



19 BUNDESREPUBLIK
DEUTSCHLAND



DEUTSCHES
PATENTAMT

12 **Offenlegungsschrift**
10 **DE 198 03 629 A 1**

51 Int. Cl.⁶:
G 21 F 9/00
G 21 G 1/04
G 21 D 9/00

21 Aktenzeichen: 198 03 629.9
22 Anmeldetag: 1. 2. 98
43 Offenlegungstag: 20. 8. 98

DE 198 03 629 A 1

30 Unionspriorität:
P 04879 03. 02. 97 AU
71 Anmelder:
Hora, Heinrich, Prof. Dr. Dr., 85586 Poing, DE

72 Erfinder:
gleich Anmelder

Die folgenden Angaben sind den vom Anmelder eingereichten Unterlagen entnommen

- 54 Beseitigung von langlebigem Abfall von Kernkraftwerken zu niedrigen Kosten
- 57 Die Erfindung betrifft die Beseitigung von langlebigen radioaktivem Abfall von Kernkraftwerken zu niedrigen Preisen und die Beseitigung von Plutonium und Nachbar-elementen sowie die Erzeugung von Kernisotopen durch zusätzliche Einbringung dieser Elemente in die Reaktions-bereiche für niederenergetische Kernreaktionen durch Protonen oder Deuteronen in Wirtsmetallen.

DE 198 03 629 A 1

HINTERGRUND DER ERFINDUNG

1. Übersicht über die Erfindung

Diese betrifft Einrichtungen mit großen Oberflächen oder Zwischen-Grenzflächen von Materialien, die hohe Konzentrationen von Wasserstoff oder seiner Isotope aus Elektrolyten oder anderen Quellen absorbierten können, und wobei langlebige radioaktive Isotope oder Isotope von Neptunium, Plutonium, Americium oder Curium in diese Materialien oder deren Unterlagen eingebracht werden, um ungefährliche Nuklide zu erzeugen. Dieses Einbringen von anderen, speziell gewählten Elementen führt zu einer preiswerten Erzeugung seltener Isotope aller Art für medizinische und industrielle Zwecke.

2. Vorausgehender Stand der Technik

a. Notwendigkeit der Beseitigung langlebiger radioaktiver Isotope und von Plutonium. Die heutzutage preiswerteste und am wenigsten gefährliche (Vermeidung von Kohlendioxydemission in die Erdatmosphäre und damit bewirkte globale Erwärmung) und sicherste (z. B. durch Benützung der passiven Reaktorkontrolle, siehe USA Patent 5,319,688 oder die Methode von Edward Teller: Laser Interaction and Related Plasma Phenomena, Amer. Inst. Phys. Konferenz-Veröffentlichung Nr. 318, G.H. Miley Hg, (Amer. Inst. Physics, New York 1994) S. 3) Methode der Großproduktion von Energie ist mit Kernspaltungskraftwerken. Trotzdem bestehen Probleme mit der Handhabung der radioaktiven Abfallprodukte. Obwohl es verschiedene vorläufige Lösungen gibt und angewandt werden, so sind die Kosten hoch und die Verwicklungen mit dem Atomsperrrvertrag zur Vermeidung der Erzeugung von Kernsprengstoff mit Plutonium muß beachtet werden. Die vollständige Beseitigung langlebigen radioaktiven Abfalls oder von Plutonium war bisher nicht erhältlich. Teilchenstrahlbeschuß, der das Problem lösen könnte, ist um Größenordnungen zu kostspielig.

Die meisten der chemischen Elemente, in die die spaltenden Uran- oder Plutoniumkerne bei der Fission zerfallen sind – abgesehen von stabilen Nukliden – meistens kurzlebige radioaktive Isotope, die ziemlich schnell in stabile Kerne umgewandelt werden. Das Problem sind die verbleibenden langlebigen Kerne, von denen die folgenden erwähnt werden mit der Halbwertszeit in Klammern:

^{99}Tc ($2.13 \times 10^5\text{y}$), ^{126}Sn ($1.1 \times 10^5\text{y}$), ^{129}I ($1.7 \times 10^7\text{y}$), ^{135}Cs ($2.3 \times 10^6\text{y}$), ^{107}Pd ($6.5 \times 10^6\text{y}$), ^{93}Zr ($1.5 \times 10^6\text{y}$).

Ein GW (elektrisches) Kernkraftwerk erzeugt pro Jahr z. B. 257 kg des erwähnten Technetiumisotops oder 59.4 kg vom erwähnten Jod (Jean Tomasi et al. Nuclear Technology, Band 111 (1995) S. 133).

Ferner sind die dem Uran benachbarten erzeugten Kerne auch zumeist langlebig. Ein TPU-Reaktor von 900 MW (elektrisch) erzeugt pro Jahr 138 kg Plutonium-239, 52.8 kg Plutonium-240, 10 kg Neptunium-237, 5.1 kg Americium-241 oder 0.7 kg Curium-244 und andere Nachbarisotope in kleineren Mengen. Plutonium-239 kann weiter zu Mischoxyd (MOX) verarbeitet werden und in Kernkraftwerken als Brennstoff dienen. Das wird z. B. in Japan getan wo dieses Plutonium als Energievorrat für die Zukunft aufbewahrt wird. Von den 430 zivilen Kernkraftwerken sind 800 Tonnen Plutonium im Reaktorabfall und 200 Tonnen sind in MOX wiederaufbereitet. Vom Waffenarsenal sind 400 Tonnen vorhanden aus dem fortschreitenden Waffenabbau (Nature Band 384 (1996) S. 599). Nichtsdestoweniger scheinen im USA-Ministerium für Energie gute Gründe zu bestehen,

nicht der Verwendung von Plutonium als MOX für die Energieerzeugung zu folgen, sondern dieses durch Vitrifikation zu speichern, obwohl das potentiell einschließt, daß die gespeicherten Güter aus ihren verborgenen Plätzen entwendet und das chemisch leicht extrahierbare Plutonium von fraglichen Regierungen oder kriminellen Mächten zur Waffenherstellung verwendet werden kann.

Aus offensichtlichen Gründen ist es ein wichtiges Ziel, das Plutonium völlig zu beseitigen durch Kernumwandlung in chemisch unterschiedliche Kerne, z. B. in Uran, wobei die Isotope in Uran eingeschmolzen werden können, von wo eine Separation von Isotopen äußerst teuer und schwierig ist. Diese Art von Kernumwandlungen (Transmutationen) sind in der Tat möglich durch Einwirkung von Ionenstrahlen mit mehr Energie als 10 MeV pro Nukleon oder durch Spaltungsprozesse mit bis zu 10 GeV Protonen. Da Beschleuniger dazu sehr teuer sind und im Hinblick darauf, daß die Ionenströme sehr klein sind, ist keine ökonomische Lösung von dieser Seite in Sicht. Die Erfindung, beschrieben im vorliegenden Patent, besteht in der preisgünstigen Technik, Plutonium völlig zu beseitigen als auch Nuklide anderer langlebiger Isotope, die in großen Mengen als Kernreaktorabfall entstehen, für Transmutation in stabile Nuklide.

b. Die elektrolytische Zelle nach der Beschreibung von USA Patent Nr. 5,494,559 wurde erfunden zur Elektrolyse von Wasser für die Erzeugung von Wänden. Entgegen allen Erwartungen, führte der Gebrauch dieser Zellen zur Entdeckung im Miley-Patterson Experiment (G.H. Miley and J.A. Patterson, Nuclear Transmutation in Thin-Film Nickel coatings undergoing Electrolysis, Infinite Energy, Band 2, July-August No. 9, S. 19 (1996)), wonach Kernumwandlungen (Transmutationen) erzeugt werden. Alle diese Reaktionen verliefen innerhalb des Wirtsmaterials wie in o.a. Patent beschrieben ist und ohne daß anderes Material in die Reaktion hinzugefügt wurde außer Protonen und Deuteronen, die aus dem Elektrolyten heraus in das Wirtsmetall gelöst wurden. Die Wirtsmaterialien sind Metalle wie Palladium Nickel, Titan und einige wenige andere mit der Fähigkeit, Wasserstoff oder dessen Isotope in großen Mengen (z. B. ein Atom per Wirtsatom) zu lösen.

Der physikalische Mechanismus des Zustandes der gelösten Wasserstoffatome wird von anderen Autoren grundsätzlich verschieden betrachtet. Die meisten nehmen an, daß das Wasserstoffatom fest mit einem Kristallpunkt innerhalb des Gitters des Wirtsmetalls steht. Der theoretische Hintergrund für das oben erwähnte Miley-Patterson-Experiment wird dagegen auf das Modell begründet, daß die Wasserstoffionen eine Art exotisches Maxwellgas innerhalb des Wirtsmetalls bilden (siehe H. Hora, G.H. Miley et al., in Emerging Nuclear Energy Systems 1989, Herausgg. v. U. von Möllendorf und B. Goel (World Scientific, Singapur 1989) S. 322; H. Hora, L. Cicchitelli, G.H. Miley et al. Nuovo Cimento 130 (1990) 393), dessen sehr wenigen energetischen Elektronen nach der Maxwellverteilung in einer Entfernung von wenigen Picometer reagieren wobei eine Abschirmung von der Coulombabstoßung um einen Faktor z. B. 14 erfolgt. Das ist vorzugsweise möglich in der schwimmenden Elektronenschicht an der Metalloberfläche oder in den Zwischenschichten von einer Anzahl von Metallschichten, deren Fermienergie verschieden ist (H. Hora, et al, Physics Letters A175, 138 (1993)). Der Vorteil des Gebrauches von Vielfachschichten von Wirtsmetallen mit unterschiedlichem Fermineiveau wurde zuvor u. a. in der Veröffentlichung n Physics Letters publiziert und in den darin enthaltenen Zitaten erklärt.

Das neuartige Phänomen im Miley-Patterson-Experiment liegt darin, daß die Ionen des Wasserstoffs oder seiner Isotope nicht nur untereinander reagierten – wie von vielen Au-

toren berichtet wird mit der Erzeugung von Tritium und Helium und großer Mengen von Energie. Das Neue war, daß eine große Zahl von Isotopen aus dem weiten Bereich des periodischen Systems produziert wurden. Das ist ein neues physikalisches Phänomen, das "niederenergetische Kernreaktionen" (low energy nuclear reactions (LENuR) bezeichnet wird.

KURZE ZUSAMMENFASSUNG DER ERFINDUNG

Die wesentliche Neuheit der Erfindung gegenüber allen vorangegangenen Experimenten und allen bekannten Erkenntnissen besteht in der Tatsache, daß anstelle des alleinigen Gebrauchs des Systems Wirtsmetall plus Wasserstoff oder dessen Isotope, andere Nuklide hinzugefügt werden. Diese Erfindung benützt hinzugefügte Materialien, die in die Metallschichten mit hoher Absorption von Wasserstoff oder dessen Isotope oder in das Trägermaterial (Support) für die Metallschichten eingebracht sind. Die Zusatzmaterialien werden dann in die Kernreaktionsprozesse einbezogen, und die Auswahl bestimmter Isotope führt zur Transmutation in gewünschte andere Isotope. Ausgewählte Isotope sind entweder langlebiges radioaktives Abfallmaterial von Kernreaktoren oder solche mit gefährlichen Folgen nach dem Non-prolifationsvertrag, oder aber stabile und ungefährliche Isotope. Die Auswahl der Isotope richtet sich nach den verschiedenen Arten des wissenschaftlichen, technologischen oder medizinischen Anwendungen.

Das Trägermaterial kann aus Mikrokugeln aus Glas oder Plastik bestehen oder aus anderen Materialien, deren Oberfläche für die Aufbringung der Metallschichten des Wirtsmaterials geeignet präpariert wurden. Die Einfügung des Zusatzmaterials in das Trägermaterial und in das Wirtsmaterial wird durch Legieren oder durch Lösen herbeigeführt.

Es ist daher eine Gegenstand der Erfindung, vorzugsweise Glas-Mikrokugeln ans Trägermaterial und Beschichtungen mit Palladium, Nickel, Titan, Zr oder Mischungen dieser Materialien zu verwenden, wie unter "HINTERGRUND DER ERFINDUNG" beschrieben wurde oder ähnliche oder andere für die beabsichtigte Transmutationen.

Es ist noch ein weitere Gegenstand der Erfindung, Wärme während der LENuR-Reaktion zu erzeugen.

KURZBESCHREIBUNG DER ABBILDUNG

Bild 1 beschreibt die Geometrie der Mikrokugeln

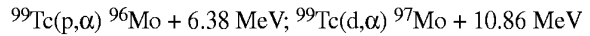
DETAILLIERTE BESCHREIBUNG DER ERFINDUNG

Bild 1 beschreibt die Zusammensetzung der Mikrokugeln. T ist das Trägermaterial, das aus Mikrokugeln aus Plastikmaterial oder aus Glas, Keramik oder einem reinen oder legierten Metall besteht. Die Schicht W ist das Wirtsmetall aus Palladium, Nickel, Titan, Zr oder einem der bekannten Metalle mit einem Absorptionsvermögen von mindestens 1% Wasserstoff. Der Elektrolyt E wird verwendet in derselben Art wie in USA-Patent 5,319,688 beschrieben wurde.

Der Elektrolyt E ist entweder eine Lösungen gewöhnlichem Wasser oder von schwerem Wasser je nach dem Zweck von einer Protonen (p-) oder einer Deuteronen (d-) Reaktion für die zusätzlich in W und/oder T eingebrachten Isotope. Die niederenergetischen Kernreaktionen mit p- oder d- finden statt an den Zwischenschichten, den Schichten W und dem Trägermaterial T oder an der Oberfläche gegen der Elektrolyten. Volumenreaktionen des Niederenergetyps sind möglich. Zusätzlich zu den initiierten p- oder d-Reaktionen finden Sekundärreaktionen zwischen den erzeugten Isotopen und den Kernen im Material von W und T

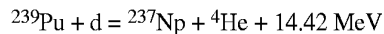
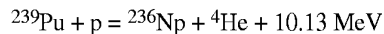
statt.

Typische Fälle zur Beseitigung langlebiger radioaktiver Isotope aus Kernkraftwerksabfällen sind entsprechend der Erfindung nach Einverleibung in die LENuR-Reaktionsbereiche von W und T nach **Fig. 1**

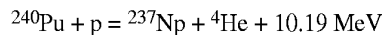


die zu stabilen Kernen Führen. Auch die folgenden Fälle von Reationen führen zu stabilen Transmutationsprodukten: $^{129}\text{I}(p,\alpha) \ ^{126}\text{Te} (+6.47 \text{ MeV})$; $^{129}\text{I}(d,\alpha) \ ^{127}\text{Te} (+10.46 \text{ MeV})$; $^{135}\text{Cs}(p,\alpha) \ ^{132}\text{Xe} (+6.34 \text{ MeV})$; $^{135}\text{Cs}(d,\alpha) \ ^{133}\text{Xe} (+10.7 \text{ MeV})$; $^{107}\text{Pd}(p,\alpha) \ ^{104}\text{Rh} (+3.47 \text{ MeV})$; $^{107}\text{Pd}(d,\alpha) \ ^{105}\text{Rh} (+10.17 \text{ MeV})$ and $^{93}\text{Zr}(p,\alpha) \ ^{90}\text{Y} (+4.26 \text{ MeV})$. In einigen Fällen, z. B. $^{126}\text{Sn}(p,\alpha) \ ^{123}\text{In} (+2.278 \text{ MeV})$; $^{126}\text{Sn}(d,\alpha) \ ^{124}\text{In} (+5.79 \text{ MeV})$ ergeben sich Nuklide mit schnellem Betazerfall, die schließlich zu folgenden stabilen Kernen führen: ^{123}Sb bzw. ^{124}Sn . Die d-Reaktion mit ^{93}Zn kann nicht angewandt werden da damit langlebiges ^{91}Nb erhalten wird, es sei denn, daß man dann auf dieses Reaktionsergebnis genauso die beschriebene Methode zur Beseitigung langlebiger Isotope anwendet.

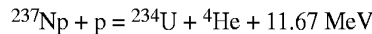
Für die Beseitigung des besonders wichtigen Plutonium-239-Isotopes mit 2.4×10^4 Jahren Halbwertszeit erfolgen erfindungsgemäß die Reaktionen die folgenden Art



während das folgende Isotop mit 6537 Jahren Halbwertszeit in der folgenden Weise reagiert



Die Isotope Neptunium-236 und Neptunium-237 mit den Halbwertszeiten von 1.55×10^5 bzw. 2.14×10^5 Jahren werden meist als harmlos betrachtet, aber auch in diesem Fall ist die Transmutation möglich entsprechend der Erfindung



wobei ein Uranisotop erhalten wird, das als harmlos betrachtet wird, wenn es mit anderen Uranisotopen zusammengeschmolzen wird.

Anstelle eines Elektrolyten E kann man auch Gas oder Plasma von Wasserstoff, Deuterium oder Tritium verwenden und die Gleichgewichtstemperatur über einen weiten Bereich bis zum Schmelzpunkt über einige hundert Grad variieren, gerade so, daß die Schichten W und das Trägermaterial T nicht schmelzen. Anstelle von Plasma kann man auch chemische Verbindungen von Wasserstoff und/oder seiner Isotope verwenden, von denen der Wasserstoff durch Dissoziation bei höherer Arbeitstemperatur freigesetzt wird. An Stelle der Mikrokugeln kann man auch hochdisperses Palladium, z. B. Palladium-Schwarz verwenden mit einer Mikrogranulation bis herab zu 500 nm Durchmesser oder Kluster von Palladium, Nickel, Titan oder ähnliche stark Wasserstoff absorbierende Metalle. Diese Granulate können auch als Kluster produziert werden mit viel kleinerem Durchmesser mittels Sprühmethoden zur Klustererzeugung. Entsprechend der Erfindung wird dann das Einschließen des hinzuzufügenden Materials während dieser Klusterproduktion oder durch Anwendung verwandter Methoden vorgenommen.

Entsprechend der Erfindung kann das Einbringen des zusätzlichen Materials (z. B. des langlebigen Reaktorabfalls, des Plutoniums oder anderweitiges interessanter Nuclide)

durch Kondensatin dieser Atome oder chemischen Verbindungen mit diesen Atomen auf die Oberfläche der Mikrosphären oder die hochdispersen Metalle vorgenommen werden. Für die Verbesserung der Oberflächenprozesse für die Transmutationsreaktionen zur Kernumwandlung unter Benutzung der Erfindung wird das Zusatzmaterial auf die Schichten L aufgebracht und durch thermische Diffusion verteilt. Das alles bezieht sich auf den Oberflächenprozeß von L oder auf die hochdispersen Wasserstoff absorbierenden Metalle. Im Fall der Benutzung des Trägermaterials werden die Additons-Kerne als Atome oder chemische Verbindungen erstmals auf T aufgebracht bevor die Schichten auf W auf T hergestellt werden. Wieder wird durch eine Wärmebehandlung der Vorgang verbessert durch thermische Diffusion der zusätzlich aufgebrachtene Atome je nach Tiefe von W und T.

Wenn W als eine Vielschichtanordnung besteht, z. B. Ni-Pd-Ni-Pd-Ni etc. damit schwimmende Elektronenschichten erzeugt werden, werden die zusätzlichen Atome mechanisch zu den Zwischenschichten bewegt oder von der T-W Grenzfläche oder der EW Oberfläche mittels Diffusion der Atome oder der chemischen Verbindungen der zusätzlichen Materialien auf jedes der Metalle (z. B. Ni, Pt . . .).

Im Hinblick auf die große Menge von Kernreaktorabfall oder die Plutoniumbeseitigung durch den Oberflächenprozeß der Erfindung wird die Technik der Erzeugung größtmöglicher Oberflächen mittels Oberflächenprozessen verwendet. Großdimensionierte Anlagen erlauben eine Beseitigung des langlebigen Abfalls der Kernkraftwerke und des Plutoniums zu niedrigen Kosten.

Patentansprüche

1. System zur Transmutation von Isotopen bestehend aus:
 - langlebigen Isotopen aus dem Abfall von Kernspaltungsreaktoren;
 - Plutonium-239 und Isotopen von Nachbarelementen;
 - ausgewählten Isotopen zur Transmutation in andere Isotope oder Elemente gewünschter Eigenschaften;
 - gekennzeichnet dadurch**, daß diese hinzugefügt werden zu:
 - Oberflächen gegen einen Elektrolyt oder eine gasförmige oder Plasma-Atmosphäre;
 - Zwischenschichten oder Volumenbereiche von Vielschichtstrukturen;
 - Grenzbereichen gegen ein Trägermaterial oder in benachbarte Volumenbereiche von Metallen oder Metallschichten oder Vielfachschichten bestehend aus Metallen mit der Fähigkeit, mehr als 1 Atomprozent von Wasserstoff oder seiner Isotope zu absorbieren.
2. Ein System nach Anspruch 1, gekennzeichnet dadurch, daß:
 - die Metallschichten auf Mikrokugeln als Trägermaterial hergestellt werden.
3. Ein System nach Anspruch 1, gekennzeichnet dadurch, daß:
 - die Metallschichten hochdisperses schwarzes Material sind oder mit Klustermethoden erzeugt sind.
4. Ein System nach Ansprüchen 1 bis 3, gekennzeichnet dadurch, daß:
 - ein Elektrolyt die Oberfläche bedeckt, in dem Wasserstoff oder dessen Isotope enthalten ist.
5. Ein System nach Anspruch 4, gekennzeichnet dadurch, daß:
 - ein elektrischer Strom im Elektrolyten erzeugt wird.
6. Ein System nach Ansprüchen 1 bis 3, gekennzeichnet dadurch, daß:

die Oberfläche der Metall schichten von einer Oberfläche von Wasserstoffgas oder seiner Isotope oder Mischungen davon bedeckt wird.

7. Ein System nach den Ansprüchen 1 bis 3, gekennzeichnet dadurch, daß:

die Oberfläche der Metallschichten von voll oder teilweise ionisiertem Plasma von Wasserstoff oder seiner Isotope oder Mischungen davon bedeckt wird.

8. Ein System nach den Ansprüchen 1 bis 3, gekennzeichnet dadurch, daß:

die Einbringung des Wasserstoffes oder seiner Isotope und oder der addiriven Reaktionsmaterialien in die Metallschichten oder Vielfachschichten durch Dissoziation von Materialien oder Verbindungen kommt, die als Bedeckung der Metallschichten vorliegen.

9. Ein System nach dem Anspruch 5, gekennzeichnet dadurch, daß:

die Arbeitstemperatur verändert wird zwischen dem Schmelzpunkt des Elektrolyten und dessen Verdampfungstemperatur.

10. Ein System nach den Ansprüchen 6 und 7, gekennzeichnet dadurch, daß:

die Arbeitstemperatur zwischen der Kondensations-temperatur des Wasserstoffes oder seiner Isotope und dem niedrigeren der Schmelztemperaturen entweder des Trägermaterials oder der der Metallschicht ist.

11. Ein System nach den Ansprüchen 1 bis 11, gekennzeichnet dadurch, daß:

die erzeugte Wärme für die Erzeugung von Elektroenergie oder für Heizzwecke oder chemische Prozeßwärme oder zu Klimaanlage von Häusern verwendet wird.

12. Ein System nach Anspruch 11, gekennzeichnet dadurch, daß:

Die Regelung der Wärme durch Veränderung der Nachlieferung von Wasserstoff oder seiner Isotope durch Variation der Ionenkonzentration im Elektrolyten, Variation des Stromes im Elektrolyten oder Variation der Konzentration im Gas oder Plasma erfolgt.

13. Ein System nach Anspruch 11, gekennzeichnet dadurch, daß:

die Regelung der Temperatur in dem System durch Variation der Reaktionstemperatur durch Regelung des Wärmeaustausches erfolgt.

Hierzu 1 Seite(n) Zeichnungen

- Leerseite -

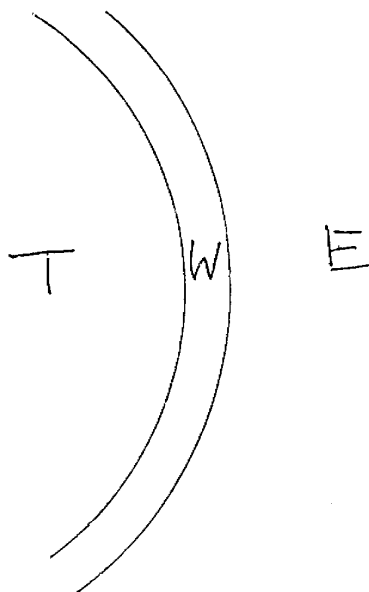


Bild 1.