zwischen einzelnen Abfallproduktgruppen unterschieden, sondern es gelten zusätzliche Anforderungen an den Behälter, welche über Prüfzeugnisse und Gutachten vom Behälterhersteller nachgewiesen werden müssen. Im Fall, dass in einem Abfallgebinde verschiedene Radionuklide und Radionuklidgruppen enthalten sind muss die Gesamtaktivität folgendem Summenkriterium entsprechen:

$$S_{s}(p,k) = F \cdot \Sigma \frac{A(i)}{G_{s}(i,p,k)} \quad mit \quad Ss(p,k) < 1$$
(4.2)

Hierbei steht S<sub>S</sub> für den Summenwert mit dem Index s für Störfall. A<sub>(i)</sub> gibt die Aktivität des Radionuklids oder der Radionuklidgruppe i im Abfallgebinde an. G<sub>s</sub>(i,p,k) gibt den aus Störfallrechnungen theoretisch errechneten Aktivitätsgrenzwert des Radionuklids oder der Radionuklidgruppe i an, welcher von der Abfallproduktgruppe p und der Abfallbehälterklasse k abhängig ist. Der Faktor F beträgt 1, falls das Abfallgebinde im Endlager einzeln gehandhabt wird oder 2, falls zwei Abfallgebinde auf einer Transportpalette gehandhabt werden. Laut den Endlagerungsbedingungen /BFS 15/ besteht die Möglichkeit Abfälle störfallfest zu verpacken, um dadurch die Grenzwerte vollständig auszuschöpfen. Hierbei entfällt dann der Nachweis an die einzelnen Abfallproduktgruppen in der Störfallbetrachtung. Die Abfälle müssen dafür formstabil fixiert werden bzw. in Innenbehälter verpackt sein, die wiederum formstabil fixiert sind /HZB 21/. Vor einer Anlieferung von Abfallgebinden mit Summenwerten größer als 0,1 ist die Zustimmung der BGE erforderlich. Insgesamt dürfen nur 1 % aller Abfallgebinde einen Summenwert haben der größer als 1 ist. Ausgenommen hiervon sind radioaktive Abfälle in störfallfester Verpackung der Abfallbehälterklasse I II /BFS 15/.

#### 4.3.4 Kritikalitätssicherheit

Für die einlagerbaren Aktivitäten von U-233, U-235, Pu-239 und Pu-241 in einem Endlagergebinde, welche sich aus Analyserechnungen zur Kritikalitätssicherheit ergeben, gilt folgendes Summenkriterium:

$$S_k(B) = \frac{A(i)}{G_k(i, B, a)} \quad mit \quad Sk(B) < 1$$
(4.3)

Hierbei steht S<sub>k</sub> für den Summenwert mit dem Index k für Kritikalität. A<sub>(i)</sub> wiederum gibt die Aktivität des Radionuklids i im Abfallgebinde an. G<sub>k</sub>(i,B,a) steht für den in Kritikalitätsrechnungen ermittelten Aktivitätswert welcher vom Abfallbehälter B, dem Anreicherungsgrad a und vom Radionuklid i abhängig ist. Ähnlich wie bei den Grenzwerten zur thermischen Beeinflussung des Wirtsgesteins gilt auch bei den Grenzwerten zur Kritikalitätssicherheit, dass für einzelne Abfallgebinde davon abgewichen werden kann und auch solche mit Summenwerten  $S_k \ge 1$  eingelagert werden können. Dies gilt jedoch nur, wenn diese mit anderen Abfallgebinden gemischt werden und der Summenwert entsprechend kleiner 1 ist. Für die Durchmischung dürfen nur Abfallgebinde mit annähernd gleichen Massen und geometrischen Verhältnissen zusammengefasst werden. Die Aktivität der drei Radionuklide U-235, Pu-239 und Pu-241 sind unabhängig von einem Deklarationswert anzugeben /BFS 15/. Für U-233 kann eine Aktivität von 1,8E+09 Bq/Abfallgebinde angegeben werden, sollte keine Angabe des Radionuklids vorliegen. Um Scheinaktivitäten zu vermeiden sollte jedoch laut /BFS 15/ auch bei Unterschreiten des Deklarationswertes die tatsächliche Aktivität von U-233 in einem Abfallgebinde angegeben werden.

#### 4.4 Verpackungskonzepte

Für die Endlagerung radioaktiver Abfälle in Konrad müssen diese so verarbeitet bzw. konditioniert werden, dass sie einer der in /BFS 15/ definierten sechs Abfallproduktgruppen (APG) zugeordnet werden können. Die APGs unterscheiden sich in Anforderungen, die aus sicherheitstechnischer Sicht an die Qualität der Abfallprodukte gestellt werden. Erfüllen die radioaktiven Abfälle die Qualitätsmerkmale einer bestimmten APG können die aus den Untersuchungen bzgl. unterstellter Störfälle zulässigen Aktivitätswerte dieser APG ausgeschöpft werden. Für störfallfest verpackte Abfälle der Abfallbehälterklasse I gelten die Aktivitätsgrenzwerte der APG 06. Wenn die Verpackung der Abfallprodukte der Abfallbehälterklasse II zugeordnet werden kann, können die APGs nochmals höhere Aktivitätsgrenzwerte ausschöpfen. Sollten die Aktivitäten der Abfälle pro Gebinde immer noch zu hoch sein, besteht auch bei der Abfallbehälterklasse II die Möglichkeit diese störfallfest zu verpacken. Bei den ABK I nicht störfallfest (nsf) kann zur Fixierung des Inhalts Beton oder aber auch loses Verfüllmaterial wie bspw. Sand bzw. Bauschutt verwendet werden. Hierbei sind an die Eigenschaften des Betons keine Anforderungen gestellt. Für Behälter der Kategorie ABK I und II sf sind die Anforderungen höher und es muss sichergestellt sein, dass der Inhalt formstabil fixiert ist. Entsprechend muss für die Restholraumverfüllung der Behälter als Vergussmaterial Beton verwendet werden, der die Anforderungen der Prüfzeugnisse erfüllt.

Für die Reflektorkomponenten des BER-II, die mit ungefähr 1.750 kg den weitaus größten Be-Anteil der deutschen Forschungsreaktoren ausmachen, wurden in /HZB 21/ eine Reihe von Beladeszenarien für die Endlagerung in Konrad geprüft. Zwei mögliche

Beladekonzepte haben sich hier als realistisch herausgestellt und wurden genauer untersucht. Als Behälter für die berylliumhaltigen Abfälle kommen entweder MOSAIK®-Behälter der Firma GNS bzw. Konrad Container der Firma Eisenwerke Bassum (EWB) in Frage. Nur diese beiden Hersteller haben zurzeit eine Zulassung ihrer Behälter für das Endlager Konrad. MOSAIK<sup>®</sup>-Behälter sind Rundgebinde, bestehen aus Gusseisen mit Kugelgraphit und können bei Bedarf auf der Innenseite zusätzlich mit bis zu 12 cm dicken Blei-Linern zur Verstärkung der Abschirmung von Gammastrahlung ausgestattet werden. Bei den Konrad-Containern handelt es sich um quaderförmige Behälter, die aus mindestens 3 mm dickem Stahlblech, armiertem Beton oder Gusseisen gefertigt sind. In die Container lassen sich entweder 200 I- oder 400 I-Fässer einlagern bzw. können auch größere, kontaminierte bzw. aktivierte Bauteile kerntechnischer Anlagen eingebracht werden. Die Konrad-Container können der Abfallbehälterklasse I bzw. II zugeordnet werden. Eine Verpackung in einem Behälter der ABK I störfallfest bzw. der ABK II störfallfest ist für die berylliumhaltigen Komponenten generell erstrebenswert. Für störfallfeste Behälter der Abfallbehälterklasse II (ABK II) gelten die höchsten Aktivitätsgrenzwerte. Momentan liegen jedoch nur für die Konrad-Container Typ III, IV, V und VI solche Genehmigungen vor. Es wird jedoch geprüft, ob die MOSAIK<sup>®</sup>-Behälter eine Genehmigung als ABK II störfallfest erhalten.

Laut /HZB 21/ kann die Endlagerung der Beryllium Reflektoren des BER-II entweder in 6 MOSAIK<sup>®</sup>-Behältern oder in einem Konrad Container erfolgen. Für beide Behälterkonfigurationen ist diesbezüglich analysiert worden, inwieweit die radiologischen Endlagerungsbedingungen Konrad eingehalten werden können. Beide Verpackungsoptionen haben jeweils Vor- und Nachteile. Problematisch ist bspw., dass im Falle der Konrad-Container für die Zulassung als ABK II sf eine Fixierung der berylliumhaltigen Abfälle mit Beton notwendig ist. Aufgrund der Tatsache, dass sich beim Kontakt von Beryllium mit einem betonhaltigen, alkalischen Milieu Wasserstoff bildet, ist Beton als Vergussmaterial, wie in 4.1.5 beschrieben, nicht ohne weiteres geeignet. Das macht es unter Umständen erforderlich, Innenbehälter zu verwenden, die den Kontakt von Beryllium und Beton verhindern. Außerdem ist problematisch, dass beim Verguss mit Beton die zulässigen Massenbegrenzungen nicht für alle Konrad-Container eingehalten werden können. So konnte für die Beladeplanung der Reflektorkomponenten des BER-II ausgearbeitet werden, dass die beiden Typen KC III und KC V wahrscheinlich nicht in Frage kommen /HZB 21/. Als realistisch kommen eher die beiden Behälter KC II und KC IV in Frage, wobei für den KC II zurzeit keine Genehmigung als ABK II störfallfest vorliegt. Der Vorteil von MOSAIK®-Behältern gegenüber Konrad-Containern ist, dass diese eine Genehmigung als Typ B(U) Versandstück aufweisen und nicht mit Beton vergossen werden

müssen /HZB 21/. Nachteilig für die MOSAIK<sup>®</sup>-Behälter ist jedoch, dass diese zurzeit nur eine Zulassung als ABK I nsf besitzen. Bezüglich der Aktivitätsgrenzwerte gelten dementsprechend strengere Richtlinien als beim Konrad Container Typ IV.

# 4.5 Einschätzung der Endlagerfähigkeit der berylliumhaltigen radioaktiven Abfälle

## 4.5.1 Neutronenquellen

Wie in Kapitel 3.4.2 ausgeführt, kann die Berylliummenge der Anfahrquellen aller Leistungsreaktoren auf eine Gesamtmasse von ca. 64 kg abgeschätzt werden.

Tritium, welches sich beim Reaktorbetrieb in allen Berylliumkomponenten bildet, ist in den Neutronenquellen ein deutlich geringeres Problem als in den Reflektormaterialien, wo es den Hauptteil der Aktivität ausmacht. Die Sb-Be Pellets der Neutronenquellen weisen eine im Vergleich zu den Reflektormaterialien deutlich größere Porosität auf. Für die Freisetzung von Tritium, welches sich in den Hohlräumen ansammelt, gibt es dadurch keine natürlichen Barrieren /VAN 83/. Außerdem weisen die Hüllrohrmaterialien aus Edelstahl eine hohe Permeabilität für Wasserstoff und Tritium auf. Annahmen von /VAN 83/ gehen davon aus, dass Tritium durch die Porosität der Pellets entweichen kann und nahezu vollständig in den Wasser-Primärkreis entweicht. Laut /SNE 05/ wird die Tritium-Menge, welche nach dem Reaktorbetrieb in den Sekundärquellen verbleibt, als nicht signifikant eingeschätzt. Für die Neutronenquellen aus deutschen Reaktoren fehlen hierzu jedoch experimentelle Daten, welche diese Einschätzung belegen.

Bezüglich berylliumhaltiger Anfahrquellen existieren nur begrenzte Informationen, wie diese an den Reaktorstandorten entsorgt werden. Aus der Umweltverträglichkeitsuntersuchung (UVU) des Kernkraftwerks Philippsburg geht jedoch hervor, dass aktivierte und nicht fest eingebaute Kernbauteile wie Drosselkörper, Steuerelemente und Anfahrquellen als Betriebsabfälle zerlegt werden, in MOSAIK<sup>®</sup>-Behälter verpackt und ins Standort-Abfalllager Philippsburg verbracht werden /FAI 17/. Da die Lebensdauer der Neutronenquellen nur fünf bis sieben Jahre beträgt, kann durchaus davon ausgegangen werden, dass ein großer Teil zum Zeitpunkt der Erstellung der Endlagerbedingungen /BFS 15/ bereits verpackt und konditioniert waren.

Zieht man in Betracht, dass ein MOSAIK-II Behälter ein Leergewicht von 5.730 kg besitzt und für Beryllium bzw. Berylliumoxid in fester metallischer Form ein Beschreibungsschwellenwert von 1 % gilt, so ergibt sich, dass Beryllium erst ab einer Masse von 57,3 kg Beschreibungspflichtig ist (bei Altabfällen sogar erst aber einer Masse von 286,5 kg). Fällt die Menge an Beryllium darunter sind keine Angaben erforderlich. Es ist also möglich, dass keine Angaben zu den Berylliummengen vorliegen und es auch im Nachhinein nicht mehr möglich ist herauszufinden in welchen Gebinden sich Neutronenquellen überhaupt befinden.

## 4.5.2 Moderator- und Reflektormaterialien

Bei den Berylliumreflektoren und -moderatoren ist die Frage der Endlagerfähigkeit aufgrund der deutlich größeren Massen und Aktivierungen komplizierter zu beurteilen als bei den Neutronenquellen. Ob die für die Endlagerung geltenden stofflichen und radiologischen Bedingungen, welche in den EBK festgehalten sind, eingehalten werden können, soll im folgenden Abschnitt besprochen werden.

## 4.5.2.1 Endlagerfähigkeit aus stofflicher Sicht

Bei den Berylliumreflektoren bzw. -moderatoren, die den Hauptteil der in Deutschland anfallenden Berylliumabfälle ausmachen, handelt es sich um massive metallische Komponenten. Zieht man die Stoffliste heran gilt für solche Berylliumkomponenten ein Deklarationsschwellwert von 101 % und damit praktisch keine Massenbegrenzung. Von diesen Stoffen ist praktisch keine Gefährdung im oberflächennahen Grundwasser zu erwarten. Es kann also, entsprechend den Einträgen der Stoffliste davon ausgegangen werden, dass Beryllium auch in Mengen, die 24,5 kg übersteigen, stofflich im Endlager Konrad eingelagert werden darf. Aus Sicht der Autoren bezieht sich die maximal einlagerbare Menge von 24,5 kg, welche in der Gehobenen wasserrechtlichen Genehmigung bzgl. Beryllium erwähnt wird, ausdrücklich auf Beryllium in löslicher Form.

Häufige Aktualisierungen des wasserrechtlichen Regelwerks führen allerdings dazu, dass die Endlagerfähigkeit von eigentlich produktkontrollierten Abfallgebinden nicht endgültig festgestellt werden kann /SPA 24/. Aus diesem Grund ist es bspw. so, dass alle relevanten Behälter- und Stofflisteneinträge aufgrund von Verweisen auf die gehobene wasserrechtliche Erlaubnis gesperrt sind und die BGE seit 2017 keine Abfallgebinde zur Einlagerung Konrad mehr freigibt. Die Beurteilung, ob verändernde Grenzwerte Auswirkungen auf die stoffliche Endlagerfähigkeit bestrahlter berylliumhaltiger Komponenten im Endlager Konrad haben, kann im Zuge dieses Eigenforschungsvorhabens nicht abschließend beurteilt werden.

## 4.5.2.2 Endlagerfähigkeit aus radiologischer Sicht

Wie bereits beschrieben besitzt Beryllium ohne vorangegangene Neutronenbestrahlung keine signifikante Aktivität. Erst durch die Neutronenbestrahlung entsteht in den Berylliumkomponenten ein signifikantes Radionuklidinventar, welches auf unterschiedliche Weise gebildet wird. Die Berylliumkomponenten können durch Spaltung von im Material vorhandenen Spurenverunreinigungen wie bspw. U-235 aktiviert werden, wobei Radionuklide wie bspw. Co-60 bzw. Cs-137 entstehen. Außerdem kann es durch im Material vorhandenes U-238 über Neutroneneinfangreaktionen zur Bildung von Pu-239 bzw. Am-241 kommen. Weiterhin kann Beryllium selbst zu Be-10 aktiviert werden bzw. zerfällt zu radioaktivem Tritium. Zur Abschätzung des Aktivitätsinventars der Berylliumkomponenten aus den deutschen Forschungsreaktoren BER-II, FRM-I, RFR, und vom FRG wurde sich auf Angaben zu den Nuklidaktivitäten aus /HZB 21/ bezogen. Für die Aktivität der Reflektormaterialien des FRM-I liegen darüber hinaus in /LIE 10/ detaillierte Informationen vor. Die Aktivitäten der Reflektorkomponenten der vier Forschungsreaktoren BER-II, FRM-I, FRG und RFR wurden für ein gemeinsames Bezugsdatum zum 01.01.2030 mit der Software SCALE zerfallskorrigiert berechnet und sind in Tab. 4.3 aufgelistet.

Tab. 4.3 Aktivitätsinventar für 7 Radionuklide aus den vier Forschungsreaktoren BER-II, FRM-I, FRG und RFR bezogen auf deren Beryllium-Gesamtmenge bei Annahme einer homogenen Verteilung. Bezugsdatum ist der 01.01.2030 /HZB 21//KAT 21//LIE 10/

Nuklid	BER-II	FRM-I	FRG	RFR	Summe	Prozentuale	
		Aktivität in Bq					
H-3	1.94E+15	9.80E+13	3.28E14	1.64E+13	2.38E+15	98,0 %	
Co-60	1.22E+13	1.49E+11	4.37E+11	8.84E+09	1.28E+13	0,53 %	
C-14	3.46E+12	3.00E+11	9.46E+11	7.77E+08	3.44E+13	1,42 %	
Be-10	1.34E+11	5.00E+09		1.05E+10	1.50E+11	0,0061 %	
Pu-238	3.86E+09	4.10E+09		2.08E+07	7.98E+09	0,00032 %	
Cs-137	6.12E+10	2.81E+10	5.63E+10	1.59E+09	1.19E+11	0,0049 %	
TI-204	3.01E+11				3.01E+11	0,0124 %	

Für den RFR wurden nur Angaben zur spezifischen Aktivität aus einzelnen Messungen gefunden. Für die Berechnung der Gesamtaktivität wurde daher von einer homogenen

Zusammensetzung der berylliumhaltigen Komponenten ausgegangen. Aus den Werten in Tab. 4.3 ist ersichtlich, dass die Aktivität von Tritium in den Reflektorkomponenten des BER-II am höchsten ist. Weiterhin auffällig ist die hohe Tritium-Aktivität der Komponenten des FRG.

Die Gesamtaktivität für die 7 Radionuklide (H-3, Co-60, C-14, Be-10, Pu-238, Cs-137, TI-204) beträgt für das Bezugsdatum 01.01.2030 2,43E+15 Bq. Tritium hat die mit Abstand höchste Aktivität (ungefähr 98 %) und macht die Entsorgung der berylliumhaltigen Abfälle besonders kompliziert.

## Garantiewerte aus dem bestimmungsgemäßen Betrieb

Der Garantiewert für Radionuklide und Radionuklidgruppen pro Abfallgebinde, der sich aus der Sicherheitsanalyse für den bestimmungsgemäßen Betrieb ergibt, beträgt für Tritium 1,9E+11 Bq. Aus Tab. 4.3 ist ersichtlich, dass das Aktivitätsinventar der Berylliumkomponenten aller Forschungsreaktoren im Jahr 2030 den Grenzwert um mehrere Größenordnungen überschreitet. Damit werden die EBK nicht erfüllt und die Berylliumendlagerung kann aufgrund der hohen Menge and Tritium erst nach einer Abklingzeit erfolgen. Die Länge der Abklingzeit hängt davon ab, in welcher Weise die Berylliumkomponenten der Forschungsreaktoren aufgeteilt und verpackt werden. Für die Beladevarianten, welche vom /HZB 21/ für die Komponenten des BER-II betrachtet wurden, in dem die Be-Reflektoren auf insgesamt sechs Gussbehälter Typ-II aufgeteilt werden, können die Garantiewerte schneller erreicht werden als für den Fall, dass die Be-Abfälle des BER-II in einen Konrad Container Typ IV eingelagert werden.

Ohne Ausgleichsgebinde und für den Fall, dass die BER-II Be-Komponenten in einen Konrad Container Typ IV verpackt werden, müssten die Abfälle ungefähr 160 Jahre abklingen. Dementsprechend kann geschlussfolgert werden, dass die Abfälle über die Gebinde anderer Ablieferungspflichtiger ausgeglichen werden müssen. Dies muss jedoch von der BGE bzw. den anderen ablieferungspflichtigen Stellen entschieden werden. Auch bei den Berylliumkomponenten der anderen Forschungsreaktoren kommt es zu einem Überschreiten der Garantiewerte und auch hier ist die Einlagerung nur über Abklingzeiten bzw. über Ausgleichsgebinde möglich.

Zieht man die einlagerbare Gesamtaktivität für Tritium im Endlager Konrad heran, welche 6,0E+17 Bq beträgt, ergibt sich, dass für das Bezugsdatum zum 01.01.2030 ungefähr 0,4 % der maximal einlagerbaren Menge an Tritium im Endlager Konrad durch die Beryllium-Reflektoren ausgeschöpft ist.

## Störfallsummenwert und Grenzwert zur thermischen Beeinflussung des Wirtsgesteins

Aus den Recherchen von /HZB 21/ geht hervor, dass die Störfallsummenwerte für die Berylliumkomponenten für die beiden Beladevarianten (6 Gussbehälter Typ II oder 1 Konrad Container Typ IV) eingehalten werden können. Die Werte für die Berylliumkomponenten des BER-II haben laut /HZB 21/ die größte Masse, die längste Bestrahlungszeit und die geringste Abklingzeit. Sie weisen dementsprechend (vgl. Tab. 4.3) die größte Aktivierung auf und sollten die Grenzwertbetrachtungen für die Berylliumkomponenten der anderen Forschungsreaktoren abdecken.

Basierend auf MCNP-Modellrechnungen, welche am HZB für die Aktivierung der Berylliumkomponenten des BER-II gemacht wurden, konnte herausgearbeitet werden, dass das Nuklid Thallium problematisch für die Einhaltung der EBK ist. Die Aktivität von TI-204 wird für das Bezugsjahr 2021 mit einem Wert von 3,011E+11 Bq angegeben, wodurch der Grenzwert zur thermischen Beeinflussung des Wirtsgesteins um mehrere Größenordnungen überschritten wird. Dies gilt für beide Beladevarianten. Da die Verunreinigungen mit Thallium jedoch unterhalb der Nachweisgrenze liegen, wurden hier konservative Schätzungen zum Grad der Verunreinigung verwendet. Die tatsächlichen Aktivitätswerte können also deutlich unter den aus der Modellrechnung abgeschätzten Werten liegen. Außerdem liegt die Halbwertszeit bei nur dreieinhalb Jahren und es wäre über eine Abklinglagerung möglich, die Grenzwerte einhalten zu können. Unter der Annahme, dass die gesamten Beryllium-Abfälle des BER-II in einem Konrad-Container konditioniert werden, müssten die Abfälle bis 2070 abklingen. Auch hier können bei Überschreitung der Grenzwerte zur thermischen Beeinflussung des Wirtsgesteins Ausgleichsgebinde eingesetzt werden. In welcher Konzentration das Radionuklid TI-204 in den Berylliumkomponenten der anderen Forschungsreaktoren vorliegt, kann im Zuge dieses Forschungsvorhabens nicht beurteilt werden.

In /LIE 10/ wird erwähnt, dass die Aktivität der Hauptnuklide Tritium und Co-60 zum Bezugsdatum 26.01.2005 bzgl. der Störfallanalyse einen Summenwert von 4,48 erreichen. Der Summenwert gilt für einen Gussbehälter, in welchem die Reflektorelemente seit der Entnahme aus dem Reaktor zwischengelagert werden. Um das Summenkriterium aus den Anforderungen der Störfallanalyse zu erfüllen ist eine Abklinglagerung von ungefähr 30 Jahren notwendig. Diese 30 Jahre wären im Jahr 2035 erreicht.

#### Kritikalitätssicherheit

Aus den EBK geht hervor, dass die BGE einzelne Abfallbehälter prüft, sofern diese mehr als 36 kg Beryllium, vermischt mit spaltbaren Stoffen bzw. mehr als 360 kg Beryllium unvermischt mit spaltbaren Stoffen enthalten. Für die Vermischung mit spaltbaren Stoffen gelten dabei verschärfte Begrenzungen bezüglich der Kritikalitätssicherheit. So dürfen die Aktivitätswerte von U-233 einen Wert von 1,8E+09 Bg pro Abfallgebinde nicht überschreiten. Außerdem gelten für U-235, Pu-239, Pu-241 spezifische Grenzwerte je nach Anreicherungsgrad und Abfallbehälter. Die Grenzwerte zur Kritikalitätssicherheit sind für die beiden Behältertypen Gussbehälter Typ II und den Konrad Container Typ IV in Tab. 4.4 aufgelistet. Für beide Beladevarianten gilt, dass die Grenzwerte zur Kritikalitätssicherheit bei den Berylliumkomponenten des BER-II eingehalten werden können. Da es sich bei den Berylliumkomponenten der anderen Forschungsreaktoren um die gleichen Produktklassen handelt bzw. im Fall des RFR-Forschungsreaktors um Beryllium aus kasachischer Produktion, welches eine geringere Uran-Konzentration im Vergleich zu Beryllium aus US-Produktion aufweist, ist nicht davon auszugehen, dass die Aktivitätswerte bzgl. U-233 bzw. U-235 höher ausfallen. Ähnliches gilt für die Aktivitätswerte bzgl. Pu-239 und Pu-241. Die Aktivitätswerte für die Berylliumkomponenten des BER-II sind als konservativ zu betrachten, da diese die längste Bestrahlungszeit und geringste Abklingzeit aufweisen.

Tab. 4.4	Grenzwerte für die beiden Behältertypen Gussbehälter Typ II bzw. KC IV
	und Aktivitäten für spaltbare Stoffe ermittelt am BER-II /HZB 21/

Nuklid	U-233	U-235	Pu-239	Pu-241
GW Gussbehäl- ter Typ II (Bq)	1.8E+09	5.5E+06	8.7E+08	7.2E+11
GW KC IV (Bq)	1.8E+09	2.6E+05	4.1E+09	3.4E+12
Aktivität (Bq)	1.6E-02	2.1E+03	1.4E+06	5.5E+11

# 5 Wiederverwendungsmöglichkeiten von bereits bestrahltem Beryllium

Im folgenden Abschnitt soll auf eine mögliche Rezyklierung und Anwendungsbereiche von bestrahltem Beryllium im Bereich der Kerntechnik (in dotierten Kernbrennstoffen als auch in Fusionsreaktoren) eingegangen werden. Außerdem wird die Verwendung in der konventionellen Industrie kurz beschrieben. Da für eine Rezyklierung bestrahlter berylliumhaltiger Komponenten eine chemische Reinigung bzw. Dekontamination notwendig ist, wird auch auf die dafür notwendigen Schritte zur Verminderung der Restaktivität eingegangen. Abschließend erfolgt eine kurze Einschätzung, inwiefern die Möglichkeiten zur Wiederverwendung in Deutschland als realistisch zu bewerten sind.

#### 5.1 Beryllium dotierte Kernbrennstoffe

Ein grundlegendes Problem von reinen UO<sub>2</sub> Brennstoffen ist die niedrige thermische Leitfähigkeit, welche ein limitierender Faktor in der Leistung eines Reaktors sein kann. Durch die Verwendung von Brennstoffen mit einer erhöhten Wärmeleitfähigkeit, reduziert sich die maximale Temperatur innerhalb der Pellets. Dies führt zu einem geringeren Temperaturgradienten zwischen Hüllrohr und Brennstoff und damit zu verringerten thermischen Spannungen, wodurch die Tendenz zur Rissbildung in den Hüllrohren sinkt /BAI 99/, /FRO 82/. Außerdem können zu hohe Temperaturen in den Brennstoffen zu einem Anschwellen und Aufbrechen der Pellets und damit zu vermehrten Spaltgasfreisetzung führen /BAI 99/, /BEL 61/ /FRO 82/. Weiterhin lassen sich Störfälle, wie zum Beispiel Brennstoffschmelzen bei Kühlmittelverluststörfällen durch Brennstoffe mit erhöhter Wärmeleitfähigkeit und der damit einhergehenden verminderten Temperaturent-wicklung leichter kontrollieren /NEA 18/.

BeO-dotierte Brennstoffe können über verschiedene Verfahren hergestellt werden. Hier sind unter anderem das Heißpressen, Kaltpressen bzw. Extrudieren mit anschließendem Sintern zu nennen. Je nach Verfahren können unterschiedlich hohe Dichten erzielt werden. So liefert das Heißpressen und Sintern 99 %; das Kaltpressen und Sintern 93 % und das Extrudieren mit anschließendem Sintern 95 % bis 96 % der theoretischen Dichte /REE 64/. Die Unterschiede in der Dichte der Dispersions-Brennstoffe kommt dadurch zustande, dass unterschiedlichen Schrumpfungsraten des BeO-Matrixmaterials und des Kernbrennstoffs im Sinterprozess auftreten. Dadurch können Hohlräume zwischen der Matrix und dem Kernbrennstoffmaterial erzeugt werden, was wiederum zu einer Reduktion der Dichte führt. Um dies zu vermeiden ist es möglich, über vorbeschichtete

45

Brennstoffpartikel eine chemische Bindung zwischen dem Brennstoffpartikel und dem Matrixmaterial zu erzeugen, was als sogenannter Co-Sinterprozess bezeichnet wird. Hierbei werden Brennstoffpartikel wie (U,Th)O<sub>2</sub> zunächst mit BeO-Pulver gemischt und anschließend getrocknet, gepresst und gesintert. Somit kann ein verbesserter Partikel-Matrix-Kontakt hergestellt werden (siehe Abb. 5.1). Die mit Berylliumoxid vorbeschichteten Brennstoffpartikel erreichen eine deutlich verbesserte chemische Bindung mit dem Matrixmaterial.



Abb. 5.1 Hohlräume in kaltgepressten und gesinterten Proben und (b) co-gesinterte
 BeO and (U, Th)O<sub>2</sub> Brennstoffpartikel mit einer deutlichen Abnahme an
 Hohlräumen /HOU 23/

Berylliumoxid ist als Matrixmaterial für neuartige Kernbrennstoffe in der Literatur umfassend untersucht worden /CHR 64/, /NIS 64/, /REE 64/. Der Einsatz solcher Brennstoffe findet zur Zeit jedoch nur vereinzelt statt und ist hauptsächlich Gegenstand von Laborversuchen /ZHO 15/. In sog. Dispersions-Brennstoffsystemen fungiert Berylliumoxid als eine Kombination aus Neutronenmoderator bzw. -reflektor. Außerdem können durch die Zugabe von Beryllium zum Brennstoff gasförmige Spaltprodukte zurückgehalten werden. Durch die Zugabe von Berylliumoxid lässt sich darüber hinaus eine verbesserte Wärmeleitfähigkeit erreichen. /MCC 08/ konnten für das Verhalten von BeO-dotierten Brennstoffen bei einem Kühlmittelverlust feststellen, dass die Maximaltemperatur entlang der inneren Achse der Pellets im Vergleich zu UO<sub>2</sub>-Brennstoff Pellets deutlich niedriger ist. Ein Anteil von 10 Vol.-% an Berylliumoxid kann die Wärmeleitfähigkeit bereits um 40 % erhöhen /ISH 96/. Die Wärmeleitfähigkeit nimmt mit jedoch dem Abbrand ab und ist stark von der Verteilung des BeO im UO<sub>2</sub>-Brennstoff abhängig /NEA 18/.

Die Herstellung von mit Berylliumoxid dotierten Brennstoffen ist zwar aufwendiger und teurer, kann durch die erhöhte Wärmeleitfähigkeit und eine damit einhergehende höhere Spitzenbelastung der Reaktoren durchaus ökonomisch sinnvoll sein. Generell kann eine

Proportionalität zwischen dem Berylliumgehalt in den dotierten Brennstoffen und dem maximalen Abbrand festgestellt werden, was erst einmal zu einer erhöhten wirtschaftlichen Rentabilität führt. Hier gilt es jedoch zu bedenken, dass in einzelnen Ländern der maximale Abbrand geregelt ist. So ist dieser in Korea und den USA für Kernbrennstoffe aus Leichtwasserreaktoren auf 60 GWd/Mg SM bzw. 62 GWd/Mg SM festgelegt. Für den Fall, dass die Kosten für Beryllium dotierte Brennstoffe fünfmal so hoch sind wie die für Uran Brennstoffe, wurde von /Kim 10/ berechnet, dass der Einsatz von BeO-UO<sub>2</sub>-Brennstoffen wirtschaftlich erst dann sinnvoll ist, wenn der Abbrand mehr als 60 GWd/Mg SM beträgt. Unter Umständen können BeO-UO<sub>2</sub>-Brennstoffe also die Brennstoffleistung verbessern und die Kosten des Kernbrennstoffkreislaufs senken.

In Deutschland wurden weder im Betrieb der Leistungsreaktoren, als auch in den Forschungs- und Prototypreaktoren, berylliumdotierte Brennstoffe eingesetzt.

## 5.2 Beryllium als Breeding-Blanket in Fusionsreaktoren

In zukünftigen Fusionsreaktoren kann Beryllium sowohl als Abschirmmaterial des Plasmaraumes als auch für die Erzeugung des Brennstoffs verwendet werden. Für die Fusionsreaktoren gilt ein Gemisch aus gleichen Anteilen der Wasserstoff-Isotope Deuterium (D) und Tritium (T) als der vielversprechendste Brennstoff. Durch die Neutronenbestrahlung von Beryllium während des Reaktorbetriebs können signifikante Mengen an Tritium erzeugt werden. Zum aktuellen Zeitpunkt sind zur Kernfusion vor allem die Projekte

- International Thermonuclear Experimental Reactor (ITER) in Frankreich,
- Joint European Torus (JET) in Großbritannien,
- und das Wendelstein 7-x Projekt in Deutschland,

zu nennen. ITER ist ein internationaler Zusammenschluss der Mitgliedsparteien China, Europa, Indien, Korea und Japan und soll voraussichtlich 2035 in Betrieb gehen /PER 23/. Darüber hinaus ist der Bau des sog. "Demonstration Power Plant" (DEMO) als Nachfolgeprojekt von ITER geplant, der als erster Fusionsreaktor weltweit Strom ans Netz liefern soll. In ITER werden Materialen, unter anderem auch Breeding-Blankets, für den späteren Einsatz in zukünftigen zivilen Fusionsreaktoren getestet.

Wasserstoff kommt hauptsächlich als Protium (P; <sup>1</sup>H; ein Proton; 99,98 % aller Isotope; stabil), Deuterium (D; <sup>2</sup>H; ein Proton und ein Neutron; 0,015 % aller Isotope; stabil) und Tritium (D; <sup>3</sup>H; ein Proton und zwei Neutronen; 1E-15 % aller Isotope; radioaktiv) vor. Im Vergleich zur Produktion von Deuterium, welches relativ leicht aus Wasser gewonnen werden kann, stellt die Produktion von Tritium eine größere Herausforderung dar. Tritium

ist, bedingt durch seinen radioaktiven Zerfall mit einer Halbwertszeit von ungefähr 12 Jahren, nur in minimalen Mengen auf der Erde vorhanden. Schätzungen gehen davon aus, dass in der gesamten Biosphäre nur etwa 3,5 kg Tritium vorkommen, wovon sich der Großteil im Ozeanwasser befindet. In CANDU-Reaktoren, in welchen schweres Wasser als Moderator eingesetzt wird, kann Tritium durch Neutroneneinfangreaktionen auf künstliche Weise erzeugt werden. Es ist jedoch technisch anspruchsvoll Tritium aus den radioaktiven Abfällen zu isolieren. Darüber hinaus sind die erzielbaren Mengen relativ begrenzt. Obwohl Fusionsreaktoren wie ITER nur wenige Gramm Tritium pro Plasma benötigen und einen Teil davon zurückgewinnen können, wird die Fusionsanlage während der geplanten 15 Betriebsjahre ungefähr 20 Kilogramm verbrauchen. Bezieht man zukünftige Fusionskraftwerke mit ein, werden erheblich mehr Mengen an Tritium benötigt. So soll bspw. ein industriell genutztes, stromerzeugendes Fusionskraftwerk durchschnittlich 70 kg Tritium pro Gigawatt thermischer Energie benötigen.

Um dieses Problem zu lösen, wird daran geforscht, Tritium durch die Fusionsreaktoren selbst erzeugen zu lassen. Dieses ließe sich über sog. Breeding-Blankets, einer Schutzschicht, die die Innenwand des Plasmaraums abschirmt, erzeugen. Die 440 Blanket-Module von ITER, die jeweils etwa 4,5 Mg wiegen, bestehen aus einer abnehmbaren Berylliumwand. Dahinter befinden sich dicke Platten aus Kupfer und Edelstahl, die von Kühlwasser durchströmt werden. Die Blankets fangen die während der Fusion entstehenden schnellen Neutronen ein und wandeln ihre kinetische Energie in Wärme um. Um Tritium aus den Blankets zu produzieren, müssen die Platten entweder flüssiges Lithium (z. B. Lithiumblei) oder feste Lithiumverbindungen (z. B. keramisches Lithiumsilikat) enthalten. Treffen die während der Kernfusion freigesetzten energiereichen Neutronen auf das Lithium, zerfällt Lithium in Helium und Tritium.

Um einen ausreichend hohen Neutronenfluss für das Brüten des Tritiums gewährleisten zu können, wird Beryllium als Neutronenmultiplier benötigt. Zur Zeit gibt es mehrere Designkonzepte für Breeding-Blankets, welche im Forschungsreaktor ITER für einen späteren Einsatz im DEMO-Reaktor getestet werden /GIA 07/. Von insgesamt sechs Konzepten beinhalten vier Beryllium als Neutronenmultiplier /VLA 14/. Abb. 5.2 zeigt den möglichen Aufbau eines Fusionsreaktorkerns und eines wassergekühlten Kugelhaufen-Breeding-Blankets (engl: pebble bed TBM), welches im ITER-Reaktor vorgesehen ist /KON 17/. Die Breeding-Blankets sind zwischen dem Plasma und der Neutronenquelle angebracht. Ein Aufbau der Breeding-Blankets in Form eines Kugelhaufens bietet den Vorteil einer hohen Packungsdichte, guter thermischen Leitfähigkeit als auch Strukturintegrität. Für ITER wären bei einem vergleichbaren Aufbau schätzungsweise 1 Mg Beryllium notwendig, für einen kommerziell nutzbaren Reaktor wie DEMO wären es ca. 300 Mg Beryllium /VLA 14/.



Abb. 5.2 Querschnitt eines Moduls eines Heliumgekühlten Kugelhaufen-Breeding-Blankets /RAB 04/

Für den Einsatz in ITER sind bspw. die Produktklassen S-65C, S-200F bzw. S-200E vorgesehen /DOM 97/. Für den Einsatz als Brütermaterial im DEMO-Fusionsreaktor wird hingegen der Einsatz von Be<sub>12</sub>Ti in Betracht gezogen /PER 23/. Im Vergleich zum Einsatz in Forschungsreaktoren sind die Grenzwerte für Verunreinigungen in Berylliumkomponenten für Fusionskraftwerke noch einmal deutlich höher. Bei den hohen Neutronenflussdichten und Temperaturen, die in einem Fusionskraftwerk auftreten, können selbst kleine Veränderungen in der Zusammensetzung immense Auswirkungen auf die fragile Fusionsreaktion haben. Wie in Kapitel 2.5.2 bereits beschrieben, führt die Bestrahlung durch Neutronen zur Heliumblasenbildung und damit zu einem Aufquellen der Berylliumkomponenten. Dies kann zu sich verändernden Kontaktflächen der Beryllium-Kugeln mit den umliegenden Stahlplatten führen, wodurch die Wärmeleitfähigkeit und das Temperaturprofil beeinflusst werden /SCA 95/. Eine verschlechterte Wärmeleitfähigkeit wirkt sich wiederum negativ auf die Fusionsreaktion aus.

Ähnlich zur Entsorgung ist auch für die Fusionsreaktion die Bildung von Tritium in den Berylliumkomponenten problematisch, da es zu jeder Zeit zu einer Freisetzung des gesamten Inventars kommen kann. Dies kann sowohl beim Transport, bei der Lagerung als auch bei der Rezyklierung der bestrahlten Komponenten auftreten. In dem derzeit als Referenz in den europäischen Studien betrachteten 1,5 GW Fusionskraftwerk kann die Tritiumproduktion im Neutronenmultiplikator des gesamten Blankets auf etwa 24 kg in 390 Mg Beryllium geschätzt werden /CHE 02/. Käme es im Falle eines Störfalles zur Freisetzung einer solchen Menge an Tritium, hätte dies die Evakuierung des Standorts zur Folge. Um dies zu vermeiden, wird versucht, einen Großteil des im Beryllium produzierten Tritiums kontinuierlich im Reaktorbetrieb freizusetzen.

#### 5.3 Einsatzmöglichkeiten im nicht nuklearen Bereich

Gerade in der Luft- und Raumfahrt, sowie in militärischen Applikationen wird Beryllium vielfältig eingesetzt. Es wird bspw. in Raketen, Sensoren, Düsenjägern, Hubschraubern, Fahrwerken, Hitzeschutzschilden und Bremsen für militärische und kommerzielle Flugzeuge eingesetzt. Komponenten aus Beryllium sind in Raumfahrzeugen oder militärischen Geräten unerlässlich, da diese eine hohe Festigkeit und strukturelle Integrität ermöglichen, ohne jedoch das Gewicht signifikant zu erhöhen. Der hohe Infrarot-Reflexionskoeffizient macht Beryllium außerdem zu einem idealen Material für militärische, Navigations- und Kommunikationssatelliten. Beryllium wurde beispielsweise im James-Webb-Weltraumteleskop, aber auch im Galileo-Navigationssatellitensystem eingesetzt. Obwohl der Primärspiegel des James-Webb-Weltraumteleskops ungefähr dreimal größer ist als der des Hubble-Teleskops, wiegt dieser dank der Berylliumkomponenten ungefähr 100 kg weniger. Durch die Anwendung, gerade im militärischen Bereich, gab es in den USA die Empfehlung, Beryllium als kritisches Material zu bewerten, welches für die nationale Sicherheit von Bedeutung ist /LED 23/. Diese Einschätzung hat in den USA dazu geführt, Beryllium für den Fall eines Notfalls auf Vorrat zu lagern. Neben der Luft- und Raumfahrt sowie in militärischen Anwendungen haben Beryllium-Komponenten auch in der Telekommunikation, Konsum- und Automobilelektronik an Bedeutung gewonnen. Diese Einsatzfelder machen mittlerweile 45 % des weltweiten Berylliumverbrauchs aus. Die außergewöhnliche Wärmeleitfähigkeit und elektrische Isolierung von Beryllium-Keramiken macht es zu einem hervorragenden Kühlkörper für elektronische Geräte, um die Miniaturisierung und das Design kompakter Komponenten zu unterstützen. Darüber hinaus weisen Legierungen, die Beryllium in verschiedenen Anteilen enthalten, stark verbesserte Eigenschaften auf, die man sich unter anderem in Airbag-Sensoren, elektrischen Relais in Automobilen, funkenfreien Werkzeugen für die Öl- und Gasexploration, ermüdungsresistenten Federn und Gehäusen für Unterseekabel zu Nutze macht. Außerdem ist Beryllium aufgrund seiner niedrigen Ordnungszahl relativ durchlässig für Röntgenstrahlen und wird dementsprechend in Röntgenfenstern für medizinische und wissenschaftliche Geräte eingesetzt.

#### 5.4 Rezyklierung von bestrahltem Beryllium

Für eine Rezyklierung bestrahlter Berylliumkomponenten sind generell zwei Schritte notwendig. Zuerst muss das durch die Bestrahlung entstandene Tritium entfernt werden. In einem zweiten Schritt muss dafür gesorgt werden, dass alle weiteren Spalt- und Aktivierungsprodukte aufgetrennt werden. Soll das bestrahlte Beryllium daraufhin wiedereingesetzt werden ist als dritter Schritt eine Wiederaufbereitung der zerkleinerten und gereinigten Berylliumkomponenten notwendig. Je nachdem, ob die rezyklierten Komponenten in Fusionsreaktoren in Form von Breeding-Blankets, als dotierte Kernbrennstoffe oder auch im nicht kerntechnischen Bereich zum Einsatz kommen, unterscheidet sich dabei die weitere Prozessführung. Im folgenden Abschnitt soll ein kurzer Überblick hinsichtlich der Möglichkeiten zur Entfernung von Tritium bzw. zu den Reinigungsprozessen gegeben werden.

#### 5.4.1 Entfernen von Tritium

Ein vielversprechendes Verfahren zur Entfernung von Tritium aus bestrahlten Berylliumkomponenten ist das Ausheizen. Beim Ausheizen wird Tritium, welches im Beryllium in Form von Oxideinschlüssen gebunden ist, über das zuführen thermischer Energie freigesetzt. Tritium sammelt sich als mobiles Nuklid entlang der Korngrenzen an. Bei Erreichen hoher Ausheiztemperaturen kommt es entlang der Korngrenzen zu einer Schädigung der Mikrostruktur, was zu einer explosionsartigen Freisetzung des dort akkumulierten Tritiums führt. In /CHA 23/ wird beschrieben, dass die Mikrostruktur von bestrahltem Beryllium dabei stark von der Ausheiztemperatur beeinflusst wird. Die Temperaturen, die für die Entfernung des Tritiums notwendig sind, variieren von Studie zu Studie. In /DYL 08/ wird erwähnt, dass Beryllium aus dem Betrieb eines Fusionskraftwerks mindestens auf 1000 °C erhitzt werden müsste, um eine vollständige Entfernung des Tritiums zu erreichen. Ein Einsetzen der Tritiumfreisetzung findet hingegen schon bei niedrigeren Temperaturen statt.

Zur Freisetzung von Tritium wurden von /KOL 16/ Experimente an Beryllium der Produktklasse TShG-200 durchgeführt, welches zuvor mit schnellen Neutronen (>500 keV) von 3E+21 bis 1E+22 n/cm<sup>-2</sup> bestrahlt wurde. Die Experimente an bestrahlten Berylliumproben konnten zeigen, dass die Tritiumfreisetzung generell nicht diffusiv verläuft. Je nach Eigenschaften der bestrahlten Berylliumkomponenten ergeben sich für die maximale Menge an Tritium, welche beim Ausheizen freigesetzt wird, unterschiedliche Temperaturpeaks. Außerdem wird durch /KOL 16/ beschrieben, dass Ausheiztemperaturen von mehr als 600 °C die Porosität in den Berylliumproben signifikant erhöhen. So können bei Temperaturen von 600 °C - 1100 °C Porositätswerte von 30 - 60 % erreicht werden. /KOL 16/ schlussfolgern, dass ein Ausheizen bei Temperaturen von 523 °C bis ungefähr 600 °C für das Einsetzten einer Tritiumfreisetzung ausreichend sei.

Die optimale Temperatur für eine effiziente Tritiumfreisetzung variiert jedoch nach Bestrahlungsgeschichte und Aufheizrate in einem Bereich von etwa 400 °C bis 900 °C. Die Aufheizrate der Berylliumproben ist hierbei ein weiterer Parameter, welcher generell zu einer Abnahme der Spitzentemperatur führt. Außerdem hängt die Ausheiztemperatur, bei der die höchste Freisetzungsrate erreicht wird, von der Neutronenfluenz, welcher die Berylliumkomponenten ausgesetzt waren, ab /PER 23/. Grundsätzlich gilt, dass je höher die Neutronenfluenz ist, desto mehr Tritiumatome sammeln sich an und desto niedriger ist der Peak der Ausheiztemperatur. In Tab. 5.1 sind die Ausheiztemperaturen in Abhängigkeit von der Energie der Neutronen und der Neutronenfluenz aufgelistet.

Energie der Neutronen (MeV)		Temperatur bei der Freisetzung einsetzt (°C)	Temperatur bei der Tritium vollständig freigesetzt ist (°C)
< 0.1	1E+26	300-350	810
Thermische und schnelle Neutronen	1E+24	550	850
>1	2.1E+25	Keine Angabe	1000
>0.1	(0.5-1.6)E+27	445	745

Tab. 5.1 Ausheiztemperatur von Tritium /DYL 08/

## 5.4.2 Reinigung und Entfernung von Fremdstoffen

Die Reinigung von Beryllium kann mit Hilfe verschiedener Verfahren ermöglicht werden:

- Chloridverfahren
- Vakuumdestillation
- Zonenschmelzen

Im Folgenden soll das Chloridverfahren zur Reinigung genauer beschrieben werden. Hierbei handelt es sich um einen zweistufigen Prozess, bei dem das bestrahlte Beryllium zunächst chloriert wird. Im Anschluss findet eine Reduktion von Berylliumchlorid zur Gewinnung von hochreinem Beryllium statt. Berylliumhalogenide, zu denen Berylliumchlorid-Verbindungen zugeordnet werden können, sind bei hohen Temperaturen relativ flüchtig. Beim Verfahren macht man sich zu Nutze, dass Verunreinigungen im bestrahlten Beryllium hingegen nur eine geringe Flüchtigkeit aufweisen. Beim Durchleiten von Berylliumchlorid bzw. Natriumchlorid-Dampf über erhitztes, unreines Beryllium kann hochreines Berylliumchlorid durch fraktionierte Destillation gewonnen werden.

## 5.4.2.1 Reduktion von Berylliumchlorid

Nach dem Chloridverfahren ist es notwendig, Berylliumchlorid in einem weiteren Schritt elektrochemisch oder thermisch zu reduzieren. Generell hängt der Reinigungsgrad von der Anzahl der angewendeten Zyklen ab, welche die drei Prozesse Auflösung, Fällung und Waschen umfassen. In Abhängigkeit der Anzahl der Prozesschritte, kann der Dekontaminationsfaktor zwischen 100 und 10.000 liegen. Laut /PER 23/ kann die gesamte Prozedur bis zu ein Jahr dauern. Die Dekontamination ist aufgrund der hohen Aktivität des Berylliums nur möglich, wenn die Arbeiten vollautomatisiert und ferngesteuert ablaufen.

## **Elektrochemische Reduktion**

Die elektrochemische Reduktion von Berylliumchlorid kann bei niedrigen als auch bei hohen Temperaturen durchgeführt werden. Für die Reduktion bei niedriger Temperatur (bei in etwa 370 °C) wird ein Gemisch aus Berylliumchlorid und Natriumchlorid elektrolysiert. Diese Reaktion findet in einem Nickelbehälter statt, der als Kathode für die Elektrolyse dient. Die Anode ist ein mittig angeordneter Graphitstab. Die Elektrolyse wird so lange fortgesetzt, bis das Berylliumchlorid auf etwa 45 % des Elektrolyten reduziert ist. Die sich dabei absetzenden Berylliumflocken werden entfernt, um die Fortsetzung des Prozesses zu ermöglichen. Die Berylliumflocken werden dann abwechselnd mit verdünnten Natriumhydroxid- und Salpetersäurelösungen gewaschen, um zum einen den Aluminiumgehalt zu verringern und zum anderen die an der Oberfläche anhaftenden Oxide zu entfernen. In einem letzten Schritt werden die Berylliumflocken mit Methanol gewaschen und getrocknet. Beim sog. Hochtemperaturverfahren werden 13 bis 15 % Berylliumchlorid zu einer Mischung aus Natrium- und Kaliumchlorid hinzugefügt. Die Schmelztemperatur beträgt etwa 760 °C bis 790 °C. Zwischen einer Graphitanode und dem Metallbehälter, der als Kathode dient, wird ein Gleichstrom von etwa 6 Volt angelegt. Nach Abschluss des Prozesses wird der Inhalt des Metallbehälters in einen anderen Behälter umgefüllt, in welchem die Salze erstarren. Das reduzierte Berylliummetall liegt dann in Form von Berylliumflocken vor. Auch hier werden die Flocken nach dem Aushärten mit Natriumhydroxid und Salpetersäure gewaschen, um anhaftende Oberflächenoxide zu entfernen.

#### Thermische Reduktion

Eine weitere Möglichkeit besteht darin, das Gas über ein Filament aus Silikoncarbid zu leiten, wodurch eine thermische Reduktion von Berylliumchlorid stattfindet. Hierbei handelt es sich jedoch um ein Verfahren, welches in der technischen Umsetzung schwierig ist. So ist es nicht trivial, einen stabilen Kontakt zwischen dem Gasstrom und dem Glühfilament herzustellen. Außerdem ist die Ausbeute der Reaktion äußerst variabel. Der Hauptvorteil der thermischen Reduktion ist, dass es dabei zu keinen zusätzlichen Verunreinigungen kommt. Erfahrungen mit der elektrochemischen und chemischen Reduktion von Berylliumchlorid konnten zeigen, dass mit beiden Methoden erhebliche Verunreinigungen im metallischen Beryllium einhergehen.

## 5.4.3 Realisierbarkeit der Rezyklierung

Dadurch dass Beryllium zu einem Absenken der kritischen Masse genutzt werden kann, ist es für militärische Zwecke von Interesse. Deutschland hat aus diesem Grund ausgeschlossen, Beryllium für die Rezyklierung an das Ausland zu geben. Sollte diese Regelung nicht geändert werden, besteht in Deutschland zurzeit für eine Rezyklierung eigentlich kein Nutzen. Selbst wenn ein Export möglich wäre, stellt sich immer die Frage, ob die Verfahren zur Rezyklierung wirtschaftlich profitabel sind. Das liegt daran, dass die Reinigungsprozesse äußerst energieaufwendig sind. Auch sind die Verfahren zum Ausheizen Tritium, um die hohe radiologische Aktivität abzusenken, zurzeit nicht etabliert bzw. im industriellen Maßstab verfügbar. Diese Einschätzung kann sich im Verlauf der nächsten Jahrzehnte, in Abhängigkeit der Erfolgsaussichten von Fusionskraftwerken, einen Anteil an der weltweiten Stromproduktion zu liefern, jedoch ändern. Die weltweite Berylliumproduktion betrug im Jahr 2019 etwa 260 Mg /USGS 20/. Dies liegt deutlich unter der Menge an Beryllium, welche für den Bau der Neutronenmultiplikatoren bzw. des Abschirmmaterials des europäischen Demo-Fusionsreaktors mit ungefähr 560 Mg veranschlagt wird /MAI 05/. Darüber hinaus gibt es weitere Länder wie bspw. China, Kanada, USA und Russland, die ebenfalls planen, Fusionsreaktoren zu bauen, wodurch sich der Berylliumbedarf weiter steigert. Berücksichtigt man, dass die Einsatzfähigkeit von Beryllium, aufgrund von Rissbildung und Quellung voraussichtlich nur etwa 5 Jahre beträgt /CAM 10/, ist nach Einschätzung von /KOL 16/ zukünftig eine Rezyklierung von bereits bestrahltem Beryllium in den Produktionskreislauf mit einer damit einhergehenden Reinigung von Uran, transuranischen Strahlern, Spalt- und Aktivierungsprodukten, eigentlich unvermeidlich.

## 6 Zusammenfassung

Im Rahmen der vorliegenden Arbeit wurden die Entsorgungsmöglichkeiten berylliumhaltiger radioaktiver Abfälle untersucht. Hierzu wurde ein Mengengerüst erstellt, welches eine Übersicht über die in Deutschland anfallenden Mengen an Beryllium aus dem Betrieb von Leistungs- und Forschungsreaktoren liefert. Die Abfallströme für Beryllium in der Kerntechnik setzen sich hauptsächlich aus der Verwendung als Neutronenmoderator- bzw. als Neutronenreflektormaterial in Forschungsreaktoren und als Material in Primär- und Sekundärneutronenquellen in den Leistungsreaktoren zusammen. Mit einer Masse von ungefähr 3.036 Mg fällt der weitaus größere Teil der Be-Abfälle aus dem Betrieb der Forschungsreaktoren BER-II, FRM-I/II, FRG-I/II und aus dem RFR an. Die Masse der Primär- und Sekundärneutronenquellen konnte mit ungefähr 64 kg abgeschätzt werden. Verglichen mit der Menge der Beryllium-Reflektoren und Moderatoren entspricht die Menge der Quellen etwa 2 %.

Weiterhin wurden die chemischen Eigenschaften und das Materialverhalten von bestrahltem Beryllium untersucht. Auf Grundlage der verfügbaren Literatur konnte eine Abschätzung über das Radionuklidinventar der Berylliumabfälle der vier Forschungsreaktoren BER-II, FRM-I, FRG und RFR gegeben werden /LIE 10/,/HZB 21/. Das für die Endlagerfähigkeit relevanteste Radionuklid ist dabei Tritium. Hier übersteigt die Aktivität, die in den Endlagerbedingungen Konrad festgelegten Grenzwerte, und eine direkte Endlagerung ist nur über eine lange Abklinglagerung bzw. über Ausgleichsgebinde möglich. Auf Grundlage von Aktivitätsberechnungen der Reflektorkomponenten des BER-II, welche von /HZB 21/ durchgeführt wurden, konnte ermittelt werden, dass die Aktivität an Nukliden, welche die Kritikalitätssicherheit gefährden (U-235, Pu-238, U-238, Pu-239), die Grenzwerte der Endlagerungsbedingungen /BFS 15/ einhält und 360 kg Beryllium pro Endlagergebinde eingelagert werden können. Die recherchierten Aktivitätswerte der Berylliumkomponenten sind eine Abschätzung und müssen im Zuge der Konditionierung in jedem Fall messtechnisch verifiziert werden. Kommt es dabei zu höheren Abweichungen kann dies dazu führen, dass die Einlagerung aufgrund der radiologischen Rahmenbedingungen nicht möglich ist. So ist die einlagerbare Gesamtmenge an Tritium in der Schachtanlage Konrad auf 6,0E+17 Bg begrenzt. Vergleicht man die Aktivität mit der für 2030 abgeschätzten Gesamtaktivität von 2,43E+15 Bg, wird diese zu etwa 0,4 % ausgeschöpft. Der Gesamtanteil der Berylliumreflektoren am Gesamtvolumen des Endlagers Konrad beträgt jedoch nur wenn 0,0094 %, wenn angenommen wird, für die Abfälle jedes Forschungsreaktors einen Konradcontainer Typ IV zu verwenden. Inwiefern die einlagerbare Menge an Tritium durch die Abfälle anderer EVUs ausgeschöpft wird und

55

wie dann mit der Diskrepanz aus Aktivität und Volumen umgegangen wird, konnte im Zuge dieses Eigenforschungsvorhabens nicht geklärt werden. Bei den Neutronenquellen, die basierend auf Recherchen der gängigen Literatur, keine großen Mengen an Tritium aufweisen, ist die Entsorgung relativ unproblematisch. Hinzu kommt, dass diese aufgrund der geringen Masse die Beschreibungsschwellenwerte der Abfallgebinde nicht erreichen und eventuell gar nicht erfasst werden. Auch lässt sich die in den Altabfällen bereits verpackte Menge an Beryllium aus den Neutronenquellen wahrscheinlich nicht zu 100 % zurückverfolgen.

Im Eigenforschungsvorhaben wurde weiterhin untersucht, ob die bestrahlten Berylliumkomponenten auch stofflich die Endlagerungsbedingungen Konrad einhalten. Hier konnte ermittelt werden, dass es für elementares Beryllium bzw. Berylliumoxid in massiver Form seit 18.01.2014 einen Stofflisteneintrag mit einem Deklarationsschwellenwert von 101 % des Abfallgebindes gibt. Das bedeutet, dass es in dieser Form praktisch keine Massenbegrenzung gibt. Die Massenbegrenzung von 24,5 kg, welche in den Endlagerbedingungen Konrad festgehalten ist, gilt nach Meinung der Autoren nur für Beryllium in seiner schädlichen, d. h. wasserlöslichen Form. Da Beryllium bzw. Berylliumoxid aus dem Betrieb der Leistungs- bzw. Forschungsreaktoren jedoch in massiver metallischer und nicht löslicher Form vorliegt, ließe sich dieses rein stofflich in Konrad einlagern. Laut /SPA 24/ führen häufige Aktualisierungen des wasserrechtlichen Regelwerks jedoch dazu, dass die Endlagerfähigkeit von produktkontrollierten Abfallgebinden nicht endgültig festgestellt werden kann. Dies hat bspw. dazu geführt, dass alle relevanten Behälterund Stofflisteneinträge aufgrund von Verweisen auf die gehobene wasserrechtliche Erlaubnis gesperrt sind und die BGE seit 2017 keine Abfallgebinde zur Einlagerung in das Endlager Konrad freigeben kann. Ob sich verändernde Grenzwerte auch Auswirkungen auf die Endlagerfähigkeit bestrahlter berylliumhaltiger Komponenten im Endlager Konrad haben, kann zum jetzigen Zeitpunkt nicht beurteilt werden.

Bezüglich der Rezyklierung von bestrahltem, radioaktivem Beryllium hat sich nach den Recherchen nur eine Wiederverwendung in der Kerntechnik als realistisch herausgestellt. Für die dafür notwendigen Verfahren (Ausheizen von Tritium und eine anschließende Dekontamination) existieren jedoch zurzeit keine etablierten bzw. industriell erprobten Verfahren. Dadurch lässt sich der finanzielle Aufwand nur grob abschätzen. In /HZB 21/ wird dieser mit 18,9 Mio. € für das Ausheizen von Tritium und mit 90,4 Mio. € für die Dekontamination, insgesamt also mit ungefähr 110 Mio. € beziffert. Diese Kosten übersteigen die der direkten Endlagerung selbst nach jahrzehntelanger Abklinglagerung in Zwischenlagern signifikant und sind nach Beurteilung von /KAT 21/ für Deutschland wirtschaftlich nicht sinnvoll. Vorteilhaft könnte es allerdings sein, wenn durch das Ausheizen von Tritium und dem Absenken der Aktivität die Abklingzeit deutlich verringert wird und dies zu verringerten Kosten der Zwischenlagerung führt.

Eine Freigabe der bestrahlten Berylliumkomponenten kann höchstwahrscheinlich nicht erreicht werden, da unabhängig davon wieviel Reinigungsschritte ausgeführt werden, die bestrahlten Berylliumkomponenten am Ende der Prozesskette eine Restaktivität aufweisen. Außerdem wäre hierfür eine Abtrennung des Isotops Be-10 erforderlich, was technisch sehr aufwendig ist. Nach Einschätzung von /HZB 21/ betragen die Gesamtkosten für den Fall einer Freigabe ungefähr 300 Mio. € und werden dementsprechend wirtschaftlich als nicht sinnvoll beurteil

#### Literaturverzeichnis

- /ARE 14/ AREVA: Schulungsunterlagen Allgemeine Grundlagen und Einführung in die Gesamtanlage. 2014.
- /BAI 99/ Bailly, H., Menessier, D., Prunier, C.: The Nuclear Fuel of Pressurized Water Reactors and Fast Reactors Design and Behaviour. Hrsg.: Intercept Ltd: Hampshire, UK, 1999.
- /BAR 00/ Barabash, V., Federici, G., Rödig M., Snead L.L, W. C.: Neutron irradiation effects on plasma facing materials. Nr. 283-287, S. 138–146, 2000.
- /BEE 67/ Beeston, J. M.: Effects of Radiation on Structural Materials. ASTM-STP 426. ASTM, 1967.
- /BEL 61/ Belle, J.: Uranium Dioxide, Properties and Nuclear Applications. Hrsg.: United States Atomic Energy Commission (US AEC), 1961.
- /BFS 15/ Brennecke, P.: Anforderungen an endzulagernde radioaktive Abfälle, Endlagerungsbedingungen, Stand: Dezember 2014, Endlager Konrad. Bundesamt für Strahlenschutz (BfS), SE-IB-29/08-REV-2: Salzgitter, Februar 2015.
- /BOU 22/ Bouhier, P., Cannes, C., Lambertin, D., Grisolia, C., Rodrigues, D. E. a.: Evaluation ofseveralconditioningmatricesforthemanagementofradioactivemetalberylliumwastes. Journal ofNuclearMaterials, Nr. 559, 2022.
- /BRE 19/ Bredberg, I., Hutter, J., Koch, A., Kühn, K., Niedzwiedz, K., Mibus, J., Philippczyk, F., Wähning, R.: Statusbericht zur Kernenergienutzung in der Bundesrepublik Deutschland 2018. Hrsg.: Bundesamt für kerntechnische Entsorgungssicherheit (BfE), 96 S., erreichbar unter , Stand von 2019.
- /BRU 19/ Bruhn, G., Dewald, M., Dittmann-Schnabel, B.: Statusbericht zur Stilllegung von Forschungsreaktoren in der Bundesrepublik Deutschland, Stand: Juni 2018. Hrsg.: Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH, Juni 2019.

- /BUC 05/ Buchheim, B., Fellenberg, H. von, Rohr, D.: Ermittlung von Art und Menge chemotoxischer Stoffe in allen Arten radioaktiver Abfälle und Bewertung ihrer Freisetzung im Hinblick auf das Schutzziel des Wasserhaushaltsgesetzes, Abschlussbericht. Bundesamt für Strahlenschutz (BfS), 2005.
- /BUK 24/ Bukaemskiy, A., Caes, S., Modolo, G. E. a.: Investigation of kinetics and mechanisms of metallic beryllium corrosion for the management of radioactive wastes. MRS Advances, Nr. 9, S. 391–396, 2024.
- /BUN 97/ Bundesamt für Strahlenschutz (BfS): Statusbericht über die Rossendorfer Forschungsreaktoren, KT-IB-54, Interne KT-Berichte. 1997.
- /CAM 10/ Cambi, G., Cepraga, D. G., Di Pace, L., Druyts, E., Massaut, V.: The potentialpresence and minimization of plutonium within the irradiated beryllium infusion power reactors. Fusion Engineering and Design, Nr. 85, S. 1139– 1142, 2010.
- /CAU 14/ Cau-dit-Coumes, C., Lambertin, D., Lahalle, H., Antonucci, P., Cannes, C.:
   J. Nucl. Mater. 453, 31–40 (2014). Journal of Nuclear Materials, Nr. 453, S.
   31–40, 2014.
- /CEV 20/ Çevirim-Papaioannou, N., Gaona, X., Böttle, M., Bethune, E. Y., Schild, D., Adam, C., Sittel, T., Altmaier, M.: Thermodynamic description of Be(II) solubility and hydrolysis in acidic to hyperalkaline NaCl and KCl solutions. Applied Geochemistry, Bd. 117, S. 104601, DOI 10.1016/j.apgeochem.2020.104601, 2020.
- /CHA 52/ Chatalov, A.: Effet du pH sur le comportement electrochimique des metaux et leur resistance a la corrosion. Dokl. Akad Nauk, Nr. 86, S. 775–777, 1952.
- /CHA 23/ Chakin, V., Rolli, R., Gaisin, R., van Renterghem, W.: Tritium Desorption Behavior and Microstructure Evolution of Beryllium Irradiated at Low Temperature Up to High Neutron Dose in BR2 Reactor 4, 552–564. Journal of Nuclear Materials, Nr. 4, S. 552–564, 2023.

- /CHE 02/ Chen Y., Fischer U., Pereslavtsev P., Wasastjerna F.: The EU Power Plant conceptual Study - Neutronic design analysis for near term and advanced reactor models. 6763. Aufl., 2002.
- /CHR 64/ Christie, G. E., Jackson, J., Lyons, G. A., Cragg, D. G., Martin, F. S.: Fabrication of fuelled beryllia by extrusion and sintering. Journal of Nuclear Materials, Nr. 14, S. 444–452, 1964.
- /CLA 63/ Clarke, F. J. P.: Irradiation Damage in Beryllium Oxide. Progr . Nucl . Energy, Nr. 5, S. 221–248, 1963.
- /CRC 13/ W. M. Haynes: CRC Handbook of Chemistry and Physics. 94. Aufl., 4-51, CRC Press LLC: Boca Raton, FL, 2013-14.
- /DOM 97/ Dombrowski, D. E.: Manufacture of beryllium for fusion energy applications. Fusion Engineering and Design, Bd. 37, Nr. 2, S. 229–242, DOI 10.1016/S0920-3796(97)00048-3, 1997.
- /DRU 03/ Druyts, F., Mallants, D., Sillen, Y., van Iseghern, P. (Hrsg.): Belgian Research on Fusion Beryllium Waste. JAERI-Conference, 2003.
- /DRU 19/ Druyts, F., Caes, S.: Corrosion of metals in category B&C waste, A review of literature data. Hrsg.: Studiecentrum voor Kernenergie - SCK CEN: Beligium, 2019.
- /DYL 08/ Dylst, K., Seghers, J., Druyts, F., Braet, J.: Removing Tritium and Other Impurities During Industrial Recycling of Beryllium from a Fusion Reactor. Fusion Science and Technology, Bd. 54, Nr. 1, S. 215–218, DOI 10.13182/FST08-A1798, 2008.
- /ELS 61/ Elston, J., Labbe, C.: Effect des traitements hemiques et de L'irradiation par les neutron surles proprietes physiques et mecaniques de l'oxide de beryllium fite sous charge. J. Nucl. Mat., Nr. 4, S. 143–164, 1961.
- /ENG 55/ English, J. L.: The metal beryllium. American Society for Metals: Cleveland, 1955.
- /EUR 13/ Substance evaluation conclusion document as required by REACH Article 48 for beryllium (EC No 231-150-7 CAS No 7440-41-7) zuletzt geändert 2013.
- /FAI 17/ Faiß, M., Geißler, C., Dröscher, F.: Umweltverträglichkeitsuntersuchung (UVU), Stilllegung und Abbau von Anlagenteilen des Kernkraftwerks Philippsburg Block 2 (KKP 2). Hrsg.: Ingenieurbüro für Technischen Umweltschutz: Tübingen, 2017.
- /FRO 82/ Frost, B.: Nuclear Fuel Elements, Design, Performance. Hrsg.: Pergamon Press: NY Fabrication, 1982.
- /GEL 92/ Gelles, D.S. and Heinisch, H.L: Neutron damage in beryllium. J. Nucl. Mater, S. 194–198, 1992.
- /GEL 94/ Gelles, D.S., Sernyaev, G.A., Donne, M.D: Radiation effects in beryllium used for plasma protection. J. Nucl. Mater, S. 29–38, 1994.
- /GIA 07/ Giancarli, L., Chuyanov, V., Abdou, M., Akiba, M., Hong, B. G., Lässer, R., Pan, C., Strebkov, Y.: Test blanket modules in ITER: An overview on proposed designs and required DEMO-relevant materials. Journal of Nuclear Materials, Bd. 367-370, S. 1271–1280, DOI 10.1016/j.jnucmat.2007.03.234, 2007.
- /HAW 94/ Hawkes EC: Physical Characteristics of Non-Fuel Assembly Reactor Components, PNL-8425. Pacific Northwest Laboratory (PNL): Richland, Washington, 1994.
- /HAW 05/ Haws, W. J.: Corrosion of beryllium and aluminium-beryllium composites. Corrosion: Materials, S. 360–369, 2005.
- /HEC73/ Hecker, R.: Untersuchungen an Berylliumoxid. Hrsg.: Kernforschungsanlage Jülich GmbH, 165 S.: Jülich, 1973.
- /HIC 66/ Hickman, B.: Radiation Effects in Beryllium and Beryllium Oxide. Studies in Radiation Effects, Nr. 1, S. 72–158, 1966.

- /HIL 98/ Hill, M. A., Butt, D. P., Lillard, R. S.: The Passivily and Breakdown of Beryllium in Aqueous Solutions. J. Electrochim. Soc., Bd. 145, Nr. 8, S. 2799– 2806, 1998.
- /HOU 22/ Hou, M., Zhou, X., Liu, B.: Beryllium oxide utilized in nuclear reactors: Part I: Application history, thermal properties, mechanical properties, corrosion behavior and fabrication methods. Nuclear Engineering and Technology, Bd. 54, Nr. 12, S. 4393–4411, DOI 10.1016/j.net.2022.07.017, 2022.
- /HOU 23/ Hou, M., Zhou, X., Liu, B.: Beryllium oxide utilized in nuclear reactors: Part II, A systematic review of the neutron irradiation effects. Nuclear Engineering and Technology, Bd. 55, Nr. 2, S. 408–420, DOI 10.1016/j.net.2022.10.020, 2023.
- /HZB 15/ HZB: Kurzbeschreibung des Forschungsreaktors BER II. Helmholtz Zentrum Berlin, 2015.
- /HZB 21/ Daniels, N., Deissmann, G., Modolo, G., Bosbach, D., Kate, S. P., Schlenz,
  L., Welzel, S.: Konzeptstudie zur Entsorgung von aktiviertem Beryllium aus
  Forschungsreaktoren (KONEKT). Forschungszentrum Jülich GmbH (FZJ),
  Helmholtz-Zentrum Berlin für Materialien und Energie GmbH, 2021.
- /INL 05/ Idaho National Laboratory (Hrsg.): Beryllium Technology Research in the United States, 7th IEA International Workshop on Beryllium Technology. 7th IEA International Workshop on Beryllium Technology.
- /INL 07/ Longhurst, G. R., Rohe, R. D.: Beryllium Use in the Advanced Test Reactor, 8th IEA International Workshop on Beryllium Technology. Dezember 2007.
- /ISE 99/ van Iseghem, P., Aertsens, M., Lemmens, K., Malengrcau, N., Pirlet, V., Valcke, E.: The long-term stability of nuclear waste glass in geological disposal conditions - the Belgian approach. In: Glass Science and Technology for the 21 st Century.

- /ISE 21/ ISE Ingenieurgesellschaft: Ermittlung des Aktivitätsinventars der Forschungsreaktoranlage und des Heißen Labors, Erläuterungsbericht zur Stilllegung des Forschungsreaktors FRG-1 und Abbau der Forschungsreaktoranlage und des Heißen Labors sowie die Zerlegung des Reaktordruckbehälters des Nuklearschiffs Otto Hahn. Hrsg.: Helmholtz-Zentrum hereon GmbH, 2021.
- /ISH 96/ Ishimoto, J., Hirai, M., Ito, K.: Thermal conductivity of UO2-BeO pellet. Hrsg.: Nuclear Science Technology, p. 134-140, 33. Aufl., 1996.
- /JAE 04/ JAERI Conference (Hrsg.): Challenges for Disposal of Irradiated Beryllium. INEEL Idaho National Engineering and Environmental Laboratory, JAERI Conference, 2004.
- /KAT 21/ Kate, P.: Ergebnisse des Verbundforschungsprojektes KONEKT (HZB/FZJ). Präsentation, HZB, FZJ, 2021.
- /Kim 10/ Kim, S. K., Ko, W. I., Kim, H. D., Revankar, S., Zhou, W., Jo, D.: Cost–benefit analysis of BeO–UO2 nuclear fuel. Progress in Nuclear Energy, Nr. 52, 2010.
- /KNU 08/ Knudson, T.: A Qualitative Overview of the Use of Beryllium, Beryllium-Containing Alloys and Beryllium oxide Ceramic in Electrical and Electronic Equipment (EEE), Beryllium industry document. Hrsg.: Brush Wellman Inc., 2008.
- /KOL 16/ Kolbasov, B.N. Et al.: On use of beryllium in fusion reactors: Resources, impurities and necessity of detritiation after irradiation. Fusion Engineering and Design, 2016.
- /KON 17/ Konishi, S., Enoeda, M., Nakamichi, M., Hoshino, T., Ying, A., Sharafat, S., Smolentsev, S.: Functional Materials for Breeding Blankets, Status and Developments. Nuclear Fusion, Bd. 57, Nr. 9, S. 92014, DOI 10.1088/1741-4326/aa7e4e, 2017.
- /KRI 05/ Krieger Dr. Hanno: Strahlungsquellen fpr Technik und Medizin. ISBN 978-3-8351-0019-0, B. G. Teubner Verlag, 2005.

- /LED 23/ Lederer, J., Galos, T.: Optimierter innerbetrieblicher Transport von Rückbaumaterial bei geringen Platzverhältnissen und durch teilautomatisierte fördertechnische Lösungen. In: Gesellschaft für technische Kommunikation mbH (Hrsg.): KONTEC 2023 - 16. Internationales Symposium "Konditionierung radioaktiver Betriebs- und Stilllegungsabfälle", Programm. KONTEC, Dresden, 30. August - 1. September 2023, August 2023.
- /LI 2021/ Li, K., Qian, L., Li, X., Ma, Y., Zhou, W.: BeO utilization in reactors for the improvement of extreme reactor environments K. Li, L. Qian, X. Li, Y. Ma, W. Zhou, BeO utilization in reactors for the improvement of extreme reactor environments a review. Frontiers in Energy Research, Nr. 9, 2021.
- /LIE 10/ Lierse von Gostomski, C., Erntl, C., Jörg, H., G., Remmert, A., Stöwer, W., Bach, F.-W., Jemdras, M., Kutlu, I., Wilk, P., Nerlich, K.-D., Artlinger, R., Plank, W., Schöner, P., Blenski, H.-J., Berthold, M.: Entsorgung von Beryllium/ Berylliumoxid und Cadmium aus Forschungsreaktoren – Abschlussbericht. Hrsg.: Bundesministerium für Bildung und Forschung (BMBF), TU München, FKZ 02S7951, 2010.
- /LON 02/ Longhurst, G. R., Anderson, G. L., Mullen C.H., West, W. H. (Hrsg.): Irradiated Beryllium Disposal Workshop. Idaho Falls, 2002.
- /LON 11/ Longhurst, G. R., Tsuchiya, K., Dorn, C., Folkman, Ishihara, M., Kawamura,
  H., Tranter, T., Rohe, R., Uchida, M., Vidal, E.: Managing Beryllium in Nuclear Facility Applications. Nuclear Technology, Nr. 176, S. 430–441, 2011.
- /MAI 05/ Maisonnier, D. E. a.: The European power plant conceptual study. Fusion Engineering and Design, Bd. 75, S. 1173–1179, 2005.
- /MCC 08/ McCoy, K., Mays, C.: Enhanced Thermal Conductivity Oxide Nuclear Fuels by Co-Sintering with BeO, Fuel performance and neutronics. Journal of Nuclear Materials, p. 157-167, 375. Aufl., 2008.
- /MIL 67/ MILLER, R. A., MYERS, J. R., SAXER, R. K.: Stress Corrosion of Beryllium in Synthetic Sea Water. Corrosion, Bd. 23, Nr. 1, S. 11–14, DOI 10.5006/0010-9312-23.1.11, 1967.

- /NAG 16/ Naglav, D., Buchner, M. R., Bendt, G., Kraus, F., Schulz, S.: Auf neuen Pfaden – per Anhalter durch die Berylliumchemie. Angewandte Chemie, 2016.
- /NEA 18/ OECD Nuclear Energy Agency (NEA) (Hrsg.): State-of-the-Art Report on Light Water Reactor Accident-Tolerant Fuels. Nuclear science, No. 7317, ISBN 9789264308343, DOI 10.1787/9789264308343-en: Paris, 2018.
- /NEE 97/ Neeb, K. H.: The Radiochemistry of Nuclear Power Plants with Light Water Reactors. ISBN 3-11-013242-7, De Gruyter: Berlin, 1997.
- /NIE 02/ Niedersächsisches Umweltministerium: Planfeststellungsbeschluss für die Errichtung und den Betrieb des Bergwerkes Konrad in Salzgitter. Hannover, 22. Mai 2002.
- /NIS 64/ Nishigaki, S., Maekawa, K.: Fabrication of BeO-UO2-Be fuel pellets. Journal of Nuclear Materials, Nr. 14, S. 453–458, 1964.
- /ÖFF 17/ Bundesministerium für Wirtschaft und Energie (BMWi): Öffentlich-rechtlicher Vertrag zwischen der Bundesrepublik Deutschland sowie der EnBW Energie Baden-Württemberg AG, der E.ON SE, der RWE AG, der Stadtwerke München GmbH, der Vattenfall GmbH und den in Anlage 1 genannten Gesellschaften und der Landeshauptstadt München. 26. Juni 2017.
- /PER 23/ Pereslavtsev, P., Cortes, P., Elbez-Uzan, J.: Activation Analyses of Disposal Options for Irradiated Be12Ti. Applied Sciences, Bd. 13, Nr. 13, S. 7534, DOI 10.3390/app13137534, 2023.
- /PRO 66/ Prochko, R. J., MYERS, J. R., SAXER, R. K.: Corrosion of beryllium by salt water Material. Material Protection, Nr. 5, S. 39–42, 1966.
- /PUN 10/ Punni, J. S., Cox, M. J.: The effect of impurity inclusions on the pitting behaviour of beryllium. Corrosion Science, Nr. 52, S. 2532–2546, 2010.
- /RAB 04/ Rabaglino, E.: Helium and Tritium in NEutron-irradiated Beryllium. Institut für Kern- und Energietechnik Programm Kernfusion: Karlsruhe, 2004.

- /REE 64/ Reeve, K. D.: Fabrication and structure of Beryllium oxide-based fuels. Journal of Nuclear Materials, Bd. 1964, Nr. 14, S. 435–443, 1964.
- /SCA 95/ Scaffidi-Argentina, F.: Modellierung des Schwellens und der Tritium-Freisatzung von bestrahltem Beryllium. Hrsg.: Forschungszentrum Karlsruhe, 5632, 1995.
- /SCH 98/ Schreiner, P., Krull, W., Feltes, W.: INCREASINGTHENEUTRONFLUXATT-HEBEAMTUBE POSITIONS OF THE FRG-1. 1998.
- /SNE 22/ Snead, L. L., Sprouster, D., Cheng, B., Brown, N., Ang, C., Duchnowski, E.
  M., Hu, X.: Development and potential of composite moderators for elevated temperature nuclear applications. Journal of Asian Ceramic Societies, Nr. 10, 2022.
- /SNE 05/ Snead, L., Zinkle, S. J.: Use of Beryllium and Beryllium Oxide in Space Reactors, Institute of Physics. AIP Conference Proceedings, Nr. 746, S. 768– 775, 2005.
- /SPA 24/ Spann, H.: Fehlende Freigaben für Konrad-G2-Gebinde kann der Knoten noch zerschlagen werden? In: TÜV NORD EnSys GmbH & Co. KG (Hrsg.):
  12. Symposium zur Endlagerung radioaktiver Abfälle, G2-Gebinde: Die Eintrittskarte in das Endlager Konrad. Symposium zur Endlagerung radioaktiver Abfälle, Laatzen, 20. 21. Juni 2024, Juni 2024.
- /STR 62/ Straumanis, M. E., Mathis, D. L.: The Dissolution Reaction and Attack of Beryllium by HF, HCl, and H2SO4. Journal of The Electrochemical Society, Bd. 109, Nr. 5, S. 434, DOI 10.1149/1.2425439, 1962.
- /TOM 04/ Tomberlin, T. A. (Hrsg.): Beryllium A Unique Material In Nuclear Applications. 36th International SAMPE Technical Conference, 2004.
- /TRA 05/ Tranter, T., Tillotson, R., Mann, N., Longhurst, G.: Processing Irradiated Beryllium for Disposal, 7th IEA International Workshop on Beryllium Technology. Hrsg.: INL, 2005.

- /TUM 93/ Technische Universität München: NEUTRONENQUELLE MÜNCHEN FRM-II IN GARCHING SICHERHEITSBERICHT. Oktober 1993.
- /USGS 20/ James F. Reilly II: MINERAL COMMODITY SUMMARIES 2020. Hrsg.: U.S. Geological Survey, erreichbar unter https://pubs.usgs.gov/periodicals/ mcs2020/mcs2020.pdf, Stand von 2020.
- /VAN 83/ van Engen, W., Ainsworth A.: Report on Antimony-Beryllium Neutron Sources Examined After 7.45 Effective Full Power Years in the Dodewaard BWR. Dimensional Stability and Mechanical Behaviour of Irradiated Metals and Alloys, Nr. 2, 1983.
- /VLA 14/ Vladimirov, P., Bachurin, D., Borodin, V., Chakin, V., Ganchenkova, M., Fedorov, A., Klimenkov, M., Kupriyanov, I., Moeslang, A., Nakamichi, M., Shibayama, T., van Til, S., Zmitko, M.: Current Status of Beryllium Materials for Fusion Blanket Applications. Fusion Science and Technology, Bd. 66, Nr. 1, S. 28–37, DOI 10.13182/FST13-776, 2014.
- /WIB 01/ Egon Wiberg, Arnold Frederick Holleman: Inorganic Chemistry. ISBN 0-12352651-5, Elsevier, 2001.
- /ZHO 15/ Zhou, W. Z., Liu, R.: Fabrication Methods and Thermal Hydraulics Analysis of Enhanced Thermal Conductivity UO2-BeO Fuel in LWRs. Hrsg.: Elsevier Science Ltd., Annals of Nuclear Energy, Vol. 81, S. 240-248, 2015.

## Abbildungsverzeichnis

Abb. 2.1	Die in /BUK 24/ ermittelten Korrosionsraten von metallischem Beryllium und Al im Vergleich zu verfügbaren Literaturdaten /PRO 66/, /ENG 55/, /CHA 52/, /CAU 14/7
Abb. 2.2	Aktivierungswege für die Bildung von Tritium und Helium /INL 07/10
Abb. 2.3	Verschiedene Arten der Aktivierung von Transuranen- Verunreinigungen im Beryllium. Ausschraffierte Isotope sind für die Endlagerung von besonderer Bedeutung /LON 11/11
Abb. 2.4	Uran-Konzentration in Beryllium aus Mine aus Kasachstan /KOL 16/ 12
Abb. 2.5	Uran-Verunreinigungen für Beryllium-Legierungen der Firma Brush- Wellman /LON 02/13
Abb. 3.1	Belegung der Kernpositionen des FRG-I nach der zweiten Kernreduzierung auf insgesamt 12 BE /SCH 98/17
Abb. 3.2	Kernaufbau des RFR mit Kernbeladung /BUN 97/18
Abb. 3.3	Skizze der beiden Reflektortypen aus Beryllium, welche im FRM-I verbaut waren /LIE 10/20
Abb. 3.4	Querschnitt durch das Brennelement, den Regelstab und das Zentralkanalrohr des FRM-II /TUM 93/22
Abb. 3.5	Diagramm einer Standard Sekundär-Neutronenquelle /HAW 94/25
Abb. 5.1	Hohlräume in kaltgepressten und gesinterten Proben und (b) co- gesinterte BeO and (U, Th)O <sub>2</sub> Brennstoffpartikel mit einer deutlichen Abnahme an Hohlräumen /HOU 23/46
Abb. 5.2	Querschnitt eines Moduls eines Heliumgekühlten Kugelhaufen- Breeding-Blankets /RAB 04/49

## Tabellenverzeichnis

Tab. 2.1	Eigenschaften von Beryllium und Berylliumoxid /TOM 04/
Tab. 2.2	Löslichkeiten nach USP und Beispiele8
Tab. 2.3	Verunreinigungen in Beryllium fünf verschiedener Produktklassen in µg pro g /JAE 04/12
Tab. 3.1	Eigenschaften von Neutronenmoderator-Materialien /HOU 23/21
Tab. 3.2	Übersicht über Mengengerüst der in Deutschland in Forschungsreaktoren eingesetzten Beryllium als Neutronenreflektor bzwmoderator
Tab. 4.1	Beschreibungs- und Deklarationsschwellenwerte für Alt- und Neuabfälle /BFS 15/
Tab. 4.2	Übersicht über Beryllium Basisstoffe mit entsprechenden Deklarations- und Beschreibungsschwellwerten die für die Endlagerung in Konrad freigegeben sind /ÖFF 17/
Tab. 4.3	Aktivitätsinventar für 7 Radionuklide aus den vier Forschungsreaktoren BER-II, FRM-I, FRG und RFR bezogen auf deren Beryllium-Gesamtmenge bei Annahme einer homogenen Verteilung. Bezugsdatum ist der 01.01.2030 /HZB 21//KAT 21//LIE 10/
Tab. 4.4	Grenzwerte für die beiden Behältertypen Gussbehälter Typ II bzw. KC IV und Aktivitäten für spaltbare Stoffe ermittelt am BER-II /HZB 21/ 44
Tab. 5.1	Ausheiztemperatur von Tritium /DYL 08/52

Gesellschaft für Anlagenund Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH

Schwertnergasse 1 50667 Köln Telefon +49 221 2068-0 Telefax +49 221 2068-888

Boltzmannstraße 14 **85748 Garching b. München** Telefon +49 89 32004-0 Telefax +49 89 32004-300

Kurfürstendamm 200 **10719 Berlin** Telefon +49 30 88589-0 Telefax +49 30 88589-111

Theodor-Heuss-Straße 4 **38122 Braunschweig** Telefon +49 531 8012-0 Telefax +49 531 8012-200

www.grs.de