

KFK-227

# KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE

März 1964

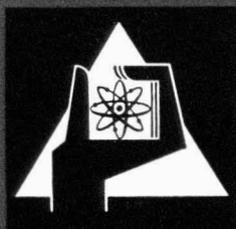
KFK 227

Betriebsabteilung Allgemeine Anlagen — Entaktivierung  
Erfahrungen in der Aufbereitung der radioaktiven Abwässer  
des Kernforschungszentrums Karlsruhe  
in den Jahren 1961 und 1962

H. Krause

Gesellschaft für Kernforschung m. B. H.  
Zentralbücherei

7. OKT. 1964



GESELLSCHAFT FÜR KERNFORSCHUNG M. B. H.  
KARLSRUHE

HERAUSGEBER: Baudirektor Dr. H. Adam, Direktor der Staatl. Ingenieurschule Kiel · Prof. Dr. H.-J. Born, Direktor des Inst. für Radiochemie der Techn. Hochschule München · Baurat Dr. K. Diebner, Dozent an der Staatl. Schiffingenieurschule Flensburg · Prof. Dr. W. Hanle, Direktor des Physikalischen Institutes der Universität Gießen · Prof. Dr.-Ing. K. Illies, Direktor des Inst. für Schiffmaschinen und Dampfkessel der Techn. Hochschule Hannover · Prof. Dr. M. Pollermann, Kernforschungsanl. Jülich, Zentralinstitut für Reaktorexperimente · G. Thiemig, München · TECHNISCHER BEIRAT: Dr. E. Böhm, Gutehoffnungshütte, Oberhausen-Sterkrade · Dr.-Ing. F. Jeitner, Siemens-Planiawerke AG, Meitingen · Ministerialdirigent Dr. J. Pretsch, Bundesministerium für wissenschaftliche Forschung, Bad Godesberg · Gen.-Dir. van der Spek, Belgonucléaire, Brüssel · Prof. Dr.-Ing. R. Spolders, Rhein Stahl Hüttenwerke AG, Essen · Dr. A. Weckesser, Versuchsatomkraftwerk Kahl GmbH.

## Gleichzeitig Publikationsorgan

der Studiengesellschaft zur Förderung der Kernenergieverwertung in Schiffbau und Schifffahrt e.V., Hamburg 36, Neuer Wall 34,

der Isotopen-Studiengesellschaft e.V., Frankfurt/Main, Karlstraße 21

## Erfahrungen in der Aufbereitung der radioaktiven Abwässer des Kernforschungszentrums Karlsruhe in den Jahren 1961 und 1962

### Experiences in the treatment of low-level radioactive effluents in the Kernforschungszentrum Karlsruhe during 1961 and 1962

Von H. Krause Aus dem Kernforschungszentrum Karlsruhe

Gesellschaft für Kernforschung m. b. H.  
Zentralbücherei

7. Okt. 1964

#### 1. Einleitung

Zu Beginn des Jahres 1961 wurde im Kernforschungszentrum Karlsruhe die Anlage zur Dekontamination der in den Laboratorien und Reaktoren anfallenden und in ihrer Zusammensetzung stark schwankenden radioaktiven Abwässer in Betrieb genommen. Bis Ende 1962 wurden darin rund 5300 m<sup>3</sup> radioaktiver Abwässer aufbereitet. Das ist zwar eine kleine Zahl im Vergleich zu ausländischen Kernforschungszentren, doch wurden in Deutschland bisher noch an keiner Stelle so große Mengen radioaktiver Abwässer aufbereitet. Deshalb sollen in dem vorliegenden Bericht, einem vielfach geäußerten Wunsch entsprechend, die Ergebnisse der zweijährigen Betriebszeit sowie die bisherigen Erfahrungen ausführlich beschrieben und diskutiert werden.

#### 2. Beschreibung der Anlage

Die Anlage (Abb. 1), in der die radioaktiven Abwässer z. Z. dekontaminiert werden, stellt die erste dieser Art dar, die in Deutschland gebaut wurde [1-4]. Da zum Zeitpunkt der Planung noch keine eigenen Erfahrungen in der Aufbereitung radioaktiver Abwässer vorlagen, errichtete man zunächst nur eine Art Technikumsanlage. Sie umfaßt Apparaturen für chemische Fällung, Ionenaustausch und Verdampfung. Um einen möglichst großen Spielraum für Experimente zu haben, wurde an Stelle eines kontinuierlichen Verfahrens der Chargenbetrieb gewählt. Die Kapazität der Anlage wurde so bemessen, daß die radioaktiven Abwässer, die im Kernforschungszentrum Karlsruhe während der ersten drei bis fünf Jahre anfallen, aufbereitet werden können. Aufgrund der dabei gesammelten Erfahrungen wollte man später einen neuen größeren Betrieb bauen.

Die Dekontaminationsanlage für radioaktive Abwässer ist eine unterkellerte, zweigeschossige Apparatehalle von 21 m × 8 m × 6 m mit angebautem Labor- und Sozialtrakt. Die Halle nimmt die Fällanlage, die Ionenaustauschanlage, den Dünnschichtverdampfer, zahlreiche Behälter sowie je eine Übernahmestation für stark und schwach radioaktive Abwässer auf. Von einer Schaltwarte aus wird der Betriebsablauf überwacht. Die verschiedenen Pumpen, Ventile, Rührer usw. werden meist an Ort und Stelle geschaltet. Neben der Apparatehalle steht ein Behältergebäude für die angelieferten radioaktiven Abwässer mit 3 Speichertanks zu 100 m<sup>3</sup>. Der Fußboden der beiden Bauten ist als wasserdichte Wanne ausgebildet. Die Halle hat einen 6fachen Luftwechsel pro



Abb 1. Außenansicht der Dekontaminationsanlage für radioaktive Abwässer

Stunde. Die Raumluft wird durch Schraubenlüfter direkt ins Freie geleitet, die Abluft aus den einzelnen Apparaturen und Behältern über Absolutfilter geführt.

Die meisten Apparaturen sind aus Stahl, wobei die Lagerbehälter mit Schutzanstrichen (Epikote, DD-Lacke usw.) versehen, die Fällbehälter, Ionenaustauschersäulen und Schlammbehälter gummiert sind. Die Leitungen bestehen in der Regel aus Kunststoff. Der Verdampfer einschließlich der Zu- und Ableitungen ist aus Edelstahl.

### 2.1 Chemische Fällanlage

Die chemische Fällanlage (Abb. 2) enthält zwei konische Fällbehälter von je 10 m<sup>3</sup> Inhalt, die mit einem schnell laufenden Rührwerk ausgestattet sind. Aus der Chemikaliendosierstation im Obergeschoß des Gebäudes, die aus 5 Vorratsbehältern zu je 80 l besteht, werden die Chemikalien zugeführt. Die Fällbehälter besitzen außer einem Bodenablauf zwei seitliche Ablaufstutzen, durch die das Wasser in verschiedenen Höhen abgezogen werden kann.

Für die Filtration der radioaktiven Wässer nach der Fällung steht ein Kerzendruckfilter zur Verfügung. Es besteht aus 7 Graphitkerzen mit einer Filterfläche von 7 m<sup>2</sup>. Über ein Anschwemmgefäß können im Kreislauf Filterhilfsmittel auf die Kerzen aufgebracht werden. Das Filtergehäuse hat einen aufklappbaren Boden für den Austrag der Filterrückstände. Zur Fällanlage gehören weiterhin zwei Tanks von je 10 m<sup>3</sup> Inhalt, in denen die Filtrate bis zur Aktivitätskontrolle aufgenommen werden. Die Fällschlämme können in zwei Behältern zu je 3 m<sup>3</sup> gelagert werden. Mit Ausnahme des Kerzendruckfilters sind die Apparaturen der chemischen Fällanlage ohne Strahlenabschirmwände aufgebaut.

### 2.2 Ionenaustauscheranlage

Die Ionenaustauscheranlage (Abb. 3) besteht aus 6 Säulen mit einer Gesamtfüllung von ca. 4 m<sup>3</sup> Austauscherharzen. Die ersten 5 sind in der Regel mit folgenden organischen Austauschern gefüllt: schwach sauer, stark sauer, schwach basisch, stark sauer, stark basisch. Die sechste Säule ist ein Mischbettfilter. Nicht mehr verwendbare Ionenaustauscher können hydraulisch in einen Harztransport- bzw. Lagerbehälter gespült werden. Dort werden sie von einem Sieb zurückgehalten, während das Wasser so lange im Kreis geführt wird, bis alle Harze ausgespült sind. Das Einbringen neuer Austauscher kann in umgekehrter Richtung erfolgen. Die Austauscher stehen hinter einer Abschirmwand von 60 cm Schwerbeton, durch die die Probenahmeleitungen und die verlängerten Spindeln der Ventile geführt sind. Zwei Lager-

behälter von je 12,5 m<sup>3</sup> Inhalt dienen zur Aufnahme der Regenerierwässer. Weiterhin sind je ein Vorratsbehälter für Säure und Lauge vorhanden.

### 2.3 Verdampferanlage

Für die Verdampfung steht ein Dünnschichtwischblattverdampfer mit einer Leistung von 150 l/h zur Verfügung. Der Verdampfer hat die Form eines Zylinders von 16 cm Innendurchmesser und 210 cm Höhe und wird von außen mit Dampf beheizt. Im Innern rotiert ein Wischersystem, das aus einer Welle mit aufgesetzten beweglichen Wischblättern besteht. Das Konzentrat wird in dem unter dem Verdampfer stehenden Sammelgefäß aufgefangen und läuft von dort in eine heiße Zelle, in der es in Fässer abgefüllt und in diesen mit Zement vermengt wird. Der Verdampfer selbst ist durch 40 cm Schwerbeton abgeschirmt. Die Brüden passieren Prallblechabscheider, eine Raschigkolonne und werden dann in einem Kondensator niedergeschlagen. Zur Aufnahme des Destillates stehen zwei Behälter von je 1 m<sup>3</sup> zur Verfügung.

### 2.4 Behälterlager

In der Dekontaminationsanlage sind ein Sammelbehälter von 50 m<sup>3</sup> Inhalt für schwach aktive Wässer sowie 4 abgeschirmte Behälter zu 3 m<sup>3</sup> für höher aktive Flüssigkeiten vorhanden. Zwei Tanks zu 12,5 m<sup>3</sup> für die Lagerung der Regenerierabwässer wurden bereits erwähnt. Für die Übernahme von Wässern (Abb. 4), die bei evtl. Reaktorbetriebsstörungen anfallen, wird ein 25-m<sup>3</sup>-Tank ständig freigehalten. Außerhalb der Dekontaminationsanlage steht ein Behältergebäude mit 3 Lagertanks für radioaktive Abwässer mit je 100 m<sup>3</sup> Inhalt. Das Behälterlager umfaßt weiterhin zwei 50-m<sup>3</sup>-Behälter für die dekontaminierten Abwässer.

## 3. Verfahrensgang

### 3.1 Chemische Fällung

Die schwach radioaktiven Abwässer werden über einen Fett- und Schlammabscheider in Chargen von je 10 m<sup>3</sup> den beiden Fällbehältern zugeführt (Abb. 4). Nach einer Voruntersuchung werden unter Rühren die Chemikalien zudosiert. Da in der Regel die Zusammensetzung des Wassers hinsichtlich der Radionuklide nicht bekannt ist, wird am häufigsten die bekannte Phosphat-Eisenhydroxid-Fällung [5—12] ausgeführt.

Es werden dem Wasser pro Kubikmeter ca. 50 g FeCl<sub>3</sub> und dann Ca(OH)<sub>2</sub> bis zu einem p<sub>H</sub>-Wert von 9,5 zugesetzt. Nach Dosierung eines Überschusses von Na<sub>3</sub>PO<sub>4</sub> wird der p<sub>H</sub>-Wert mit NaOH auf 11 bis 11,5 gebracht.

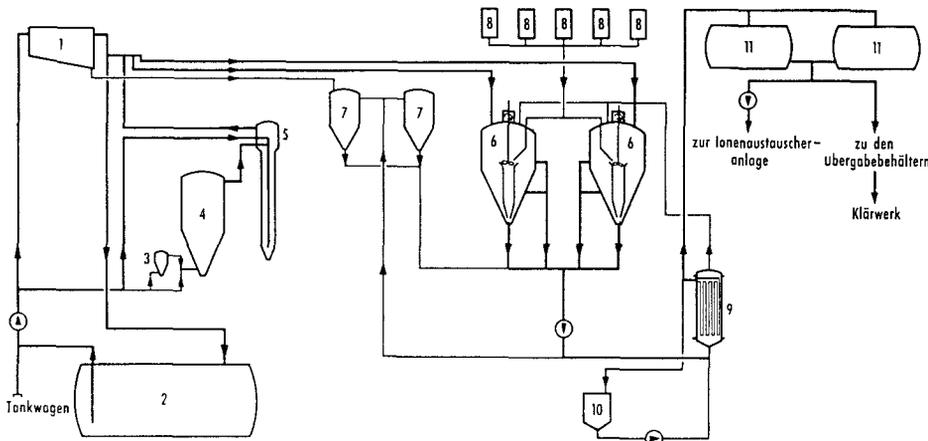


Abb. 2: Fällanlage mit vorgeschalteter Entkarbonisation. 1 Fett- und Schlammabscheider, 2 Sammelbehälter (Rohr-wasser), 3 Kalkvorlage, 4 Kalksättiger, 5 Entkarbonisator, 6 Fällbehälter, 7 Schlammbehälter, 8 Dosierbehälter, 9 Kerzendruckfilter, 10 Waschsäurebehälter, 11 Zwischenbehälter

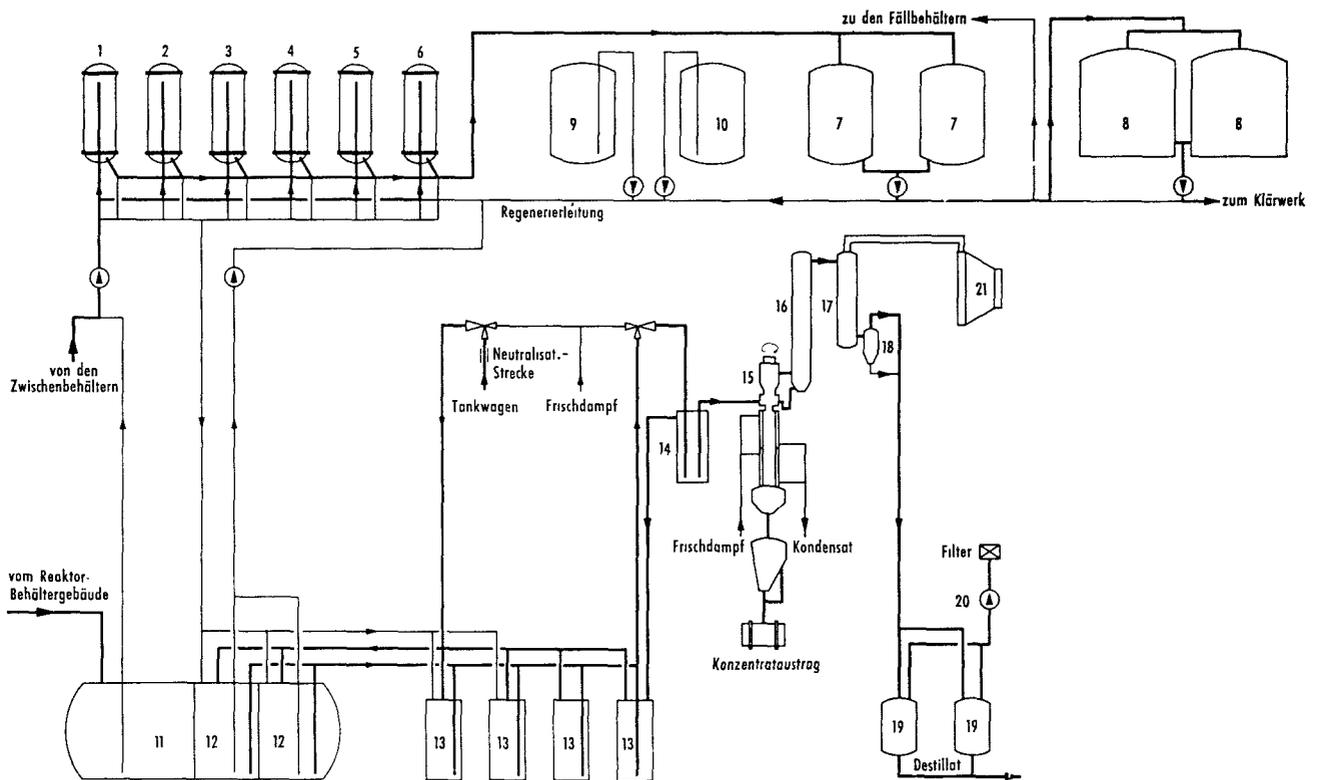


Abb 3: Ionenaustauscher- und Verdampferanlage. 1 Ionenaustauscher (mittelstark sauer), 2 Ionenaustauscher (mittelstark sauer), 3 Ionenaustauscher (schwach basisch), 4 Ionenaustauscher (stark sauer), 5 Ionenaustauscher (stark basisch), 6 Ionenaustauscher (Mischbett), 7 Endbehälter, 8 Übergabebehälter,

9 Regenerierlage, 10 Regeneriersäure, 11 Sammelbehälter, 12 Zwischenregenerat- und Neutralisationsbehälter, 13 Sammelbehälter, 14 Zwischenspeicher, 15 Dunnschichtverdampfer, 16 Kolonne, 17 Kondensator, 18 Zyklonabscheider, 19 Destillatbehälter, 20 Vakuumpumpe, 21 Kühlventilator

Gelegentlich wird auch eine Karbonat-Eisenhydroxid-Fällung ausgeführt [13—16]. Sofern das Wasser bekannte Radionuklide enthält, greift man auch zu spezifischen Fällungen. Die häufigste unter ihnen ist die mit Cyanoferraten bei Anwesenheit von  $^{137}\text{Cs}$  [17—19].

Nach einer Rührzeit von 5 bis 10 min läßt man die Niederschläge dekantieren und zieht nach frühestens 2 Stunden das überstehende Wasser durch die seitlichen Stutzen aus den Fällbehältern ab. Die dekantierten Wässer werden über ein Kerzendruckfilter geleitet, während die Fällschlämme so lange im Fällbehälter bleiben, bis dessen konischer Teil nach mehreren Fällungen mit Niederschlägen gefüllt ist. Dann wird auch der Schlamm über das Kerzendruckfilter filtriert. Nach einer gewissen Filtrationszeit setzt der Kuchen, der sich auf den Kerzen aufbaut, der Filtration einen so hohen Widerstand entgegen, daß er entfernt werden muß. Das

geschieht in der Weise, daß das Wasser aus dem Filtergefäß durch Preßluft verdrängt und die Filterschicht teilweise entwässert wird. Dann wird der Filterkuchen durch einen entgegengesetzt geführten Druckluftstoß von den Kerzen abgeworfen. Er fällt in einen Trichter und wird aus diesem von einem Rümer in ein darunter stehendes Faß befördert. In dem Faß befindet sich ein Polyäthylensack, der an dem Trichter befestigt ist und nach Füllung verschweißt wird. Anschließend wird das Faß verschraubt, auf einer Schienenbahn aus dem Gebäude herausgefahren und mit einem Gabelstapler in das Lager für radioaktive Abfälle transportiert. Durch dieses Verfahren kann der Schlamm ohne direkte Berührung ausgetragen und abgefüllt werden.

Das Filtrat aus der chemischen Fällung wird in Zwischenbehälter geleitet, wo eine Probe entnommen und auf Aktivität untersucht wird. Sofern diese unter den Normen der Strahlenschutzverordnung für Trinkwasser liegt, wird das Wasser in die Übergabebehälter gepumpt. Im anderen Fall wird es über die Ionenaustauscher geleitet.

In der ersten Zeit wurde das Wasser vor der Fällung über einen Schnell-Entkarbonisator geleitet (Abb. 2). Dieser sollte jedoch kontinuierlich betrieben werden, während die übrigen Apparaturen für den Chargenbetrieb ausgelegt sind. Wegen der unregelmäßigen Beschickung verstopfte sich der Entkarbonisator öfters. Die Hauptschwierigkeit lag jedoch darin, daß die im Abwasser stets vorhandenen Schwermetallsalze im alkalischen Medium hydrolysierten und so die Kalziumkarbonatkörner, die als Kontaktmasse dienen sollten, rasch verschmutzten. Aus diesem Grunde brachte die Entkarbonisierung keine guten Ergebnisse und wurde später nicht mehr ausgeführt.

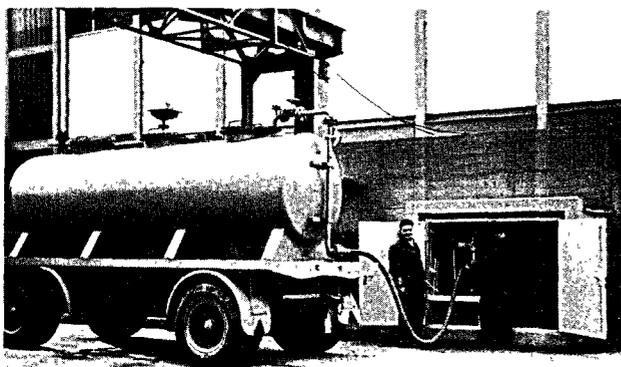


Abb. 4: Übernahme der radioaktiven Abwässer aus dem Tankwagen

### 3.2 Ionenaustausch

Wässer, die aufgrund höherer Aktivität oder sonstiger Eigenschaften (z. B. salzarme Wässer aus den Reaktoren) nicht zur Fällung vorgesehen waren, sowie alle Wässer, deren spezifische Aktivität nach der Fällung noch über der Freigrenze liegt, werden über die Ionenaustauscher (Abb. 6) geleitet [20–27]. Um die Austauschharze vor zu rascher Verschmutzung zu schützen, werden die Flüssigkeiten zuvor über das Kerzendruckfilter filtriert, oftmals auch chemisch geflockt. Das Wasser durchläuft jeweils so viele Austauschersäulen, als nötig sind, um die Aktivität unter die Freigrenze zu bringen. Durch Leitfähigkeits-,  $p_{\text{H}}$ - und Aktivitätsmessungen wird der Betriebsablauf kontrolliert.

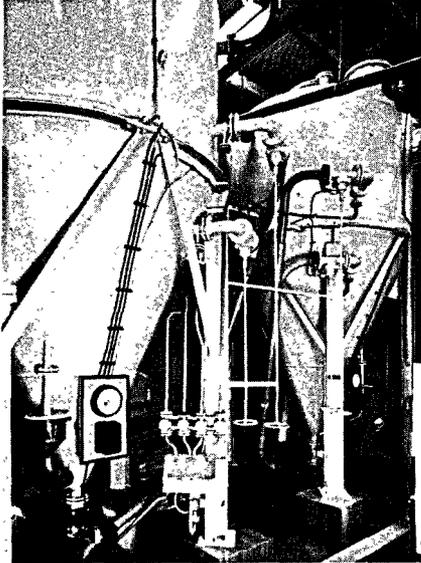


Abb. 5: Fällbehälter

Wenn die Austauscherharze nach Durchgang einer entsprechenden Menge Abwasser erschöpft sind, werden sie regeneriert. Zunächst werden die Harze mit Wasser im Gegenstrom aufgelockert und die mechanischen Verunreinigungen ausgespült. Dann werden die Austauscher in bekannter Weise mit Säure bzw. Lauge behandelt und mit Wasser gewaschen. Die beim Auflockern anfallenden Wässer werden in die Eingangsbehälter für radioaktive Abwässer zurückgepumpt, filtriert, dann nochmals über die regenerierten Austauscher geleitet. Die eigentlichen Regenerierwässer werden gesondert gelagert, durch Vermengen von sauren und basischen Chargen neutralisiert und dann verdampft.

### 3.3 Verdampfung

Zur Verdampfung kommen Wässer, die sich wegen ihrer Zusammensetzung nicht zu Fällung und Ionenaustausch eignen, ferner die in den Labors gesammelten höher aktiven Flüssigkeiten sowie die Regenerierwässer. Diese Flüssigkeiten werden von einer Dampfstrahlpumpe in ein Speisegefäß gefördert, von wo sie in den oberen Teil des unter Vakuum (180 Torr) arbeitenden Wischblattverdampfers eingesaugt werden. Beim Durchlaufen des Verdampfers wird die Flüssigkeit aufkonzentriert, wobei der Zulauf so einreguliert ist, daß ein Konzentrat mit einem Salzgehalt von rund 40% entsteht. Dieses läuft in ein Sammelgefäß, aus dem es in zwei Portionen in ein zur Hälfte mit Zement gefülltes Faß abgelassen wird. Nach Zugabe des ersten Teiles wird das Faß auf einer Faßschleuder gerollt, damit sich Zement und Konzentrat vermengen. Dann wird der zweite Teil des Kon-

zentrates zugegeben und das Faß erneut gedreht. Da der Zement die Flüssigkeit nicht sofort bindet, wird durch das portionsweise Zugeben vermieden, daß radioaktive Lösung überläuft. Der Betonblock, der sich im Faß bildet, schließt die radioaktiven Rückstände fest ein, so daß die Gewähr für eine sichere Lagerung gegeben ist.

Das Abfüllen der Verdampferkonzentrate sowie das Schleudern und Verschließen der Fässer geschieht, von außen bedient, in einer heißen Zelle. Nach der Füllung werden die Fässer ferngesteuert auf einer Schienenbahn abgefahren.

Alle dekontaminierten Wässer werden in den Übergabebehältern von je 50 m<sup>3</sup> Inhalt gesammelt. Wenn ein Tank gefüllt ist, nimmt die Strahlenmeßabteilung eine Probe und prüft sie auf Aktivität. Sofern diese unter den Normen der Strahlenschutzverordnung liegt, wird das Wasser in das Klärwerk gepumpt, wo es zusammen mit den inaktiven Chemieabwässern aus den Instituten neutralisiert, geflockt und entgiftet wird. Die aufbereiteten Chemieabwässer werden zusammen mit den geklärten Fäkalabwässern in den Linkenheimer Altrhein, einen Nebenarm des Rheines, geleitet.

## 4. Betriebsergebnisse

### 4.1 Chemische Fällung

In den ersten 19 Monaten des Berichtszeitraumes wurden alle in Tankwagen angelieferten radioaktiven Abwässer in dem damals einzigen Eingangstank der Anlage zwischengelagert und von dort der chemischen Fällanlage zugeleitet. Eine Trennung der Wässer nach Aktivitäten oder anderen Gesichtspunkten war nicht möglich. Bei dieser Verfahrensweise reichten die bei der chemischen Fällung erzielten Dekontaminationsfaktoren nur aus, um 50% der Wässer unter die Freigrenze zu bringen. Der Rest mußte mittels Ionenaustausch weiterbehandelt werden. Im August 1962 konnte das erweiterte Auffanglager mit 3 Behältern zu 100 m<sup>3</sup> in Betrieb genommen werden. Seit dieser Zeit werden die Wässer nach Aktivität getrennt gesammelt. Zur chemischen Fällung kommen nur noch Wässer, deren  $\beta$ - $\gamma$ -Aktivitätskonzentration unter 10<sup>-3</sup>  $\mu\text{C}/\text{ml}$  liegt. Alle diese Wässer konnten seitdem ohne Ausnahme nach der Fällung freigegeben werden.

Die Dekontaminationsfaktoren, die bei der chemischen Fällung erzielt wurden, liegen im Mittel bei 5 für  $\beta$ ,  $\gamma$  und 30 für  $\alpha$ , wobei die Werte zwischen 1,5 und 12 bei  $\beta$ ,  $\gamma$  sowie 10 und 70 bei  $\alpha$ -Strahlern schwanken. Tab. 1 bringt einige typische Ergebnisse.

Der Grund für die niedrigen Dekontaminationsfaktoren dürfte in erster Linie in der geringen Aktivität der Wässer zu suchen sein. Man muß sich vor Augen halten, daß bei vielen Radionukliden einer Aktivitätskonzentration von

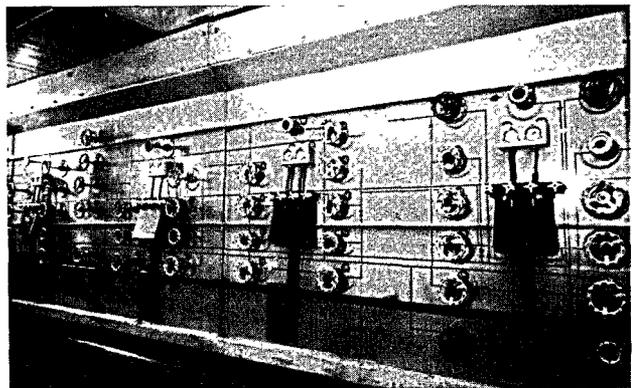


Abb. 6: Blick auf die Regelarmaturen der Ionenaustauscher (die Austauschersäulen stehen hinter der Abschirmwand)

$10^{-6}$  c/m<sup>3</sup> Substanzmassen von  $10^{-9}$  bis  $10^{-7}$  g entsprechen. Solche Werte sind selbst bei Vorhandensein größerer Mengen gleichartiger oder chemisch ähnlicher inaktiver Ionen, die das Löslichkeitsprodukt erniedrigen, schwer zu erreichen.

Tab. 1: Ergebnisse der chemischen Fällung aus zwei Betriebswochen

Aktivitätskonzentration anfangs 10 <sup>-7</sup> µc/ml		Aktivitätskonzentration nach der Fällung 10 <sup>-7</sup> µc/ml		Dekontaminationsfaktor	
α	β, γ	α	β, γ	α	β, γ
13,6	33,3	0,2	6,2	68	5,4
11,2	28,5	0,25	3,5	45	8,1
5,6	13,4	0,2	4,3	29,5	3,1
5,6	13,4	0,25	2,2	22,0	6,1
6,2	13,3	0,2	2,4	32,5	5,5
6,2	13,3	0,3	2,9	18,0	4,6
6,2	14,4	0,2	3,0	32,5	4,8
1,6	10,7	0,1	6,8	11,5	1,6
0,4	33,7	0,1	17,6	4,4	1,9
1,2	51,5	0,1	14,5	8,6	3,6

Auch durch Mitfällung (Mischkristallbildung) und Adsorption lassen sich die Radionuklide nicht leicht in dem Umfang aus dem Wasser entfernen, wie es nötig wäre, um auf Trinkwassertoleranz zu kommen. Es ist zu bedenken, daß bei der Adsorption ein hoher Gehalt an inaktiven Trägern sehr stört.

Nachdem im Kernforschungszentrum Karlsruhe wegen der Vielzahl von Laboratorien mit den verschiedensten Arbeitsrichtungen die Zusammensetzung der Wässer meist nicht bekannt ist, können in der Regel nur unspezifische Fällungen durchgeführt werden. Dabei werden naturgemäß nicht alle Radionuklide unter den günstigsten Bedingungen gefällt. Insbesondere die Anionen, aber auch einige Kationen wie <sup>137</sup>Cs, <sup>106</sup>Ru und andere werden durch die unspezifischen Fällungen nur zu einem geringen Teil aus dem Wasser entfernt.

Bei der chemischen Fällung von etwa 4700 m<sup>3</sup> radioaktiver Abwässer sind rund 40 m<sup>3</sup> Filterschlämme angefallen. Das bedeutet ein Volumenreduktionsfaktor von etwa 1:120. Die Aktivitätskonzentration des Schlammes lag bei  $10^{-3}$  bis  $10^{-4}$  µc/ml, die Dosisleistung an der Außenseite der Lagerfässer meist unter 0,1 mr/h, mit Maximalwerten von 0,2 mr/h (10 cm Abstand). Es hat sich gezeigt, daß im Durchschnitt 50% der radioaktiven Rückstände von den Filterhilfsmitteln herrühren, wobei die Werte je nach Filtrierbarkeit der Niederschläge zwischen 30% und 80% schwanken. Trotz weitgehender Dekontamination der Niederschläge war das Kerzendruckfilter meist nach relativ geringen Durchsätzen verstopft, so daß der Filterkuchen abgeworfen und neues Filterhilfsmittel angeschwemmt werden mußte. Das Kerzendruckfilter hat sich für die Filtration der Fällschlämme als nicht besonders geeignet erwiesen.

#### 4.2 Ionenaustausch

Den Ionenaustauschern wurden in der ersten Zeit, als alle radioaktiven Abwässer einheitlich behandelt wurden, diejenigen Chargen zugeführt, deren Aktivität nach der chemischen Fällung noch über der Freigrenze lag. Später wurden nur noch Wässer mit einer Aktivitätskonzentration (β, γ) von über  $10^{-5}$  µc/ml durch Ionenaustausch dekontaminiert, wobei sie vorher nicht mehr gefällt, sondern nur über das Kerzendruckfilter filtriert wurden. Auf eine vorherige Fällung wurde deshalb verzichtet, weil diese in den meisten Fällen keine Entsalzung, sondern eher eine Erhöhung des Salzgehaltes bringt.

Das Gesamtvolumen der im Berichtszeitraum durch Ionenaustausch behandelten radioaktiven Abwässer beträgt über 2700 m<sup>3</sup>. Die β-Dekontaminationsfaktoren lagen zwischen 10 und 100 mit einem Mittelwert von 30. Die α-Dekontaminationsfaktoren sind höher, können jedoch nicht eindeutig angegeben werden, da die α-Aktivitäten nach dem Ionenaustausch meist beim Nulleffekt liegen.

Tab. 2 gibt Werte, die mit Ionenaustausch in zwei Betriebswochen erzielt wurden.

Bei der Betrachtung der Ergebnisse muß man sich zunächst vor Augen halten, daß die Aktivitätskonzentration der behandelten Wässer nur zwischen  $10^{-6}$  und  $10^{-4}$  c/m<sup>3</sup> lag, mit einem Mittelwert von  $1,2 \cdot 10^{-5}$  c/m<sup>3</sup>. Bei so niedrigen Aktivitätskonzentrationen können die Dekontaminationsfaktoren nicht sehr hoch sein, zumal stets nur so wenig Austauscher Säulen wie unbedingt nötig eingesetzt wurden.

Tab. 2: Ergebnisse des Ionenaustausches aus zwei Betriebswochen

Aktivitätskonzentration anfangs 10 <sup>-7</sup> µc/ml		Aktivitätskonzentration nach dem Ionenaustausch 10 <sup>-7</sup> µc/ml		Dekontaminationsfaktoren	
α	β, γ	α	β, γ	α	β, γ
0,1	565	< 0,1	20	> 1	28,3
0,5	465	< 0,1	20	> 5	23,3
0,5	435	< 0,1	20	> 5	21,8
0,3	360	< 0,1	13	> 3	18,0
0,3	250	< 0,1	16	> 3	15,6
0,1	225	< 0,1	21	> 1	10,7
0,9	190	< 0,1	46	> 9	4,1
0,2	125	< 0,1	3	> 2	41,6
1,0	90	< 0,1	1	> 10	90,0
0,2	995	< 0,1	23	> 2	43,2

Die Anionenaustauscher wurden nur in rund 50% der Fälle, das Mischbett wurde fast überhaupt nicht benutzt. Bei gelegentlich vorkommenden höher aktiven Wässern wurden auch schon Dekontaminationsfaktoren von 500 erreicht. Immerhin ist zu bemerken, daß die Aktivitätskonzentrationen nach der Behandlung meist bei Werten von  $2 \cdot 10^{-7}$  bis  $2 \cdot 10^{-6}$  c/m<sup>3</sup> lagen. Sehr niedrige Aktivitäten sind bei Vorliegen echter Abwässer nicht immer zu erreichen, weil z. B. ungeladene Komplexe und manche Kolloide nicht zurückgehalten werden.

Beim Ionenaustausch fielen im Mittel etwa 8% Regenerierwässer an, bei einem Salzgehalt des Rohwassers von etwa 900 mg/l. Nach dem Eindampfen der Regenerierflüssigkeiten zu einer 40 prozentigen Lösung und Binden des Konzentrates an Zement (1:1) betrug das Verhältnis von dekontaminiertem Wasser zu radioaktiven Rückständen 1:80. Durch Regenerieren in zwei Stufen, wobei jeweils die zweite Regenerierlösung für die erste Behandlung bei der nächsten Regenerierung aufgehoben wird, hätte sich die Menge an radioaktiven Rückständen noch verringern lassen. Für diese Sparregenerierung standen bisher nicht genügend Lagerbehälter zur Verfügung, doch soll in Zukunft nach dieser Methode gearbeitet werden.

Wegen Verschmutzung waren die Austauscherharze nach einer Betriebszeit von rund 1 Jahr nicht mehr weiter verwendungsfähig. Die Austauscher hatten bis dahin etwa 50 Regenerierungen hinter sich. Durch mechanisches Ausspülen des Schmutzes unter kräftigem Rühren und anschließendes Regenerieren mit einem etwa 100 prozentigen

Überschuß an Regenerierchemikalien bei mehrstündiger Einwirkungsdauer konnten die Harze wieder benutzbar gemacht werden.

Es zeigte sich, daß die Harze auch nach der Regenerierung noch eine gewisse Aktivität besitzen, die im Laufe der Zeit immer höher wird. So traten beispielsweise bei Austauschern, die rund 1 Jahr in Betrieb waren, nach der Regenerierung noch Aktivitätskonzentrationen von einigen  $10^{-1}$   $\mu\text{c}/\text{ml}$  auf. Es wurde auch an anderen Stellen bereits festgestellt, daß manche Radionuklide irreversibel an den Austauschern haften.

### 4.3 Verdampfung

Der Verdampfer war im Berichtszeitraum 16 Monate in Betrieb. Während der ersten Zeit kam es mehrfach vor, daß das Wischersystem wegen Kristallisationen im Verdampfer, die auf zu hohe Konzentrierung zurückzuführen waren, festgefressen war. Durch Spülen mit Wasser bzw. verdünnter Salpetersäure konnte der Schaden wieder behoben werden. Durch Einbau eines Amperemeters am Motor kann nunmehr ein beginnendes Festfahren rechtzeitig erkannt und durch vermehrte Einspeisung frischer Lösung verhindert werden. Wischblattverdampfer eignen sich gut, um salzreiche Wasser einzudampfen, doch ist es nicht leicht, bei rasch wechselndem Salzgehalt auf eine konstante Endkonzentration zu kommen.

Die Dekontaminationsfaktoren, die in der Verdampfungsanlage erhalten wurden, lagen zwischen  $10^2$  und  $3 \cdot 10^3$ . Der Grund für diese niedrigen Werte dürfte im wesentlichen darin liegen, daß die Brüdengeschwindigkeit in der Raschigkolonne zu groß ist (etwa 4 m/sec). Dadurch werden Tropfen vom Dampfstrom durch die Kolonne durchgerissen.

Nach etwa 15monatiger Betriebszeit zeigten sich am Verdampfer Korrosionserscheinungen, und zwar in geringem Umfang an den Stellen, die bei der Herstellung eine mechanische, und in stärkerem Maße an den Stellen, die eine Wärme-Behandlung erfahren hatten. Der Verdampfer wird zwar bei einem  $p_{\text{H}}$ -Wert von 8 bis 9 betrieben, doch enthält die einzudampfende Lösung stets größere Mengen Chlorionen.

Beim Binden der Verdampferrückstände an Zement traten bei Konzentrationen mit Salzgehalten von über 50% Schwierigkeiten auf, da sich Zement und Lösung nicht mehr richtig mischten. Die Außendosisleistung an den betonierten Fässern betrug zwischen 0,3 und 3 mr/h (10 cm Abstand).

## 5. Allgemeine Erfahrungen

### 5.1 Wasseranfall

In den vergangenen 2 Jahren wurden in der oben beschriebenen Dekontaminationsanlage insgesamt 5300  $\text{m}^3$  radioaktive Abwässer aufbereitet. Hiervon entfielen auf das Jahr 1961 rund 2200  $\text{m}^3$ , auf das Jahr 1962 3100  $\text{m}^3$ ; das sind rund 9 bzw. 13  $\text{m}^3$  pro Arbeitstag. An einzelnen Tagen traten jedoch Spitzen bis zu 60  $\text{m}^3$  auf. Rechnet man die Wassermengen auf die einzelnen Mitarbeiter um, so ergibt sich im Mittel für jeden im Labor tätigen Mitarbeiter ein Anfall an radioaktivem Abwasser von 70 l/Tag, wobei diese Werte je nach Institut zwischen 20 und 200 l schwanken. Die Angaben aus der Literatur bewegen sich zwischen 20 und 250 l. Von den insgesamt angefallenen Chemieabwässern lagen im Jahre 1961 7%, im Jahre 1962 8% über den durch die 1. Strahlenschutzverordnung festgelegten Freigrenzen.

Es zeigte sich, daß der überwiegende Teil der radioaktiven Abwässer aus den wenigen Instituten kommt, in denen radiochemisch gearbeitet wird, während die übrigen Institute fast kein radioaktives Wasser geliefert haben.

Wir konnten während der vergangenen 2 Jahre feststellen, daß der größte Teil der Wässer nur sehr geringe Aktivitätskonzentrationen aufwies. Tab. 3 gibt einen Überblick über die Aktivitätsverteilung der freigegebenen und der nicht freigegebenen Chemieabwässer. Die Entscheidung, ob die Wässer freigegeben werden können oder dekontaminiert werden müssen, trifft die Strahlenmeßabteilung aufgrund differenzierter Messungen nach den Richtlinien der Ersten Strahlenschutzverordnung, die bei Anwesenheit bzw. Abwesenheit bestimmter Radionuklide entsprechende Freigrenzen festlegt.

Die 3100  $\text{m}^3$  radioaktiver Abwässer, die im Jahr 1962 in Tankwagen zur Dekontaminationsanlage gebracht wurden, besaßen nur eine Gesamtaktivität von etwa 25 mc. Hingegen enthielten die 7,5  $\text{m}^3$ , die in den Labors in Flaschen gesammelt wurden, rund 2 c. Der Grund für die Aufbereitung der großen Mengen Wasser ohne nennenswerte Aktivität liegt in den Bestimmungen für die Ableitung der radioaktiven Abwässer.

Das Frischwasser im Kernforschungszentrum Karlsruhe hat im Durchschnitt einen Abdampfrückstand von 360 mg/l. Der Abdampfrückstand der zu dekontaminierenden Wässer lag dagegen im Mittel bei 900 mg/l. Beim Durchgang durch die Labors erhöhte sich demnach der Salzgehalt auf rund 250%. Es ist zu bemerken, daß sich bei den inaktiven Chemieabwässern der Salzgehalt auf weniger als 200% erhöhte.

Tab. 3: Aktivitätskonzentrationen der 1962 angefallenen Chemieabwässer

Aktivitätskonzentration in $10^{-7}$ $\mu\text{c}/\text{ml}$	< 1	1—10	10—60	60—100	> 100
Wässer unter Toleranz (freigegeben*)	49%	28%	14,4%	0,1%	0,7%
Wässer über Toleranz (nicht freigegeben)	—	2%	3,3%	1,5%	1%

\* Die Freigabe erfolgte nach den Richtlinien der Ersten Strahlenschutzverordnung, die bei Vorliegen bzw. Abwesenheit bestimmter Radionuklide entsprechende Freigrenzen festlegt.

Der  $p_{\text{H}}$ -Wert der in Tankwagen ankommenden Wässer lag fast immer zwischen 5 und 9. Die in Flaschen angelieferten Wässer hingegen zeigten starke Schwankungen im  $p_{\text{H}}$ -Wert von unter 1 bis über 14.

### 5.2 Maßnahmen zur Erniedrigung des Anfalls an radioaktiven Abwässern

Die wichtigste Maßnahme zur Erniedrigung des Anfalls an radioaktiven Abwässern ist das Sammeln aller radioaktiven Lösungen und der ersten Spülwässer in Flaschen. Die Größe der Flaschen richtet sich nach den jeweiligen Gegebenheiten und kann bis zu 50 l betragen. Geeignete Einlauftrichter erleichtern das Eingießen. Beim Arbeiten mit höheren Aktivitäten müssen die Behälter abgeschirmt werden. Mitunter kann es nötig sein, die Flaschen unter einer Abzugshaube aufzustellen. Es sollte daher gleich beim Bau der Isotopenlabors ein entsprechender Platz vorgesehen werden, der sowohl für das Laborpersonal als auch für den Abholdienst leicht zugänglich ist.

Es hat sich als nützlich erwiesen, in den Gebäudeteilen, in denen mit dem Auftreten radioaktiver Wässer gerechnet werden muß, zwei Abwassersysteme zu installieren. In das eine System sollten alle Wässer geleitet werden, bei denen eine gewisse Möglichkeit besteht, daß sie radioaktiv werden, wie etwa die Wässer aus den aktiven Chemiespülen, den Dekontaminationsduschen u. dgl. In das zweite System werden solche Wässer geleitet, die normalerweise nicht aktiv sind und die nur zur Sicherheit in Rückhaltetanks aufgefangen und auf Aktivität kontrolliert werden. Hierzu zählen die Kühlwässer, die Wässer aus den inaktiven Chemiespülen und die Wässer aus Handwaschbecken, wobei kontaminierte Handschuhe dann natürlich nicht in den Handwaschbecken gereinigt werden dürfen. Die Einrichtung weiterer Abwassersysteme ist nur in Ausnahmefällen nötig. Bei sehr guter Arbeitsdisziplin, d. h. konsequentem Sammeln aller radioaktiven Lösungen in Flaschen und Arbeiten mit geringen Aktivitäten, sollte man sogar mit einem einzigen auskommen, und in diesem sollten keine über der Freigrenze liegenden Aktivitäten auftreten. Zu den genannten Abwasserleitungen kommt noch das Fäkalnetz, das aber nur in Sonderfällen kontrolliert wird, z. B. in Kliniken, in denen Patienten offene Radionuklide verabreicht werden.

### 5.3 Empfehlungen zum Bau von Dekontaminationsanlagen für radioaktive Abwässer

#### 5.3.1 Verfahren

Eine Patentreue Lösung für die Aufbereitung radioaktiver Abwässer gibt es nicht. Die Wahl eines Verfahrens hängt von verschiedenen Faktoren ab, wie von der Menge, der Aktivität und dem Salzgehalt der Lösungen, dem Gehalt an Störsubstanzen sowie den örtlichen Möglichkeiten zur Ableitung radioaktiver Wässer. Der personelle und apparative Aufwand für die verschiedenen Verfahren sind ebenso zu berücksichtigen wie die reinen Betriebskosten. Somit stellt sich die Frage nach den vorteilhaftesten Verfahren von Ort zu Ort von neuem.

Wenngleich in der groben Vereinfachung nicht die ganze Problematik erfaßt werden kann, so lassen sich die drei gebräuchlichsten Verfahren doch ungefähr wie folgt beurteilen: Die chemische Fällung zeichnet sich vor allem durch einfache Apparaturen von hoher Lebensdauer und niedrige Betriebskosten aus. Verfahrenstechnische Schwierigkeiten bietet die Filtration der Fällschlämme. Durch Einfrieren der Schlämme kann die Filtrierbarkeit der Niederschläge so weit verbessert werden, daß die Filtration einfach wird und fast keine Filterhilfsmittel mehr nötig sind, doch ist der Aufwand für das Gefrieren recht erheblich. Durch die Gegenwart von Komplexbildnern und manchen waschaktiven Substanzen kann die chemische Fällung empfindlich gestört werden. Ein größerer Salzgehalt stört in der Regel nicht.

Liegen bekannte Einzelnuclide vor, was insbesondere in kleineren Instituten bei getrennter Sammlung leicht möglich ist, so lassen sich durch gezielte Fällungen, vielleicht noch nach Zusatz von inaktiven Trägern, gute Dekontaminationsfaktoren erzielen. Werte von 100 und mehr sind dann durchaus zu erreichen. Bei Vorliegen von Gemischen unbekannter oder sehr vieler Radionuklide müssen unspezifische Fällungen durchgeführt werden. In diesen Fällen sind die Dekontaminationsfaktoren klein und werden bei schwach aktiven Wässern kaum über 20 gehen. Durch Hintereinanderschalten mehrerer Fällstufen können diese Ergebnisse zwar verbessert werden, doch erhöhen sich dann die Mengen der radioaktiven Rückstände und die Kosten entsprechend.

Sofern die dabei erzielbaren kleinen Dekontaminationsfaktoren ausreichen, ist die chemische Fällung gut zur Aufbereitung radioaktiver Abwässer geeignet. Bei Vorliegen etwas höherer Aktivitäten stößt man aber, zumindest bei den in Deutschland vorhandenen Möglichkeiten für die Ableitung, an die Grenzen des Verfahrens.

Laborversuche zur chemischen Fällung mit Modellwässern geben oftmals ein falsches Bild über die in der Praxis zu erreichenden Ergebnisse, da in den Modellwässern aus meßtechnischen Gründen die spezifische Aktivität fast immer höher liegt als in den Abwässern. Zum anderen fehlt in den Modellwässern in der Regel die Vielzahl der Schmutz- und Störsubstanzen und das ganze Spektrum der Radionuklide, die später im Abwasser vorhanden sind. Wir hatten in Laborversuchen Dekontaminationsfaktoren von  $10^3$  bis  $10^4$  erzielt, die in der Praxis, wie die Betriebsergebnisse zeigen, nicht im entferntesten erreicht werden konnten.

Der Ionenaustausch mit organischen Harzen eignet sich vor allem für die Dekontamination salzreicher Wässer. Durch Hintereinanderschalten einer größeren Zahl von Kolonnen lassen sich sehr gute Dekontaminationsfaktoren erzielen. Ungeladene Verbindungen und Komplexe sowie manche Kolloide werden von den Austauschern nicht erfaßt. Bei salzreichen Wässern wird der Ionenaustausch unwirtschaftlich, da die Harze zu oft regeneriert werden müssen.

Die zu dekontaminierenden Abwässer müssen, damit die Austauscher nicht zu rasch verschmutzen, zunächst geflockt, mindestens aber klar filtriert, die Regenerierwässer meist verdampft werden. Dafür sind entsprechende Apparaturen nötig. Wenn auch der apparative Aufwand für die Ionenaustauschanlage selbst nicht sehr hoch und die Bedienung einfach ist, so wird dieses Verfahren durch die erwähnten Nebenapparaturen kompliziert. Um die Regenerierung sparsam gestalten zu können, ist außerdem eine größere Zahl von Sammelbehältern für die Regenerierwässer nötig.

In kleineren Instituten kann es unter Umständen vorteilhaft sein, das Frischwasser, das in den aktiven Labors verwendet wird, ganz oder teilweise zu entsalzen. Man muß allerdings gleich beim Bau der Laboratorien die entsprechenden Leitungen und Einrichtungen vorsehen. Dann kann der Ionenaustausch, sofern in den Labors nicht sehr viele Salze weggegossen werden, ein vorteilhaftes Dekontaminationsverfahren sein. Vielleicht ist es auch mancherorts möglich, die Austauscher an einer zentralen Stelle regenerieren zu lassen, vorausgesetzt allerdings, daß einheitliche Harztypen verwendet wurden. Bei Vorliegen von extrem salzarmen Wässern, beispielsweise in Reaktorkreisläufen, ist unter Umständen die Regenerierung der Austauscher wegen der langen Standzeit nicht mehr nötig. Für solche Wässer ist der Ionenaustausch das vorteilhafteste Dekontaminationsverfahren.

Der Ionenaustausch an anorganischen Austauschern hat meist nur dann größere Bedeutung, wenn bestimmte Ionen durch spezifisch wirkende Materialien entfernt werden sollen, z. B.  $^{137}\text{Cs}$  mit Vermikulit [28—31]. Die anorganischen Austauscher sind billig, doch ist die Menge der radioaktiven Rückstände wegen der niedrigen Austauscherkapazität relativ groß.

Die Verdampfung ist das universellste Dekontaminationsverfahren und liefert in der Regel auch die höchsten Dekontaminationsfaktoren. Die verschiedenen möglichen Verdampfertypen sind vielfach [32—44] ausführlich beschrieben

worden und sollen hier nicht näher erörtert werden. Grundsätzlich ist zu sagen, daß die Verdampfung teure Apparaturen und meist hohe Energiekosten erfordert. Durch gute Wärmeausnutzung, z. B. in Brüdenkompressionsverdampfern, können in größeren Anlagen die Betriebskosten so weit gesenkt werden, daß die Verdampfung wirtschaftlich mit den anderen Verfahren konkurrieren kann. Die Wirtschaftlichkeit ist allerdings nicht durch die niedrigen Energiekosten, sondern durch die niedrigeren Personalkosten und die geringeren Volumina an radioaktiven Rückständen bedingt. Die ersteren sind jedoch variabel und fallen je nach Größe des Durchsatzes verschieden ins Gewicht.

Die Verdampfung ist unabhängig von der chemischen Zusammensetzung des Wassers. Es entstehen nur sehr wenige Rückstände. Allerdings können durch Verkrustung der Heizflächen und Schäumen der Flüssigkeit Schwierigkeiten entstehen, besonders dann, wenn nicht bei der Konstruktion des Verdampfers entsprechende Vorkehrungen getroffen wurden.

### 5.3.2 Projektierung der Anlage

Beim Bau von Dekontaminationsanlagen für radioaktive Abwasser ist es auf alle Fälle wichtig, ausreichend große Sammelbehälter für die aufzubereitenden Wässer vorzusehen. Dadurch kann zwar keine Unterdimensionierung der Anlage wettgemacht werden, aber es werden die Spitzen im Abwasseranfall abgefangen, und man kommt zu einem gleichmäßigen Betrieb. Außerdem zerfällt beim Lagern ein Teil der kurzlebigen Radionuklide. Eine Speicherkapazität von 1 bis 2 Wochen erscheint, zumindest für kleinere Anlagen, wünschenswert.

In den meisten Aufbereitungsanlagen für radioaktive Abwasser sind die Strahlenabschirmungen überdimensioniert. Tab. 3 hat gezeigt, wie wenig höher aktive Wässer in normalen radiochemischen Laboratorien vorkommen im Vergleich zu den schwach aktiven. In Fällanlagen werden kaum Aktivitäten aufbereitet werden, die einer Abschirmung bedürfen. Auch bei Ionenaustauschern ist in der Regel mit stärkerer Strahlung nicht zu rechnen, es sei denn, daß Wässer aus einem gestörten Reaktorbetrieb oder sonstige höher aktive Wässer über die Austauscher geleitet werden sollen. Bei Verdampfern können je nach Volumen und Konzentrierungsgrad des Verdampfers und Aktivität der Ausgangslösung Abschirmungen nötig werden. Wenn man nicht von vornherein mit höher aktiven Wässern rechnen muß, wird man zweckmäßigerweise auf eine Abschirmung so lange verzichten, bis sie sich als nötig erweist. Man sollte jedoch die Anlage so bauen, daß sich die Strahlenschutzwände nachträglich ohne Schwierigkeiten errichten lassen.

Alle Anlagen zur Dekontamination radioaktiver Abwässer sollten so gebaut werden, daß sämtliche Anlageteile gut zugänglich sind. Es ist falsch zu glauben, daß man sich Apparaten und Leitungen, die einmal mit höher radioaktivem Wasser in Berührung gewesen sind, nie wieder nähern könnte. Oftmals sind nur wenige Handgriffe nötig, um Störungen zu beseitigen. Bei entsprechenden Vorsichtsmaßnahmen können geschulte Leute sogar größere Reparaturen ausführen.

### 6. Schluß

Die Erwartungen, die wir in die Dekontaminationsanlage und die Verfahren gesetzt hatten, haben sich in der Praxis nicht ganz erfüllt. Es zeigte sich insbesondere, daß die

räumliche Anordnung und die Ausführung einiger Apparaturen kein Optimum darstellten. Trotzdem war es mit Hilfe der oben beschriebenen Anlage bisher stets möglich, die im Kernforschungszentrum Karlsruhe anfallenden radioaktiven Abwässer aufzubereiten. Dabei konnten wertvolle Erfahrungen gesammelt werden. Verschiedene Schwierigkeiten konnten durch apparative Änderungen oder durch systematische Untersuchungen im Labor überwunden werden. Diese Bemühungen sollen fortgesetzt werden mit dem Ziel, die Verfahren und apparativen Einrichtungen weiter zu verbessern und die Betriebskosten zu senken.

Herrn Chem.-Ing. Nentwich danke ich herzlich für seine wertvolle Mithilfe bei der Zusammenstellung der Betriebsergebnisse.

(Eingegangen am 16. 9. 1963)

### Literatur

- [1] Krawczynski, S.: Gas- und Wasserfach **101**, 906, 969 (1959).
- [2] Hoffmann W., und J. Talsky: Atomwirtschaft **4**, 63 (1959).
- [3] Ehn, E., G. Knoerzer und H. W. Levi: Atomwirtschaft **4**, 117 (1959).
- [4] Rattay, K. H.: Atomwirtschaft **5**, 365 (1960).
- [5] Lauderdale, R. A.: Ind. Eng. Chem. **43**, 1538 (1951).
- [6] Nesbitt, J. B., u. a.: USAEC Rep. NYO-4435 (1952).
- [7] Lowe, C. S., u. a.: USAEC Rep. MLM-662 (1952).
- [8] Burns, R. H., und E. Glueckauf: Proc. Second Int. Conf. Peaceful Uses Atomic Energy **18**, 150 (1958).
- [9] Dejonghe, P., L. Baetsle und G. Mosselmans: Proc. Second Int. Conf. Peaceful Uses Atomic Energy **18**, 68 (1958).
- [10] Voznesensky, S. A., u. a.: Proc. Second Int. Conf. Peaceful Uses Atomic Energy **18**, 123 (1958).
- [11] Seedhouse, K. G., J. Monahan und G. Wallis: AERE Rep. ES/R 2220 (1958).
- [12] Wormser, G.: Proc. IAEA-Conf. Monaco **1**, 333 (1959).
- [13] Eliassen, R., W. J. Kaufman, J. B. Nesbitt und M. I. Goldman: J. Amer. Water Works Assoc. **43**, 615 (1951).
- [14] McCauley, R. F., und R. Eliassen: J. Amer. Water Works Assoc. **47**, 494 (1955).
- [15] Straub, C. P., W. J. Lacy und R. J. Morton: Proc. Int. Conf. Peaceful Uses Atomic Energy **9**, 24 (1955).
- [16] Cowser, K. E., R. J. Morton und E. J. Witkowski: Proc. Second Int. Conf. Peaceful Uses Atomic Energy **18**, 161 (1958).
- [17] Burns, R. E., und M. J. Stedwell: Chem. Eng. Progr. **53**, 94-F (1957).
- [18] Sturzer, U.: Kernenergie **1**, 553 (1958).
- [19] Krawczynski, S., und B. Kanellakopoulos: Atomkernenergie **6**, 214 (1961).
- [20] Miller, H. S., und G. E. Kline: J. Am. Chem. Soc. **73**, 2741 (1951).
- [21] Rodger, W. A., und P. Fineman: Nucleonics **9**, Nr. 6, 51 (1951).
- [22] USAEC Rep. KLX-1372 (1952).
- [23] Higgins, I. R.: USAEC Rep. ORNL-1325 (1953).
- [24] Fisher, S. A.: USAEC Rep. RMO-2528 (1954).
- [25] Swope, H. G., und E. Anderson: Ind. Eng. Chem. **47**, 78 (1955).
- [26] Bolshakov, K. A., u. a.: Proc. Second Int. Conf. Peaceful Uses Atomic Energy **18**, 127 (1958).
- [27] Martinaia, F., und L. A. Wegner: Atompraxis **7**, 223 (1961).
- [28] Seedhouse, K. G.: Nucl. Eng. **2**, 413 (1957).
- [29] Wright, T. D., und J. Monahan: AERE Rep. E R -2707 (1958).
- [30] Amphlett, C. B., und L. A. McDonald: J. Inorg. Nucl. Chem. **6**, 145 (1958).
- [31] Von Gunten, H. R.: Neue Technik **4**, 395 (1962).
- [32] Bretton, R. H., und G. E. McCullough: USAEC Rep. BNL-59 (1950). Shank, E., und B. Manowitz: USAEC Rep. BNL-59 (1950).
- [33] Manowitz, B., und R. H. Bretton: USAEC Rep. BNL-90 (1950).
- [34] Manowitz, B., R. H. Bretton und R. V. Horrigan: USAEC Rep. BNL-1639 (1953).
- [35] Manowitz, B., P. Richards und R. V. Horrigan: Chem. Eng. **62**, 194 (1955).
- [36] Fairbourne, S. F., D. G. Reid und B. R. Kramer: USAEC Rep. IDO-14334 (1955).
- [37] Manowitz, B., R. H. Bretton und R. V. Horrigan: Chem. Eng. Progr. **51**, 313 (1955).
- [38] Messing, Th.: Chemie-Ing.-Techn. **30**, 589 (1958).
- [39] Krawczynski, S.: Kerntechnik **1**, 15, 60, 145 (1959).
- [40] Weiss, G.: Chemie-Ing.-Techn. **31**, 133 (1959).
- [41] Larsen, I.: Proc. IAEA-Conf. Monaco **1**, 351 (1959).
- [42] Mitsubishi, N., u. a.: J. At. Energy Soc. Japan **1**, 363 (1959).
- [43] Marillier, J. C.: Energie Nucléaire **4**, 320 (1962).