

**KERNFORSCHUNGSZENTRUM
KARLSRUHE**

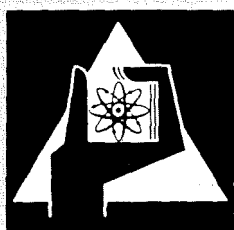
August 1971

KFK 1455

Abteilung Dekontaminationsbetriebe

Überblick über die Betriebsanlagen und Entwicklungsarbeiten
zur Behandlung und Beseitigung radioaktiver Abfälle
im Kernforschungszentrum Karlsruhe

W. Bähr, W. Diefenbacher, W. Hild, H. Krause



GESELLSCHAFT FÜR KERNFORSCHUNG M. B. H.

KARLSRUHE

Als Manuskript vervielfältigt

Für diesen Bericht behalten wir uns alle Rechte vor

GESELLSCHAFT FÜR KERNFORSCHUNG M. B. H.
KARLSRUHE

KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE

August 1971

KFK 1455

Abteilung Dekontaminationsbetriebe

Überblick über die Betriebsanlagen und Entwicklungs-
arbeiten zur Behandlung und Beseitigung radioaktiver
Abfälle im Kernforschungszentrum Karlsruhe

von

W. Bähr, W. Diefenbacher, W. Hild, H. Krause

Gesellschaft für Kernforschung m.b.H.
Karlsruhe

Anmerkung

Neben den Verfassern waren folgende Mitarbeiter der
Abteilung Dekontaminationsbetriebe maßgeblich an dem im
Bericht beschriebenen Arbeiten beteiligt:

M. Bittmann, S. Drobnik, T. Ertel, W. Guber, W. Hempelmann,
M. Kienhöfer, W. Kluger, S. Kunze, G. Meier, O. Nentwich,
G. Rudolph, J. Saidl, M.C. Schuchardt.

K U R Z F A S S U N G

In dem vorliegenden Bericht wird ein Überblick gegeben über die im Kernforschungszentrum Karlsruhe vorhandenen Anlagen und Einrichtungen zur Behandlung, zum Transport und Zwischenlagerung der festen und flüssigen radioaktiven Abfälle und zur Dekontamination von Geräten. Aus der nun 10-jährigen Betriebszeit werden die wichtigsten Betriebserfahrungen kurz zusammengefaßt.

Es folgt eine Übersicht über die wichtigsten, in den Laboratorien neu entwickelten bzw. verbesserten Verfahren wie: Entfernung von Polyphosphaten aus Abwässern, Zerstörung von Komplexbildnern durch Ozonisierung, Verseifung von Tributylphosphat, rückstandsfreie Zerstörung von Salpetersäure, Dekontamination von Oberflächen, Fixierung wässriger Rückstände in Bitumen, Fixierung von Spaltproduktrückständen in Glas, Verschmelzen von Spaltprodukten zu keramischen Massen durch Thermitreaktionen.

Weiterhin wird eine Beschreibung der wichtigsten verfahrenstechnischen Arbeiten zur Verfestigung hochaktiver Spaltprodukte sowie der kern- und verfahrenstechnischen Entwicklungen zur Endlagerung radioaktiver Abfälle im Salzbergwerk Asse gegeben.

A B S T R A C T

This report presents a survey of the facilities and installations available at the Decontamination Department of the Karlsruhe Nuclear Research Center for treatment, transport, and intermediate storage of solid and liquid radioactive wastes and for decontamination of equipment. The operating experience gained over the past ten years is highlighted.

This is followed by a description of the most important methods either newly developed or improved in the laboratories of the Department, such as removal of polyphosphates from liquid effluents, decomposition of complexing agents through ozonization, saponification of tributyl phosphate, decomposition of nitric acid without residues, decontamination of surfaces, incorporating aqueous residues in bitumen, vitrification of fission product residues, melting of fission products into ceramic masses by thermite reactions.

In addition, the report contains an outline of the most important process engineering activities performed in the solidification of high level fission products and the nuclear and process engineering development work carried out on the secular storage of radioactive wastes at the Asse salt mine.

1. E I N L E I T U N G

Die Abteilung Dekontaminationsbetriebe des Kernforschungszentrums Karlsruhe (ADB) befaßt sich mit allen Fragen, die in Zusammenhang mit der Behandlung und Beseitigung radioaktiver Abfälle, der Dekontamination von Geräten und Anlagen sowie der Behandlung konventioneller Abwässer stehen. Sie erbringt routinemäßig die entsprechenden Serviceleistungen und führt auf den genannten Gebieten auch ein umfangreiches Forschungs- und Entwicklungsprogramm durch. Auf einer Reihe von Arbeitsgebieten besteht eine enge Zusammenarbeit mit verschiedenen auswärtigen und ausländischen Institutionen.

Im Jahre 1961 wurden in einer kleinen Versuchsanlage die ersten radioaktiven Abfälle aufgearbeitet. Aufbauend auf den Erfahrungen des Versuchsbetriebes wurden inzwischen moderne Betriebsanlagen erstellt, die in der Lage sind, die seither auf ein Vielfaches angestiegenen Mengen an radioaktiven Abfällen zu bewältigen. So werden heute die Abfälle und kontaminierten Geräte von insgesamt 18 Instituten des Zentrums, des Europäischen Instituts für Transurane (EURATOM), von 4 Reaktoren, 27 Heißen Zellen, sowie der benachbarten Wiederaufarbeitungsanlage für bestrahlte Kernbrennstoffe (WAK) und einer privaten Brennelement-Fertigungsanlage aufgearbeitet. Daneben werden in steigendem Maße auch Abfälle und Geräte von außerhalb, insbesondere von Kraftwerksreaktoren zur Behandlung angeliefert. Neben den Betriebsanlagen wurden auch die Laboratorien im Laufe der Jahre erheblich erweitert, so daß heute darin umfangreiche Forschungs- und Entwicklungsarbeiten ausgeführt werden können.

Entsprechend den vielfältigen und ständig gewachsenen Aufgaben hat die Abteilung Dekontaminationsbetriebe inzwischen einen Personalstand von 126 Mitarbeitern und gliedert sich heute in die Unterabteilungen: Betriebe, Labors und Projekte (Abb. 1).

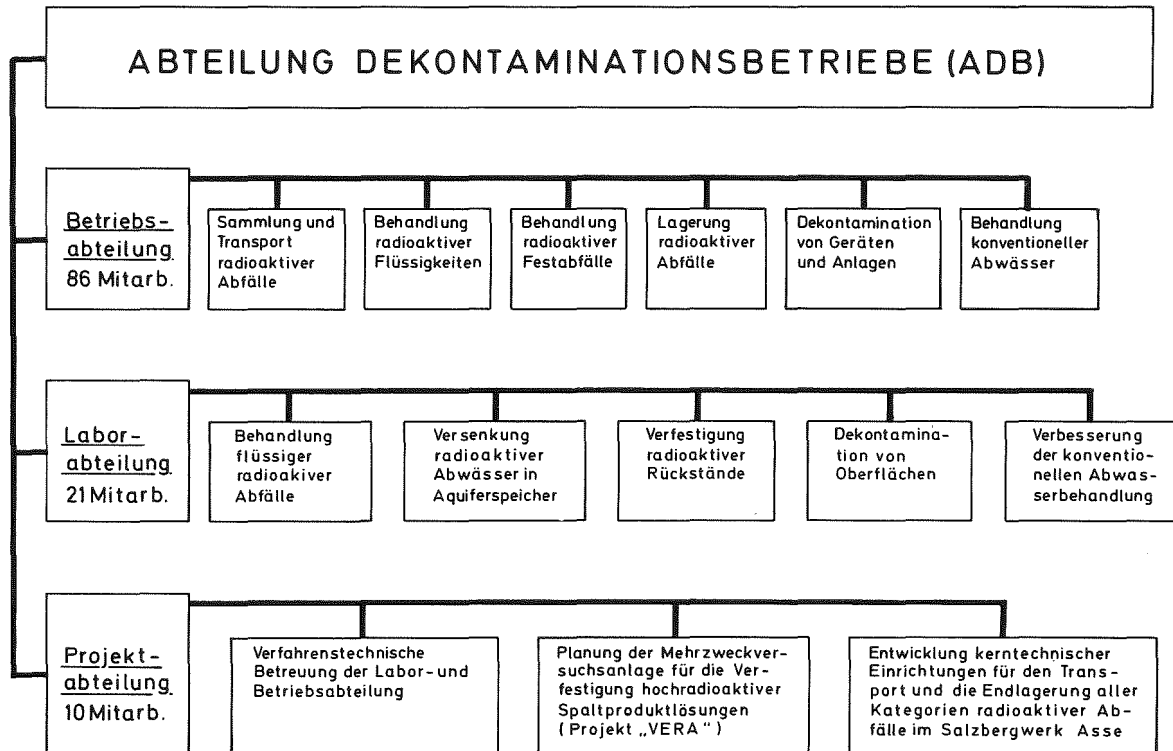


Abb. 1

Die Betriebsabteilung erbringt die routinemäßigen Serviceleistungen für das gesamte Zentrum auf den Gebieten der Sammlung, des Transports, der Behandlung und Zwischenlagerung radioaktiver Abfälle, der Dekontamination von Geräten und Anlagen sowie der Behandlung konventioneller Abwässer. Dafür stehen ihr 5 Betriebsanlagen im Wert von rund 30 Mio DM zur Verfügung, in denen ca. 90 Mitarbeiter beschäftigt sind.

Die Laborabteilung führt mit 5 Chemikern und 15 technischen Mitarbeitern grundlegende Arbeiten auf dem vorerwähnten Tätigkeitsgebiet der Abteilung durch mit dem Ziel, Betriebsverfahren zu verbessern bzw. sie den aus der Weiterentwicklung der Kerntechnik resultierenden Forderungen anzupassen sowie neue Behandlungsmethoden bis zur technischen Reife zu entwickeln.

Das Aufgabengebiet der Projektabteilung umfaßt die verfahrenstechnische Betreuung der Betriebs- und Laborabteilung sowie die Bearbeitung grundsätzlicher kern- und verfahrenstechnischer Fragen, insbesondere bei der Verfestigung der hochaktiven Spaltproduktlösungen und der Endlagerung radioaktiver Abfälle. Hierfür sind 10 Ingenieure und Techniker eingesetzt.

2. B E T R I E B S A B T E I L U N G

Entsprechend der Vielfalt der Aufgaben gliedert sich die Betriebsabteilung in die Gruppen:

- Sammlung und Transport flüssiger und fester radioaktiver Abfälle
- Behandlung radioaktiver Flüssigkeiten
- Behandlung radioaktiver Festabfälle
- Zwischenlagerung radioaktiver Abfälle
- Dekontamination von Geräten und Anlagen
- Behandlung konventioneller Abwässer

2.1 Sammlung und Transport flüssiger und fester radioaktiver Abfälle

Flüssige radioaktive Abfälle werden je nach Art, Aktivität und Menge an den einzelnen Anfallstellen in Flaschen (50 l), abgeschirmten Behältern (bis zu 100 l) bzw. in Auffangbehältern (10 m³) gesammelt. Schwachaktive Abwässer werden über

ein Rohrbrückensystem oder mit Tankwagen (Abb. 2) zur Abwasserdekontamination gebracht. Für den Transport von Abwässern, die einer Abschirmung bedürfen, stehen abgeschirmte Behälter von 50 bis zu 400 l zur Verfügung; ein abgeschirmter Tankwagen von 3 m³ wird in Kürze zum Einsatz gelangen.

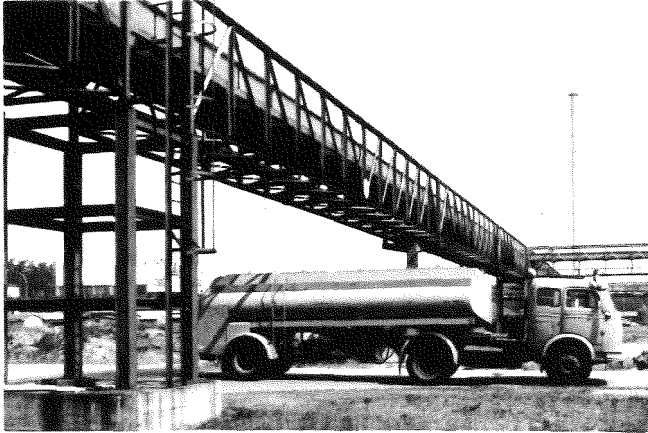


Abb. 2
Rohrbrücke und Tankwagen für die Beförderung schwachradioaktiver Abwässer

Feste schwachradioaktive Abfälle werden an den Anfallstellen in Kunststoffsäcke eingeschweißt und - getrennt nach brennbaren und nicht brennbaren - in 200 l-Rollreifenfässern untergebracht, höher aktive in besonderen Behältnissen verpackt und in Bleibehälter transportiert. Die Beförderung der festen Abfälle zur Aufbereitungsstelle geschieht mit Lastkraftwagen und Gabelstaplern (Abb. 3).



Abb. 3
Verladung fester schwachradioaktiver Abfälle

2.2 Behandlung flüssiger radioaktiver Abfälle

Aufgrund der örtlichen Gegebenheiten und der strengen Sicherheitsauflagen müssen die radioaktiven Abwässer soweit dekontaminiert werden, daß sie bedenkenlos in einen nahegelegenen Nebenarm des Rheins mit geringer Wasserführung eingeleitet werden können.

Die Betriebserfahrungen mit der ursprünglichen Versuchsanlage haben gezeigt, daß von den dort nebeneinander angewandten Verfahren - chemische Fällung, Ionenaustausch und Verdampfung - das letzte unter den gegebenen Verhältnissen die günstigsten Ergebnisse lieferte: Die Verdampfung brachte die höchsten Dekontaminationsfaktoren und zeigte sich unempfindlich gegenüber der ständig wechselnden Zusammensetzung der Wässer. Außerdem hat ein Vergleich der Investitions- und Betriebskosten gezeigt, daß bei den vorliegenden Bedingungen die Verdampfung in einem Brüdenkompressionsverdampfer wirtschaftlich mit den anderen Verfahren konkurrieren kann.

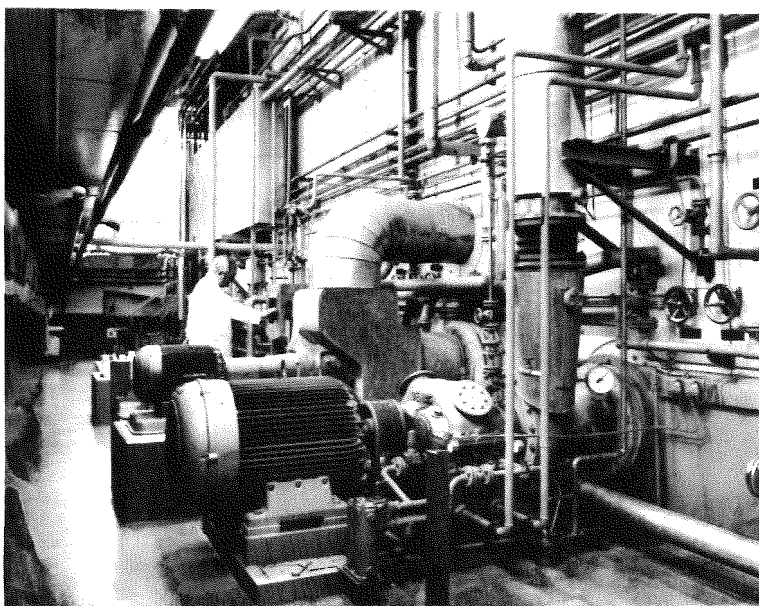


Abb. 4
Brüdenkompressor und
Umwälzpumpe der Ver-
dampferanlage für
radioaktive Abwässer

Deshalb wurde, als die Versuchsanlage im Jahre 1968 zu klein wurde und durch eine Betriebsanlage ersetzt werden mußte, diese nur noch mit einem Verdampfer mit mechanischer Brüdenkompression ausgestattet, in dem die schwach- und mittelaktiven Abwässer dekontaminiert werden (Abb. 4, 5). Bis jetzt wurden in dieser Anlage bereits über 30.000 m³ verdampft.

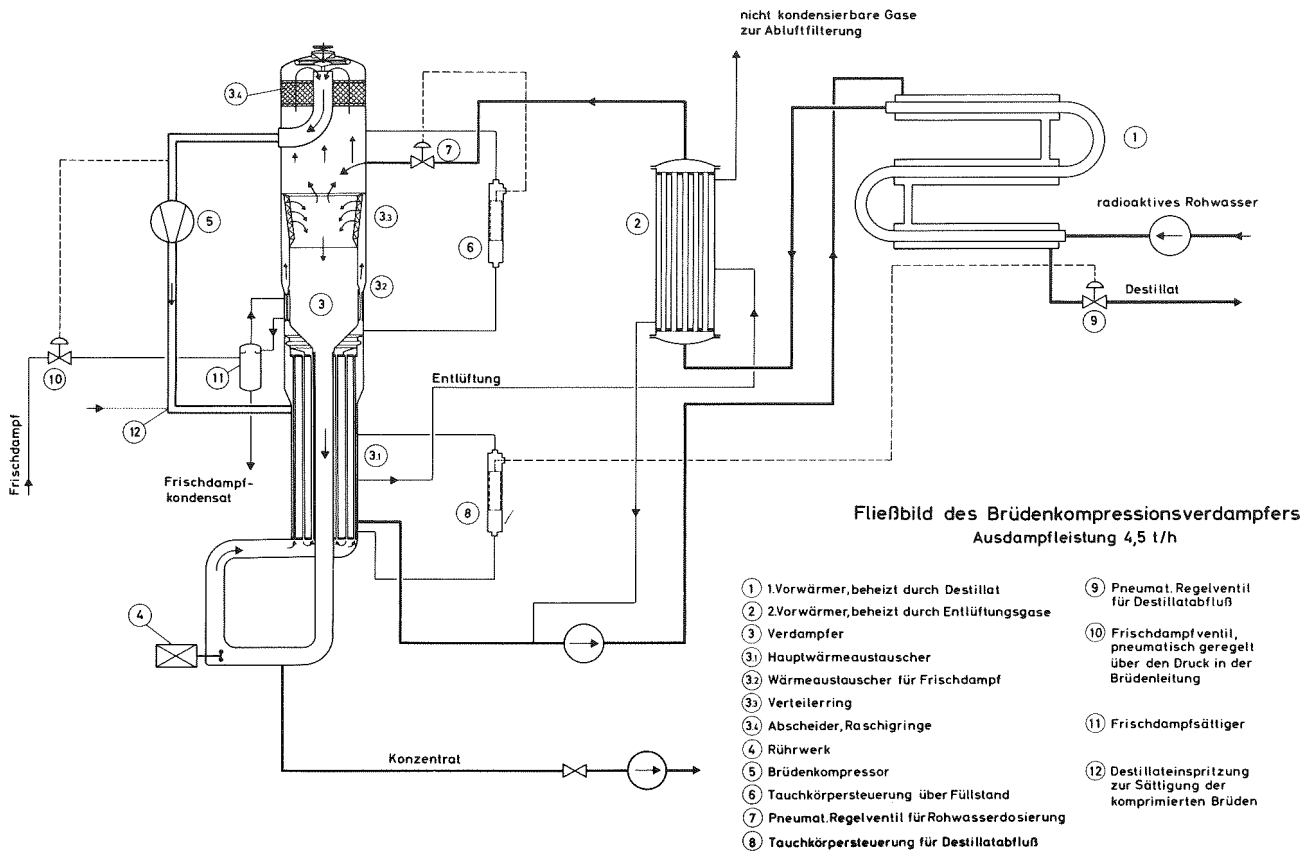


Abb. 5

Der Betrieb des Verdampfers geht so vor sich, daß solange kontinuierlich radioaktives Rohwasser eingespeist wird (4,5 t/h), bis im Verdampfer ein Salzgehalt von 20 Gew.-% erreicht ist. Dann wird das Konzentrat, in dem sich praktisch die gesamten Radionuklide und Salze befinden, abgelassen und verfestigt. Der bei der Verdampfung austretende Dampf wird durch Verdichtung in einem Brüdenkompressor auf etwa 135 °C aufgeheizt und anschließend zur Beheizung des eigenen Verdampfers verwendet. Dabei kondensiert er und wird, nach weiterer Abkühlung in dem Vorwärmer für das radioaktive Rohwasser, als sauberes Destillat aufgefangen. Durch dieses Prinzip wird, wenn der Verdampferinhalt erst einmal den Siedepunkt erreicht hat, nur noch elektrische Energie für den Kompressor (ca. 30 kWh/t), jedoch kein Frischdampf mehr gebraucht.

Das Destillat war bisher stets soweit dekontaminiert ($DF = 10^5 - 10^6$), daß es ohne weitere Behandlung in den Vorfluter eingeleitet werden konnte. Zur Verminderung der Korrosion wird der Verdampferinhalt leicht alkalisch gehalten.

Zur Zeit erfolgt die Verfestigung der Verdampferkonzentrate noch durch Vermischen mit Zement. In naher Zukunft wird das Konzentrat in einem Doppelwellenextruder (Abb. 6) mit heißem Bitumen vermischt, wobei das Restwasser ausdampft und die zurückbleibenden Feststoffe homogen im Bitumen eingebettet werden. Das Bitumenprodukt wird flüssig in 200 l-Fässer abgefüllt, in denen es beim Abkühlen erstarrt.

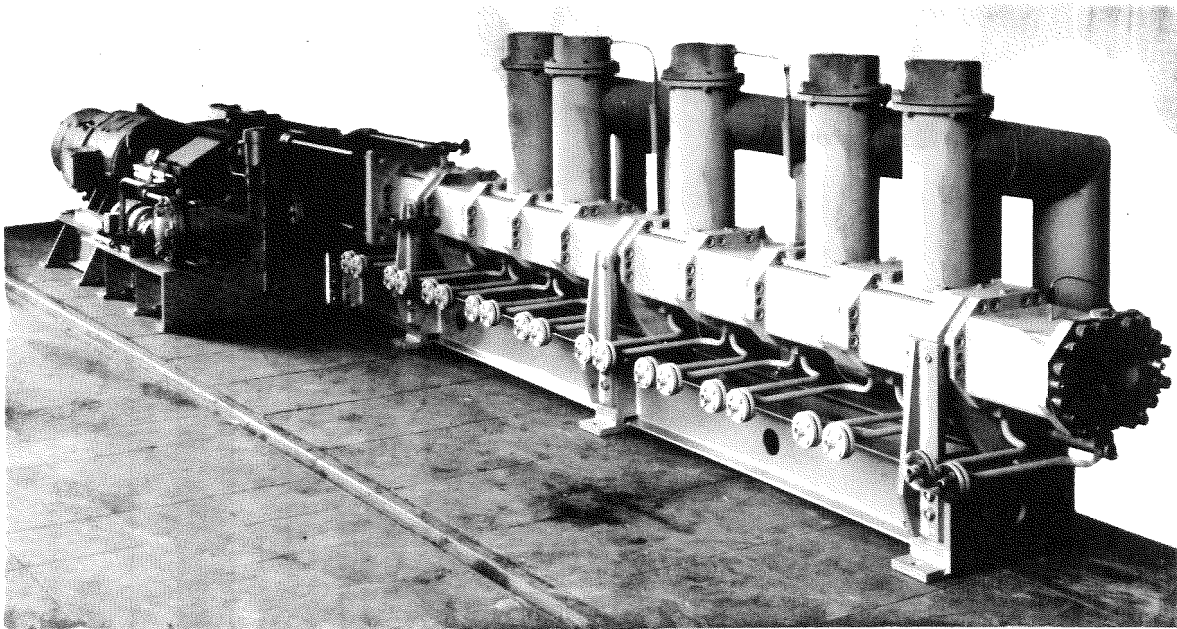


Abb. 6
Bituminieranlage für
radioaktive Verdampfer-
konzentrate mit Detail-
ansicht der Mischschnecke
(Werksfoto der Firma
Werner u. Pfleiderer)

Einen eindrucksvollen Beweis für die Leistungsfähigkeit der Anlage bringt die Tatsache, daß in den letzten 4 Betriebsjahren von den in 37.000 m^3 radioaktiver Abwässer enthaltenen 1.850 Ci nur noch 5.10^{-2} Ci in den Vorfluter abgegeben wurden. Dies entspricht ungefähr der Aktivitätsfracht (natürliche und fallout-Aktivität), die der Rhein in wenigen Stunden führt.

Einzelheiten über die Entwicklung von Abwassermengen und Aktivitäten der radioaktiven Abwässer in den letzten Jahren gibt Abb. 7.

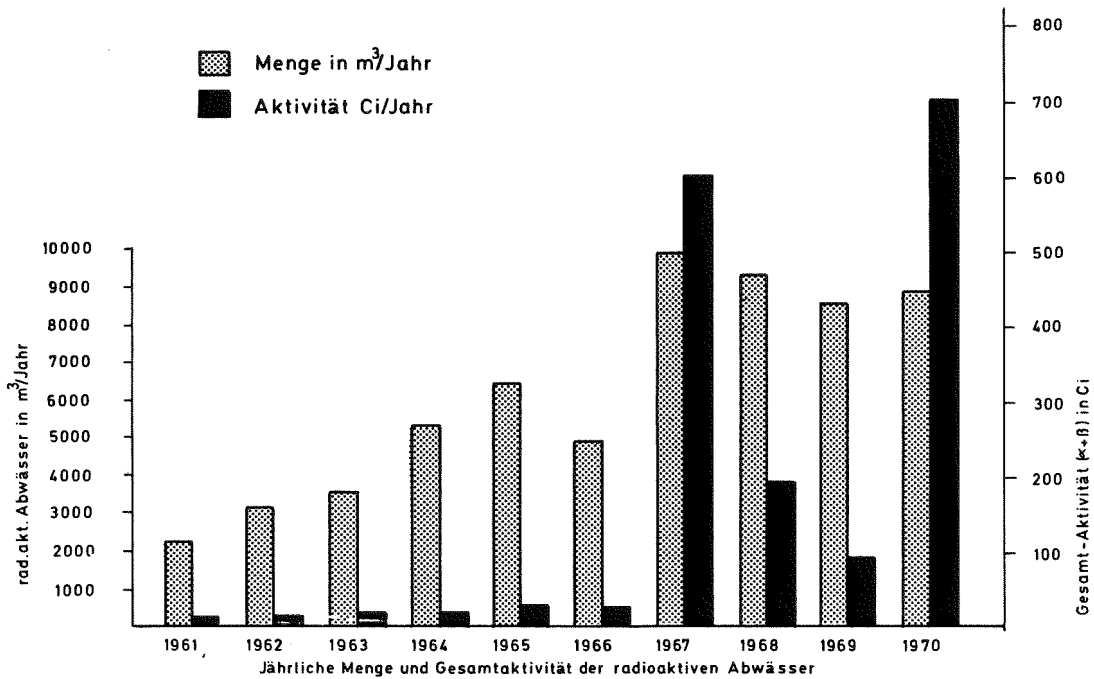


Abb. 7

Nach Erreichen des vollen Betriebes in der WAK wird mit einer weiteren wesentlichen Steigerung sowohl der Mengen als auch der Aktivität gerechnet. Dank der gewählten Einrichtungen und Verfahren wird jedoch selbst dann die Ableitung von Radionukliden in die Umwelt nicht wesentlich zunehmen.

2.3 Behandlung radioaktiver Festabfälle

Ziel der Behandlung der festen radioaktiven Abfälle ist eine möglichst weitgehende Volumenverminderung sowie die Überführung der Rückstände in eine Form, die die erforderliche Sicherheit für die vorgesehene Endlagerung im Salzbergwerk Asse gewährleistet.

Unter den festen radioaktiven Abfällen machen die brennbaren (Papier, Kunststoffe, Filtermaterialien, kleinere Mengen an Tierkadavern usw.) ca. 80 % aus.

Mehrjährige Versuchsarbeiten führten zur Entwicklung einer 1971 in Betrieb genommenen Veraschungsanlage, in der heute routinemäßig bis zu 100 kg brennbarer Festabfälle bzw. 40 l organischer Lösungsmittel und Öle pro Stunde verbrannt werden.

Veraschungsanlage für rad. Abfälle

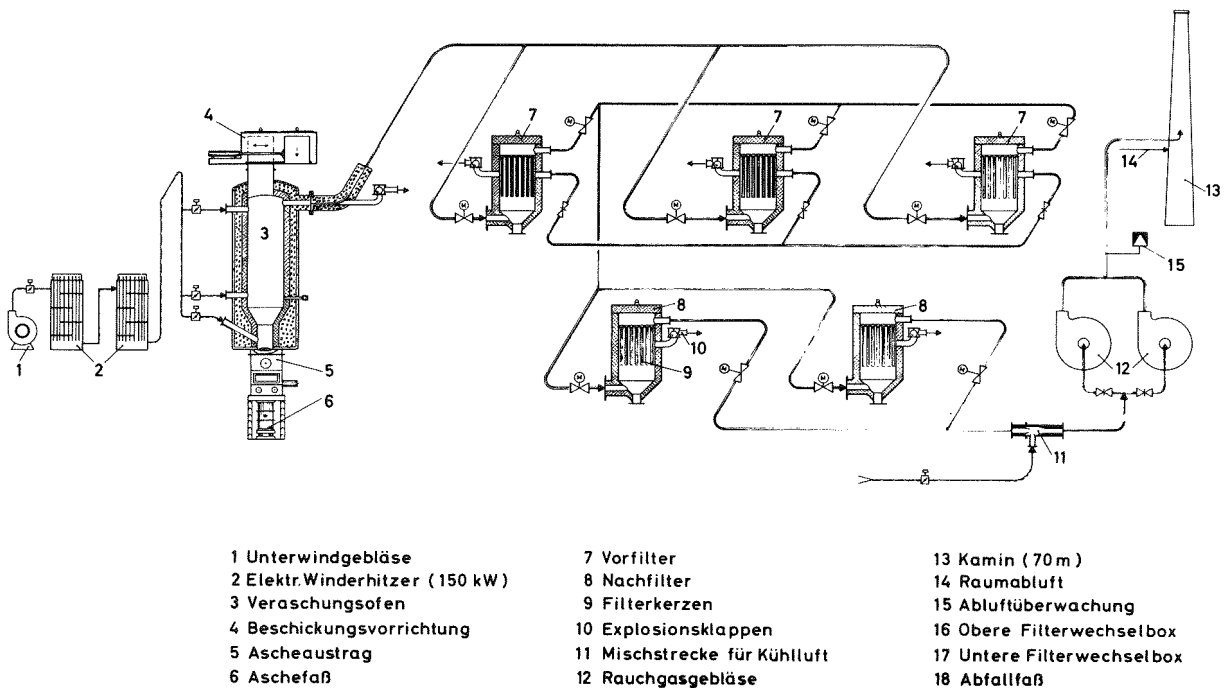


Abb. 8

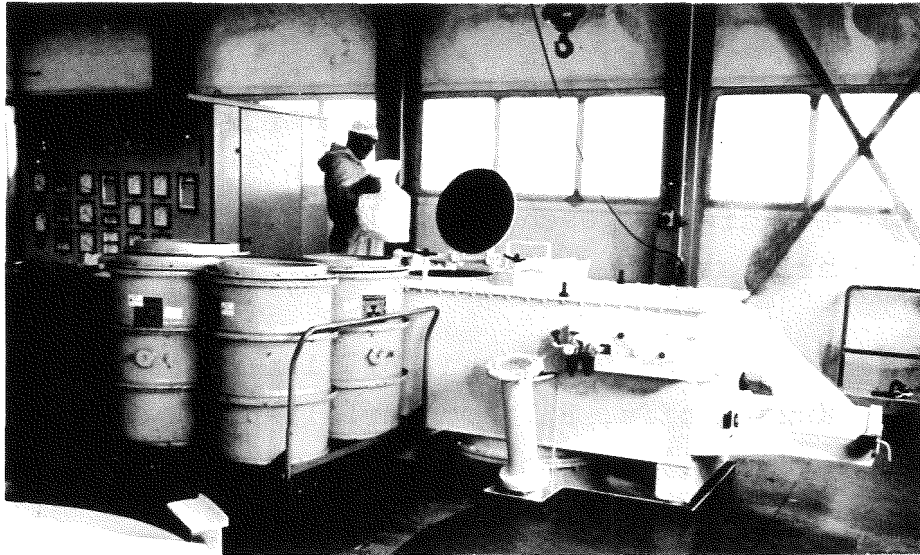


Abb. 9 Beschickungsvorrichtung der Veraschungsanlage

Aufbau und Funktionsweise der Anlage sind aus den Abbildungen 8, 9 und 10 zu ersehen. Im Gegensatz zu den bisher bekannten Veraschungsanlagen für radioaktive Stoffe benutzt sie ein trockenes Abgasreinigungssystem über keramische Sinterkerzenfilter. Die mit den Rauchgasen aus dem Ofen mitgeführten unverbrannten Anteile werden in den 900 °C heißen Vorfiltern abgeschieden und vollständig nachverbrannt. Nach den Feinfiltern (600 °C) sind die Rauchgase bis unter die MZK-Werte für Atemluft gereinigt, sodaß sie nach Abkühlung auf 250 °C durch Zumischen von kalter Luft direkt über einen Schornstein abgeleitet werden können.

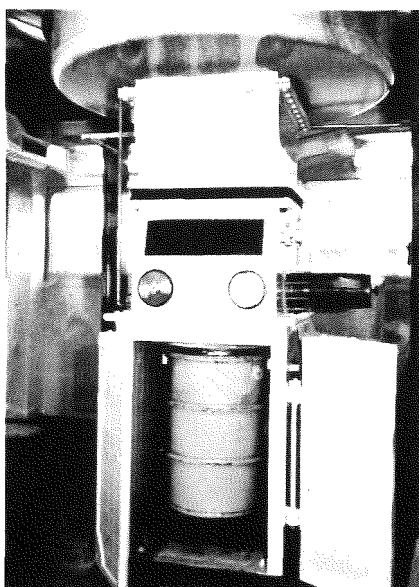


Abb. 10

Blick auf den Unterteil der Veraschungsanlage mit Ascheaustrag und abgeschirmten Aschefaß

Die bei der Verbrennung anfallende Asche wird mit Zementbrei vermischt und in 200 l-Fässer abgefüllt. Auf diese Weise entsteht aus 20 m³ brennbaren Abfalls (100 Fässer) ein Faß mit Zement fixierter Asche.

Die kompakte Bauweise des Ofens trägt wesentlich zu der günstigen Wärmebilanz bei, so daß außer beim Anfahren keine Fremdenergie zugeführt werden muß. Die keramische Ausmauerung der Anlage stellt einen wirkungsvollen Schutz gegen Korrosion dar und erlaubt hohe Betriebstemperaturen (1000 - 1100 °C), die ihrerseits eine vollständige Verbrennung gewährleisten. Die Anlage arbeitete bisher zur vollen Zufriedenheit und zeichnet sich durch einfache Bedienung, hohe Betriebssicherheit und lange Lebensdauer aus.

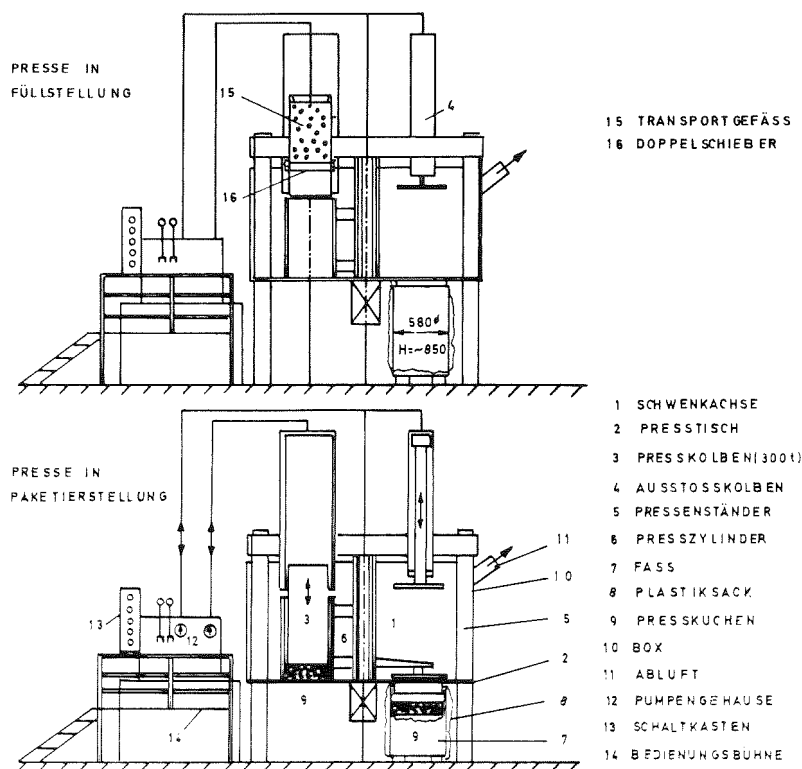


Abb. 11 Schema der Paketierpresse

Die nicht-brennbaren, schwachaktiven Festabfälle werden, soweit erforderlich, zerkleinert und in einer hydraulischen 300 Tonnen-Pressen paketierr (Abb. 11, 12). Die Preßlinge werden in 200 l-Fässer abgefüllt und in Zementbrei eingebettet. Je nach Abfallart wird bei diesem Verfahren eine Volumenreduktion von 2:1 bis 6:1 erzielt.

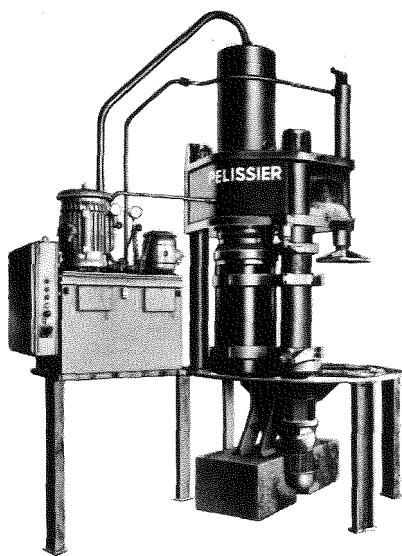


Abb. 12
Ansicht der Paketierpresse
(Werksfoto der Firma
Pelissier)

Mittelaktive feste Abfälle werden in einer speziell hierfür gebauten, abgeschirmten Zelle sortiert, zerkleinert und in Fässer abgefüllt. Der in den Fässern verbliebene Leerraum wird mit Zementbrei ausgegossen.

In den letzten 5 Jahren wurden in den Versuchs- und Betriebsanlagen insgesamt 2200 m³ feste Abfälle verarbeitet.

2.4 Zwischenlagerung radioaktiver Abfälle

Die bei der Behandlung der radioaktiven Abfälle anfallenden Fässer mit den schwachaktiven Rückständen werden bis zum Abtransport in das Endlager in einer leichten Lagerhalle von 1500 m² Fläche gestapelt (Abb. 13).



Abb. 13 Lager für feste schwachaktive Abfälle

Für die Zwischenlagerung der mittelaktiven Rückstände stehen betonabgeschirmte Lager für insgesamt 1800 Fässer zur Verfügung, die über abgeschirmte Gabelstapler (Abb. 14) bzw. fernbediente Krananlagen beschickt werden können. Bei Bedarf können die Lager auch als Puffer für die noch nicht aufbereiteten Abfälle benutzt werden.

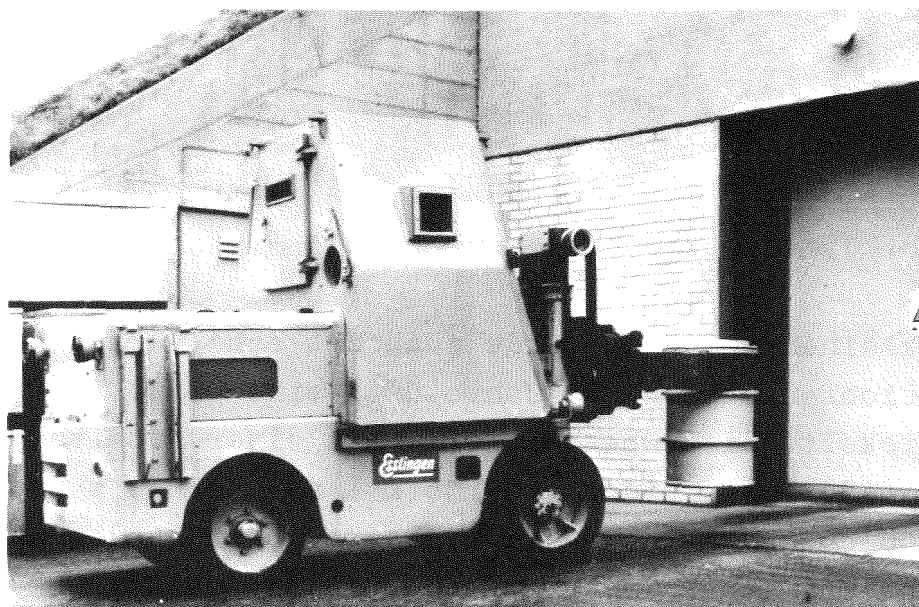


Abb. 14 Bunker für mittelaktive Abfälle mit abgeschirmtem Gabelstapler

2.5 Dekontamination von Geräten und Anlagen

In allen kerntechnischen Anlagen werden die Geräte und Anlagenteile, die mit offenen radioaktiven Stoffen in Berührung kommen, kontaminiert. Vor jeder Wartung und Reparatur, mitunter sogar vor der weiteren Benutzung, müssen die kontaminierten Apparaturen und Einrichtungen entweder soweit von der anhaftenden Radioaktivität befreit werden, daß ein gefahrloses Arbeiten möglich ist, oder verworfen und durch Neuteile ersetzt werden. Bei billigem Material ist die Abgabe zum radioaktiven Abfall im allgemeinen ökonomischer, bei wertvollereem lohnt sich die Dekontamination. Bei der Entscheidung müssen die Kosten für die Dekontamination denen für die Ersatzbeschaffung, die Beseitigung der kontaminierten Teile als radioaktiver Abfall sowie den Verlusten durch unter Umständen lange Ausfallzeiten gegenübergestellt werden.

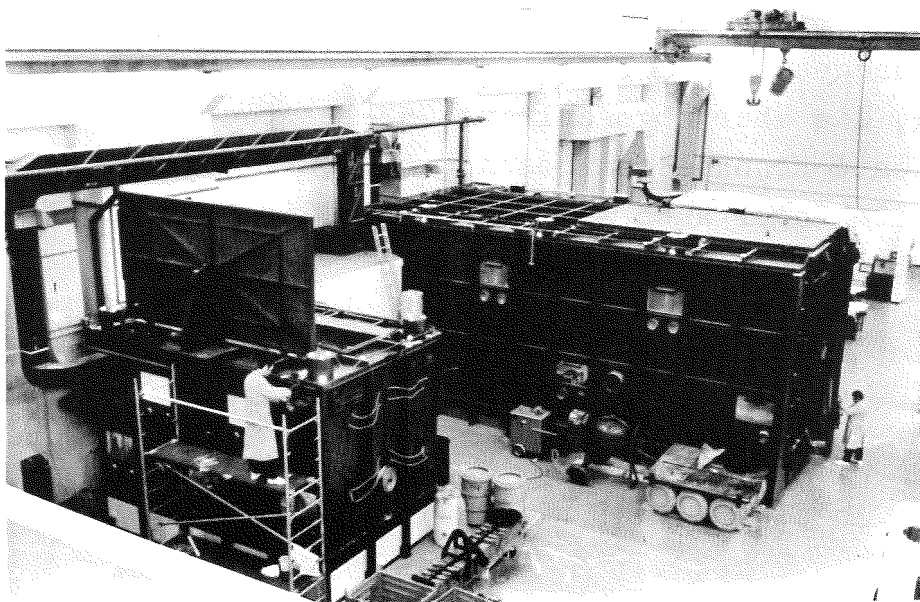


Abb. 15 Arbeitshalle zur Dekontamination von Großteilen

Aus kleinen Anfängen wurde zunächst eine Versuchs-Dekontaminationsanlage und im Jahre 1968 eine große Betriebsanlage entwickelt. Diese besteht u.a. aus einer Arbeitshalle, in der große Teile bis zu ca. 10 m Länge und 25 t Gewicht nach verschiedenen Methoden (z.B. Dampf- oder Sandstrahlen, chemische und mechanische Behandlung) bearbeitet werden können (Abb. 15). In Sonderfällen ist es auch möglich, sehr schwere

Teile mit Gewichten bis zu 80 t (z.B. Abschirmbehälter) zu dekontaminieren. Für das Zerlegen und die Behandlung von höher strahlenden Gegenständen ist ein 50 m³-Wasserbecken vorhanden.

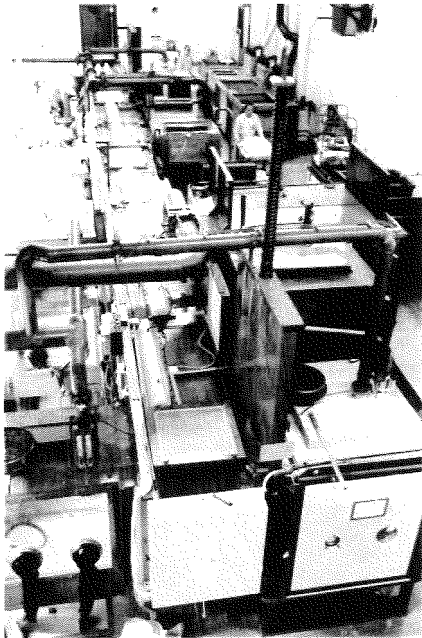


Abb. 10

Blick auf die Boxen-
straße in der Klein-
gerätedekontamination

Kleinere Teile werden in einer weiteren Halle in mehreren, durch Tunnel verbundenen Spezial-Arbeitsboxen dekontaminiert, (Abb. 16), welche mit einer Vielzahl bewährter Einrichtungen (Metallwaschmaschine, Trocken- und Naßsandstrahlung, Hochdruckspritzeanlage, Tauchbecken etc.) ausgestattet sind. Für die Behandlung kleinerer, mit α -Strahlern kontaminierter Geräte stehen α -dichte Handschuhkästen zur Verfügung. Größere, α -kontaminierte Teile werden in einem speziell ausgestatteten Raum, der nur mit Gasschutzanzügen betreten wird, gereinigt bzw. verschrottet.

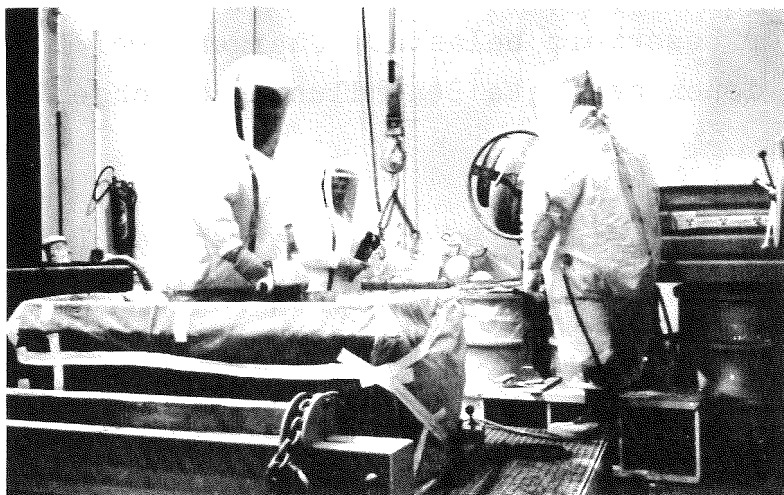


Abb. 17

Behandlung α -kontami-
nierter Gegenstände

In den Jahren 1968 bis 1970 wurden in der Betriebsanlage ca. 7000 Geräte im Neuwert von 15 Mio DM dekontaminiert.

Für die Dekontamination von ortsfesten Anlagen und die Beseitigung von Kontaminationen nach Unfällen wurde eine mobile Dekontaminationsgruppe aufgestellt. Sie hat seit 1966 bei 180 Einsätzen 40.000 Arbeitsstunden geleistet.

2.6 Behandlung konventioneller Abwässer

Der Personalbestand des Zentrums einschließlich fremder Einrichtungen von nahezu 4000 Mitarbeitern und die relativ große Entfernung zur nächsten kommunalen Kläranlage machten den Bau einer eigenen Kläranlage erforderlich, die sowohl häusliche als auch Chemieabwässer verarbeiten kann (Abb. 18).

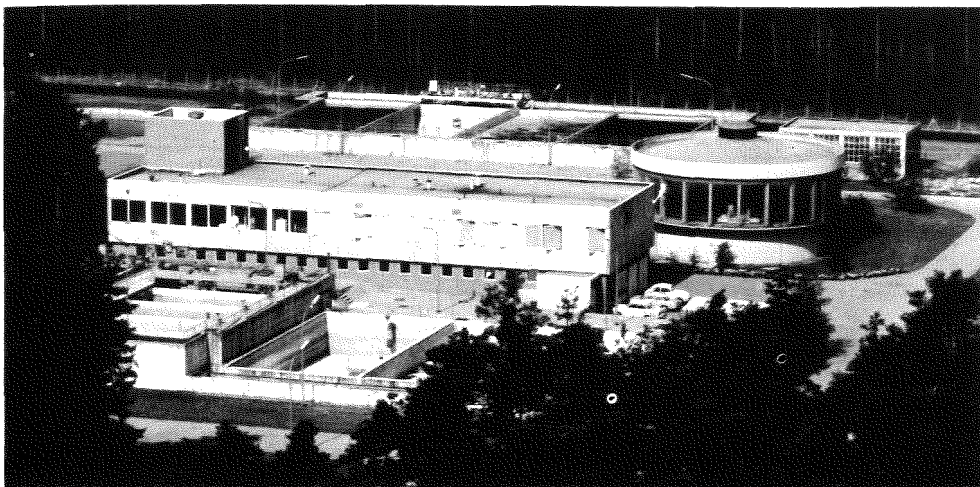


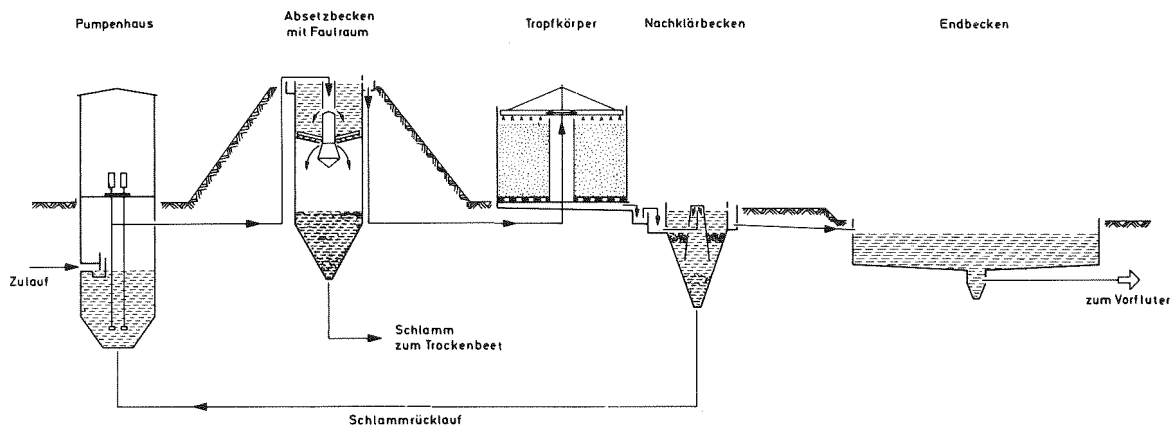
Abb. 18 Chemische Kläranlage

Die Chemieabwässer werden über eigene Leitungen von den einzelnen Anfallstellen zum Klärwerk gepumpt und dort in einem Zyklator weitgehend automatisch neutralisiert und geflockt. Außerdem stehen für besonders belastete Chargen zwei Becken zur Verfügung, in denen gezielte Behandlungen durchgeführt werden können.

Die häuslichen Abwässer fließen in einem getrennten Leitungssystem in die Kläranlage und werden nach mechanischer Vorklärung in einer Tropfkörperanlage biologisch gereinigt (Abb. 19).

Die gereinigten Chemie- und häuslichen Abwässer werden in großen Sammelbecken aufgefangen und erst nach Kontrolle in den Vorfluter abgegeben. Im Mittel werden jährlich rund 500.000 m^3 Abwasser aufbereitet, wobei Analysen gezeigt haben, daß die Qualität der gereinigten Abwässer in vieler Hinsicht besser ist als die des Vorfluterwassers.

Schema der mechanisch-biologischen Kläranlage



Schema der Kläranlage für Labor-Abwässer

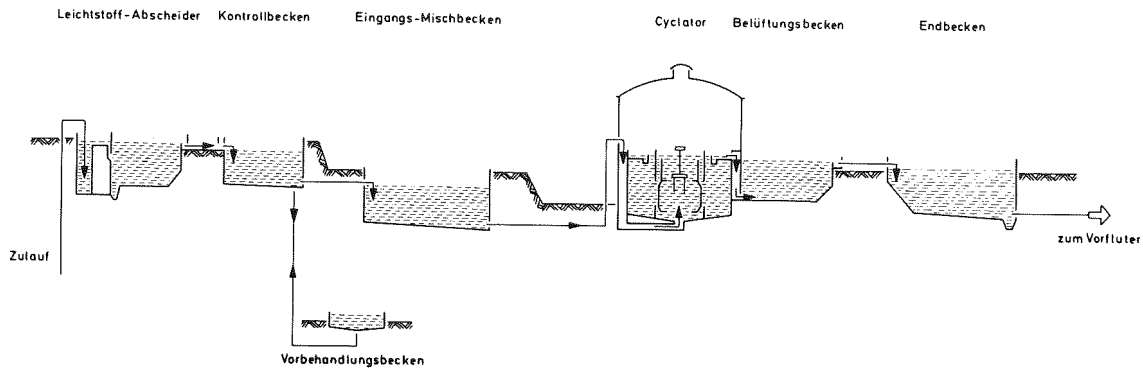


Abb. 19

Zur Entwicklung einer Alternativlösung für die mechanische Entwässerung und Mineralisierung von Chemieschlämmen werden in Zusammenarbeit mit der Limnologischen Station der Max-Planck-Gesellschaft Versuche mit Schilfanpflanzungen durchgeführt.

3. L A B O R A B T E I L U N G

Die von der Laborabteilung durchgeführten Forschungs- und Entwicklungsarbeiten gelten in erster Linie

- der Behandlung flüssiger radioaktiver Abfälle
- der Versenkung radioaktiver Abwässer in einen Aquiferspeicher
- der Verfestigung radioaktiver Rückstände
- der Dekontamination von Oberflächen
- der Verbesserung der konventionellen Abwasserbehandlung

3.1 Behandlung flüssiger radioaktiver Abfälle

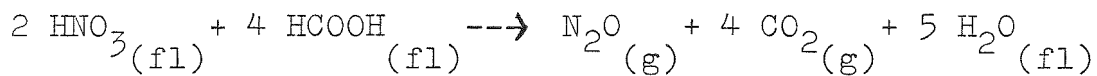
Die Erfahrungen bei der Dekontamination der radioaktiven Abwässer hatten gezeigt, daß die Wirksamkeit von Fällverfahren durch verschiedene Komplexbildner stark beeinträchtigt bzw. aufgehoben werden kann. Auch die kondensierten Phosphate, die über Wasch- und Dekontaminationsmittel in größerer Menge in das Abwasser gelangen, zeigen diese störende Wirkung. Um sie auszuschalten, wurden Untersuchungen zur Entfernung dieser Substanzen durchgeführt. Dabei ist es gelungen, die genannten Phosphorverbindungen durch Zusatz von Kalziumhydroxid bei bestimmten pH-Werten quantitativ zu eliminieren.

Obzwar die chemische Fällung im Kernforschungszentrum Karlsruhe ihre ursprüngliche Bedeutung als Behandlungsmethode für radioaktive Abwässer verloren hat, gewinnt die Fällung der Polyphosphate heute für die konventionelle Abwasserreinigung zunehmend an Interesse.

Zur Beseitigung der ebenfalls die Fällung störenden organischen Komplex- und Chelatbildner sowie der im Abwasser vorhandenen Kolloid- und Schutzkolloidsysteme wurde deren Zerstörung durch Behandlung mit Ozon untersucht. Obwohl je nach Stoffart und Arbeitsbedingung unterschiedliche Reaktionsgeschwindigkeiten gemessen wurden, konnte festgestellt werden, daß alle diese Störsubstanzen im Prinzip durch Ozonisierung

abgebaut werden können. Daneben wird durch die Ozonbehandlung auch die Koagulationsneigung und die Absetzgeschwindigkeit von kolloidalen Fällflocken erhöht und damit das Schlammvolumen reduziert. Ferner zeigte sich, daß bereits bei kurzzeitiger Ozoneinwirkung die Schaumentwicklung durch gebräuchliche Waschmittel selbst in hohen Konzentrationen völlig zum Stillstand kommt. Schließlich ist die Ozonbehandlung in bestimmten Fällen auch noch für die konventionelle Abwasserbehandlung von Interesse.

Bei der Wiederaufbereitung bestrahlter Kernbrennstoffe und bei der Dekontamination von Geräten entstehen große Mengen von kontaminierten, salpetersauren Abfalllösungen. Im allgemeinen ist die Rückgewinnung dieser Salpetersäure nicht wirtschaftlich. Andererseits führt die Neutralisation und nachfolgende Eindampfung zu erheblichen Mengen radioaktiver Rückstände. Dies wird durch ein bei der ADB entwickeltes Denitrierungsverfahren vermieden, bei dem die Salpetersäure durch Reaktion mit Ameisensäure



$$\Delta H = - 202 \text{ kcal}$$

zu Wasser, Lachgas und Kohlendioxid reduziert wird. Die entstehenden Gase können nach mechanischer Reinigung direkt abgeleitet werden und bilden somit keinen neuen radioaktiven Abfall.

Die Methode erlaubt auch die Reduktion von Schwermetallnitraten in wässriger Lösung sowie die gezielte Verminderung der Salpetersäure-Konzentration in Prozeßlösungen unter Umgehung der sonst üblichen Neutralisation bzw. Destillation. Besondere Bedeutung hat sie im Zusammenhang mit der Verfestigung hochradioaktiver Spaltproduktlösungen, weil durch die Denitrierung mit Ameisensäure die Flüchtigkeit des Rutheniums fast vollständig unterdrückt wird und besondere

Rutheniumfilter daher entfallen können. Weiterhin kann die Reduktion mit Ameisensäure auch zur Entfernung von Stickoxiden aus Abgasen angewandt werden.

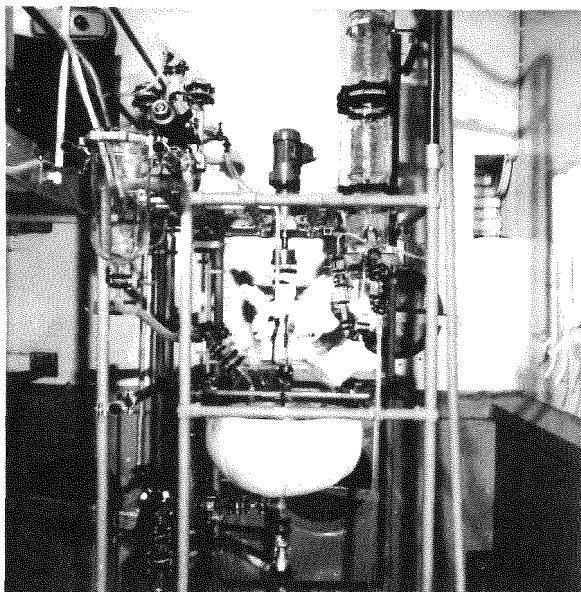


Abb. 20
Versuchsanlage zur
Verseifung von TBP und
Denitrifizierung von Salpe-
tersäure

Das kontaminierte, durch Kohlenwasserstoffe verdünnte Extraktionsmittel Tributylphosphat, das beim Einsatz in Wiederaufarbeitungsanlagen durch chemische und Strahleneinwirkung zersetzt wird, lagert man heute mangels geeigneter Behandlungsverfahren vielerorts in Tankanlagen. Zur Beseitigung dieser Abfalllösungen wurde ein Verfahren entwickelt, bei dem das TBP zu Butylalkohol und Trinatriumphosphat verseift wird. Das letztere geht wie der überwiegende Teil der Radionuklide in die wässrige Lösung und wird zusammen mit dieser abgetrennt und anschließend in Bitumen verfestigt (siehe Kapitel 2.2). Die organische Phase, bestehend aus den Kohlenwasserstoffen und Butylalkohol, ist weitgehend frei von Radionukliden und wird anschließend verbrannt. Für Abfalllösungen mit niedriger Konzentration (< 5 Vol.%) empfiehlt sich zunächst eine Anreicherung des TBP durch Extraktion mit konzentrierter Phosphorsäure nach einem ebenfalls hier entwickelten Verfahren.

3.2 Die Versenkung radioaktiver Abwässer in einen Aquiferspeicher

In jüngster Zeit werden an verschiedenen Stellen stark verschmutzte und giftige Abwässer - z.B. aus der Erdölgewinnung und der chemischen Industrie - durch Einpressen in isolierte Aquiferspeicher des tiefen Untergrundes so beseitigt, daß sie den Biozyklus und die Umwelt nicht mehr belasten können. Allein in den USA sind im Augenblick etwa 150 derartige Versenkbrunnen in Tiefen zwischen 60 m und mehr als 3600 m in Betrieb. In der UDSSR werden seit 1966 auch radioaktive Abwässer in Aquiferspeicher versenkt.

Diese Methode soll auch in der Bundesrepublik erprobt werden. Die geologischen Verhältnisse in unmittelbarer Nachbarschaft des Kernforschungszentrums Karlsruhe sind hierfür sehr günstig. In 900 - 1900 m Tiefe befinden sich mehrere erdölführende Horizonte, die zum größten Teil schon erschöpft sind. Unterhalb 3000 m Tiefe trifft man auf einen weiteren geeigneten Speicher im klüftigen Muschelkalk.

Im Rahmen eines Großversuches soll zunächst die Eignung einer der erschöpften Erdöl-Lagerstätten als Aquiferspeicher für tritiumhaltige Abwässer getestet werden. Auf diese Weise könnte man Tritium, das durch keines der bekannten Dekontaminationsverfahren aus radioaktiven Abwässern abgetrennt werden kann, sicher und ohne Belastung der Umwelt beseitigen. Darüber hinaus bietet das Verfahren bei Vorhandensein ausreichend mächtiger Speichergesteine eine interessante Möglichkeit der Beseitigung von radioaktiven Abwässern schlechthin sowie von schwer zu behandelnden, konventionellen flüssigen Abfällen.

3.3 Verfestigung radioaktiver Rückstände

Das für die Endlagerung der radioaktiven Abfälle aus der Bundesrepublik eingerichtete Salzbergwerk gestattet nur die Annahme fester oder verfestigter radioaktiver Rückstände.

Da im allgemeinen bei schwerlöslichen Rückständen höhere Aktivitätskonzentrationen und billigere Verpackungen zugelassen werden als bei leicht löslichen, ergab sich der Zwang, geeignete Methoden zur Verfestigung aller Arten radioaktiver Abfälle zu entwickeln. Gleichzeitig sollte das Verfahren aus ökonomischen Gründen zu möglichst geringen Mengen an radioaktiven Rückständen führen.

Ein bekanntes, leicht anwendbares Verfahren ist die Verfestigung von Fällschlämmen und Verdampferkonzentraten mit Zement. Für verschiedene handelsübliche Zementsorten und Zuschlagstoffe wurden Aufnahmefähigkeit, Abbindeverhalten und Auslaugbarkeit untersucht und ein für die hiesigen Betriebsbedingungen geeignetes Verfahren ausgearbeitet. Wenn z.B. 100 l Verdampferkonzentrat von 20 Gew.% Feststoffgehalt mit ca. 200 kg Zement und sonstigen Zuschlagstoffen vermischt werden, weisen die Produkte gute mechanische Stabilität und zufriedenstellende Auslaugbeständigkeit auf. Dabei entstehen allerdings ca. 200 l Endprodukt. Ein 200 l-Faß enthält somit nur etwas über 20 kg radioaktiv kontaminierter Salzurückstände, so daß bei der Verfestigung von Verdampferkonzentraten mit Zement eine wesentliche Volumenvermehrung eintritt.

Umfangreiche Untersuchungen haben gezeigt, daß ein weitaus geringeres Rückstandsvolumen durch homogenes Einbetten in Bitumen erzielt werden kann. Mit einem Doppelwellenextruder (Abb. 6) können mindestens 160 kg Salze mit 140 kg Bitumen zu ca. 200 l Bitumenprodukt verarbeitet werden, das ist im Falle eines 20 %-igen Verdampferkonzentrates etwa achtmal mehr als bei der Verfestigung mit Zement. Das Bitumenprodukt weist zudem eine um mindestens den Faktor 100 bessere Auslaugbeständigkeit auf.

Nach den bisherigen Untersuchungen sind Bitumenprodukte mit Aktivitätskonzentrationen bis zu 1 Ci/l strahlenchemisch stabil. Zur Bestimmung der maximal möglichen Aktivitätskonzentration in den Bitumenprodukten sind umfangreiche Untersuchungen angelaufen. Eigene und zusammen mit dem

Institut für Chemie der Treib- und Explosivstoffe, Berg-
hausen, durchgeführte Versuche über die Brenneigenschaften
und die Explosionsfähigkeit von Bitumen/Nitrat-Gemischen
ergaben, daß die Sicherheitsrisiken bei Herstellung,
Transport und Lagerung beherrschbar sind. Sämtliche unter-
suchten Produkte konnten selbst mit Treibladungen nicht
zur Explosion gebracht werden. Ihr Brennpunkt liegt im all-
gemeinen über 300 °C.

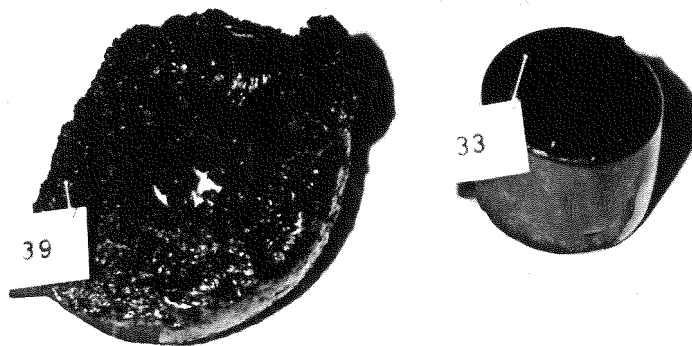


Abb. 21

Einfluß der Temperatur auf die Beschaffenheit von
Bitumen/NaNO₃-Gemischen; Probe 39 wurde bei 250 °C,
33 bei 150 °C hergestellt.

Die Lagerung der hochaktiven Spaltproduktlösungen mit eini-
gen tausend Ci/l, wie sie bei der Wiederaufarbeitung be-
strahlter Kernbrennstoffe anfallen, in zwangsgekühlten
Tanks am Standort, stellt weder aus Sicherheits- noch aus
wirtschaftlichen Gründen eine zufriedenstellende Dauerlö-

sung dar. Sie sollte auf die minimale, technisch notwendige Dauer beschränkt bleiben, nach der die Lösungen in feste Produkte zu überführen sind.

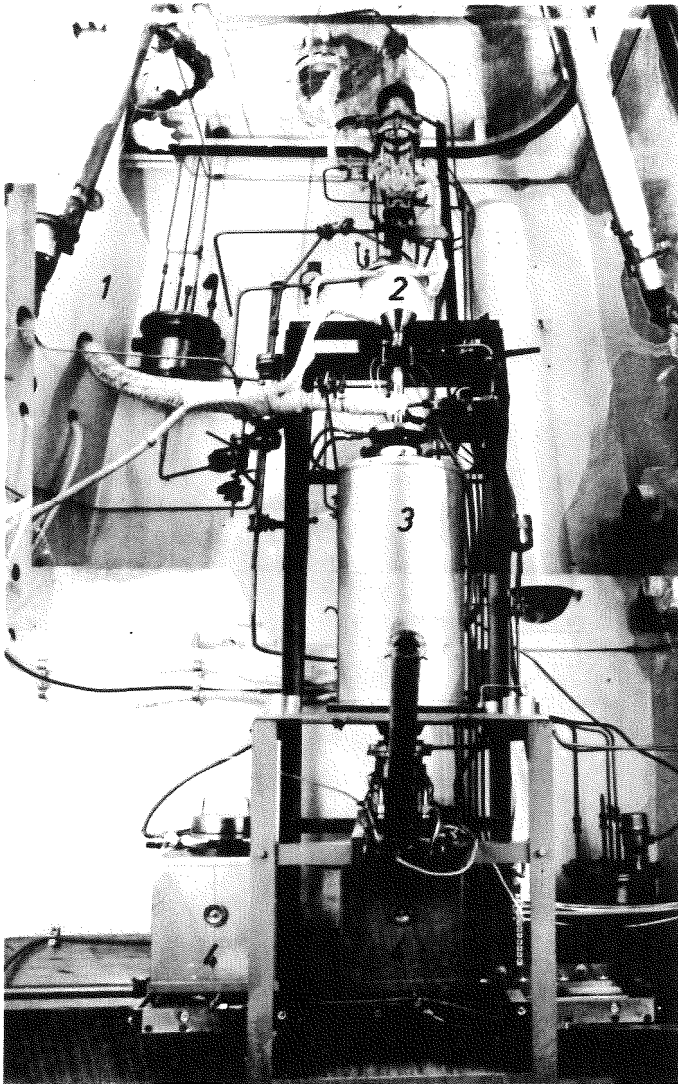


Abb. 22

Blick auf die Laboranlage zur Verglasung hochaktiver Spaltproduktlösungen in einer Heißen Zelle

1. Vorratsgefäß
2. Denitriereinrichtung
3. Glasschmelzofen
4. Temperöfen

Im Jahr 1965 wurden Forschungsarbeiten aufgenommen mit dem Ziel, ein geeignetes Verfestigungsverfahren zu entwickeln. In Laborversuchen wurden verschiedene Glassorten auf ihre Aufnahmefähigkeit für Spaltprodukttoxide und ihre chemisch-physikalischen Eigenschaften wie Wärmeleitfähigkeit, mechanische Festigkeit, Auslaugbeständigkeit, Schmelzpunkt, Viskosität, Korrosivität etc. untersucht. Dabei zeigte sich, daß für die in der Bundesrepublik Deutschland erwarteten

Abfalllösungen und die hier vorgesehene Endlagerung ein Borosilikatglas am besten geeignet ist. Es besteht aus ca. 40-45 % SiO_2 , 10-15 % Alkalioxiden, 10 % Titan- und Aluminiumoxid, 10 % Bortrioxid und 20-30 % Spaltprodukt-oxiden. Das Glas wird bei ca. 1100°C erschmolzen, hat eine Dichte von $2,8 \text{ kg/dm}^3$ und eine mittlere Wärmeleitfähigkeit von $1,2 \cdot 10^{-2} \text{ W/cm}^\circ\text{C}$ im Temperaturbereich von $100 - 500^\circ\text{C}$.

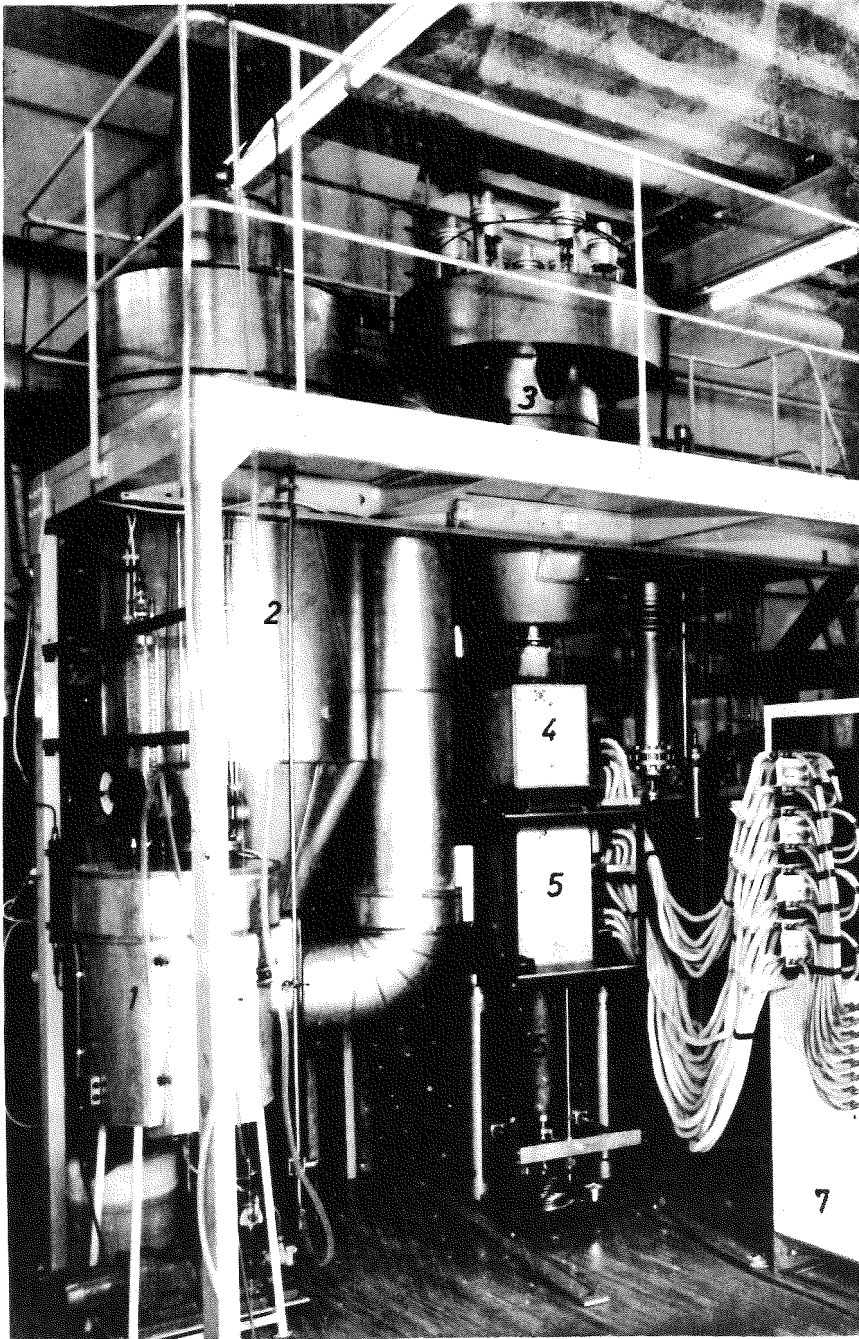
Die bei der Aufarbeitung von 1 t bestrahltem Kernbrennstoff (20.000 MWd/t) anfallenden ca. 600 l hochaktive Abfalllösung ergeben nach einer Abkühlzeit von ca. 3 Jahren etwa 60 l Glas mit einer spezifischen Aktivität bis zu 15.000 Ci/l , was der Freisetzung einer Zerfallswärme von rund $50 \text{ Kcal/l} \cdot \text{h}$ entspricht.



Abb. 23
Glasblock aus
der Laboranlage

Zur Überprüfung der in den inaktiven Versuchen mit simulierten Spaltproduktlösungen ermittelten Daten wurde in einer heißen Zelle eine Laborglassschmelzanlage (Abb. 22) errichtet, in der zylindrische Glasblöcke von 500 cm^3 Volumen (Abb. 23) aus echten hochaktiven Abfalllösungen

hergestellt werden können. Beim Betrieb dieser Anlage werden außerdem einige für die Planung einer Betriebsanlage notwendige Prozeßdaten - insbesondere für die Denitrierung (siehe Kapitel 3.1), den Schmelzvorgang und die Abgasreinigung - gewonnen.



- 1 Vorlagebehälter
- 2 Sprühkalzinator
- 3 Cyclon mit Filterkerzen
- 4 Glasschmelzofen
- 5 Temperofen
- 6 ausgefahrener Glasbehälter
- 7 HF-Induktionsanlage

Abb. 24 Inaktive Technikumsanlage zur Verglasung von Spaltproduktlösungen

Neben den grundlegenden Arbeiten im Labor werden auch technologische Entwicklungen im halbtechnischen Maßstab durchgeführt. Ziel dieser Arbeiten ist die Entwicklung eines Verfahrens, nach dem nicht nur die jetzigen, sondern auch die künftigen, in großen Wiederaufarbeitungsanlagen zu erwartenden Mengen hochaktiver Spaltproduktlösungen verfestigt werden können. Zur Zeit wird eine halbtechnische Versuchsanlage (Abb. 24) mit einem selbst entwickelten dampfbeheizten Sprühkalzinator und einer Mittel-Frequenz-Schmelzanlage inaktiv getestet.

Das Verfahren soll ab Ende 1973 mit Original-Abfalllösungen in der Heißen-Zellen-Anlage VERA erprobt werden. Die Planungsarbeiten werden von der Projektteilung (siehe Kapitel 4.1) durchgeführt.

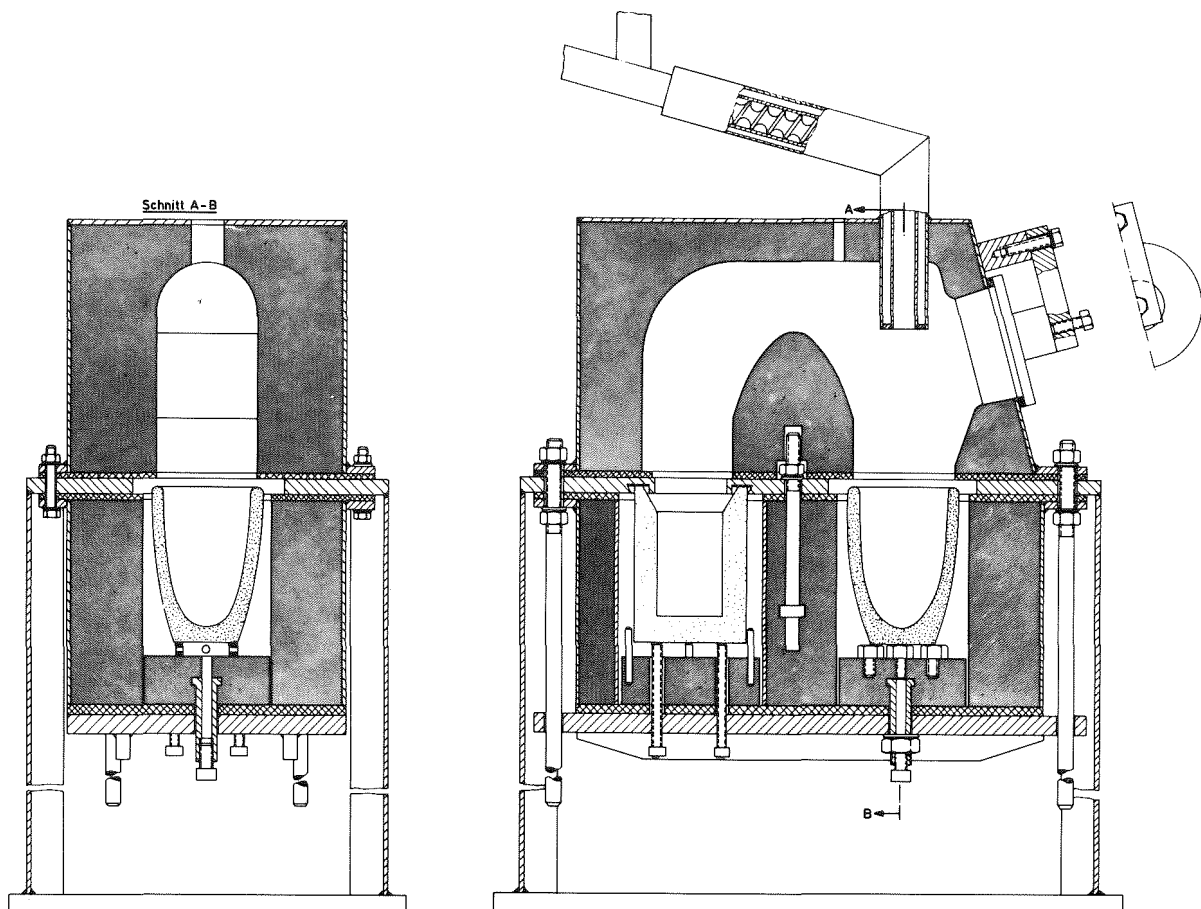


Abb. 25 Versuchsanlage zur Verfestigung von Spaltprodukten durch Thermitreaktion

Als mögliche Alternative zur Verfestigung in Glas werden auch Methoden zum Einschluß der Spaltprodukte in keramische Massen untersucht. Dabei wird das z.B. im Sprühkalzinator erzeugte Kalzinat mit Hilfe einer Thermitreaktion geschmolzen und zu einem keramischen Produkt umgesetzt. Die bei der Thermitreaktion auftretenden hohen Temperaturen (um 2000 °C) gestatten eine flexible Auswahl der Zuschlagstoffe und damit die Herstellung von Endprodukten, die den Gläsern noch überlegen sind. Die typische Zusammensetzung einer solchen Keramik ist 33 % Spaltproduktoxide, 22 % SiO₂ und 45 % Al₂O₃. Mit der Versuchsanordnung nach Abb. 25 konnte die Thermitreaktion soweit unter Kontrolle gebracht werden, daß ein Betrieb unter kontinuierlicher Zudosierung der Reaktionspartner möglich ist.

3.4 Dekontamination von Oberflächen

Die Dekontamination von Oberflächen ist eine häufige Aufgabe in der Kerntechnik. Sie erfordert meist einen hohen Personalaufwand, ergibt, da vielfach hochkonzentrierte Dekontaminationslösungen eingesetzt werden müssen, große Abfallmengen und führte bisher nicht immer zu den angestrebten Dekontaminationsfaktoren. Deshalb wurden Untersuchungen mit dem Ziel durchgeführt, effektivere und wirtschaftlichere Betriebsverfahren zu entwickeln, unter anderem mit gas- und dampfförmigen Dekontaminationsreagenzien. Dabei kommen die Oberflächen nur mit nicht kontaminierten Reagenzien in Berührung, wodurch die Reinigungswirkung wesentlich erhöht und eine Rückkontamination ausgeschlossen wird. Die Dekontaminationsreagenzien brauchen seltener erneuert zu werden, was zu einer Reduzierung der Abfallmengen führt.

Die bisherigen Ergebnisse zeigen, daß z.B. mit Salpetersäuredämpfen, die Spuren von Fluorkarbonnetzmitteln enthalten, etwa um eine Größenordnung bessere Dekontaminationsfaktoren erreicht werden können, als mit den bisher angewandten Tauchverfahren.

Die Wirksamkeit der Dekontaminationsverfahren wird an Oberflächen getestet, die nach abgestuften standardisierten Methoden so kontaminiert werden, daß die erzeugten Kontaminationen den in der Praxis auftretenden möglichst nahe kommen.

Da der Aufwand für die Dekontamination u.a. auch sehr stark vom Werkstoff und der Beschaffenheit der Oberflächen abhängt, sollte bereits bei der Auswahl von Anstrichsystemen, Beschichtungen, Fußbodenbelägen und Werkstoffen für kerntechnische Anlagen auf gute Dekontaminierbarkeit dieser Materialien geachtet werden. Aus diesem Grunde wurde ein Verfahren zur Beurteilung der Dekontaminierbarkeit von Oberflächen entwickelt, das auf Auftragsbasis routinemäßig zur Prüfung von Industrieprodukten eingesetzt wird. Der Hersteller sendet zu diesem Zweck Materialproben seines Erzeugnisses und erhält ein Gutachten über die Dekontaminierbarkeit in Form eines Prüfberichtes (Abb. 26).

3.5 Verbesserung der konventionellen Abwasserbehandlung

Die zur Betriebsabteilung gehörenden Anlagen für die Behandlung der inaktiven Abwässer bieten gute Möglichkeiten für die Durchführung von praxisnahen Untersuchungen zur Verbesserung der konventionellen Abwasserbehandlungsverfahren. Ein kürzlich begonnenes Versuchsprogramm beschäftigt sich insbesondere mit der Entwicklung und Erprobung fortgeschrittener physikalisch-chemischer Methoden. Dabei wurden u.a. auch Verfahren, die sich bei der Dekontamination radioaktiver Abwässer bewährt haben, auf ihre Anwendbarkeit im konventionellen Abwasserbereich geprüft. Ferner sollen Untersuchungen über Adsorptionsverfahren (Aktivkohle und andere Adsorbentmaterialien) und dazugehörige Regenerierungsverfahren durchgeführt werden. Mit der halbtechnischen Erprobung einer am Lehrstuhl für Wasserchemie der TU Karlsruhe im Labormaßstab entwickelten Methode zur chemischen Regenerierung erschöpfter Aktivkohle und dem Vergleich ihrer

Datum: _____

Prüfbericht Nr.: _____

a) Angaben des Lieferanten:

Probe: _____

Firma: _____

Material: _____

Probeaufbau: _____

Untergrund: _____

Herstelltag: _____ Alterung (24 h, 80 °C) am: _____

b) Physikalische Untersuchung:

Probeabmessung: _____ Farbe: _____ Ral Nr.: _____

Schichtdicke: _____ Flächengew.: _____

spez. Gew.: _____ Rauigkeit: _____

Glanz: _____ Festigkeit: _____

Sonstiges: _____

c) Chemische Untersuchung: Einwirkzeit 2 Std.

Säuren: 1 n HCl _____

Konz HNO₃ _____

Laugen: 1 n NaOH _____

Lösungsmittel: Einwirkzeit 10 Min.

Äthanol: _____

Azeton: _____

Benzol: _____

Methylenchlorid: _____

Brennbarkeit: _____

Sonstiges: _____

d) Decontaminierbarkeit:

Klasse: _____

Meßgerät: _____

Detektor: _____

	Einrockenverfahren	Einwirkverfahren	
Radionuklide			
Lösung			
Aktivität			mC/ml
Lsg.- Menge			ml
Anfangsakt.			Imp/m
30 sec. waschen in H ₂ O dest.			Imp/m
Dekontamination			D _x %
60 sec. waschen in H ₂ O dest.			Imp/m
Dekontamination			D _x %
120 sec. waschen in H ₂ O dest.			Imp/m
Dekontamination			D _x %
60 sec. waschen in 1 n HCl			
Dekontamination			D _x %
Dekontamination			D _x %
1 Min. bürsten mit Luo-Dermin c/R			Imp/m
Dekontamination			D _x %
Dekontamination			Imp/m
Dekontamination			D _x %
Dekontamination			Imp/m
Dekontamination			D _x %

wirtschaftlichen Konkurrenzfähigkeit zu den bisher üblichen thermischen Regenerierverfahren wurde bereits begonnen.

Klärschlamm kann durch Bestrahlung sterilisiert und leichter entwässert werden. Auch bei der Behandlung von Abwässern, die stark mit organischen Verunreinigungen belastet sind, können - insbesondere in Gegenwart von Sauerstoff - unter hohen Strahlendosen gute Reinigungseffekte erzielt werden. Die wirtschaftliche Anwendung derartiger Methoden setzt jedoch billige Strahlenquellen voraus. Solche erhält man künftig in großen Mengen bei der Verfestigung der hochaktiven Spaltproduktlösungen. Aus diesem Grunde stellen Versuche zur Bestrahlung von Klärschlamm und Abwasser mit hochradioaktiven Abfallgläsern einen weiteren Schwerpunkt der Arbeiten dar.

4. PROJEKT ABTEILUNG

Von der Betriebs- und der Laborabteilung werden laufend Aufgaben maschinen- und verfahrenstechnischer Art an die Projektabteilung gestellt. Dazu gehörten in der jüngsten Zeit aus der Betriebsabteilung u.a. die Beschaffung einer zweiten Verdampferanlage für radioaktives Abwasser, die Installation der Bituminieranlage (siehe Kapitel 2.2) sowie die Auslegung einer Betriebsanlage für die Behandlung von Lösungsmittel- und Salpetersäureabfällen. Für die Labors wurden verschiedene Versuchsaufbauten konstruiert, z.B. der Thermitofen (Abb. 25).

Diese Arbeiten machen allerdings nur den kleineren Teil der gesamten Aufgaben aus. Der größere Anteil entfällt auf:

- Planung der Mehrzweckversuchsanlage für die Verfestigung hochradioaktiver Spaltproduktlösungen (Projekt VERA)
- Entwicklung kerntechnischer Einrichtungen für den Transport und die Endlagerung aller Kategorien radioaktiver Abfälle in das Salzbergwerk Asse.

4.1 Planung und Herstellung der Mehrzweckversuchsanlage VERA

Auf dem Gebiet der Verfestigung hochaktiver Spaltproduktlösungen in Glas sind neben den in Kapitel 3.3 beschriebenen inaktiven Versuchen sowie den Arbeiten an der hochaktiven Laboranlage auch hochaktive Versuche im halbbtechnischen Maßstab in der Anlage VERA geplant. Sie sollen die Möglichkeit bieten, die verfahrenstechnischen Fragen der Verfestigung zu studieren und damit die Anlagenkomponenten für eine spätere Betriebsanlage zu entwickeln. Um in der Anlage VERA neben der Verfestigung in Glas auch andere Verfahren, wie z.B. Verfestigung in keramischen Massen (siehe Kapitel 3.3) unter hochaktiven Bedingungen testen zu können, wurde besonderer Wert gelegt auf eine flexible und an die verschiedenen Prozeßvarianten anpassungsfähige Auslegung der Anlage. Deshalb werden nur die allgemein verwendbaren Anlagekomponenten, z.B. Lagertanks für die Spaltproduktlösungen, Abgasreinigung und Hilfssysteme fest installiert, dagegen werden die prozeßspezifischen Apparatteinheiten in Gestellbauweise (Rack-Technik) ausgeführt, um ein fernbedientes Auswechseln zu ermöglichen (Abb. 27, 28).

Unter den in anderen Ländern entwickelten Verfahren zur Verglasung von Spaltprodukten hat sich keines für die eigenen Verhältnisse als optimal erwiesen. Deshalb wurde versucht, aus den bisher bekannten Anlagen die für die hiesige Situation am besten geeigneten Komponenten herauszugreifen und mit Eigenentwicklungen für einen neuen Prozeß zu kombinieren, der kontinuierlich betrieben und durch Maßstabvergrößerung auch an große Durchsätze angepaßt werden kann.

Danach werden die Spaltproduktlösungen zunächst mit Ameisensäure denitriert (siehe Kapitel 3.1) und anschließend in einem Sprühtrockner zur Trockne eingedampft und kalziniert. Das Kalzinat wird mit Glasbildnern zu einem Glas

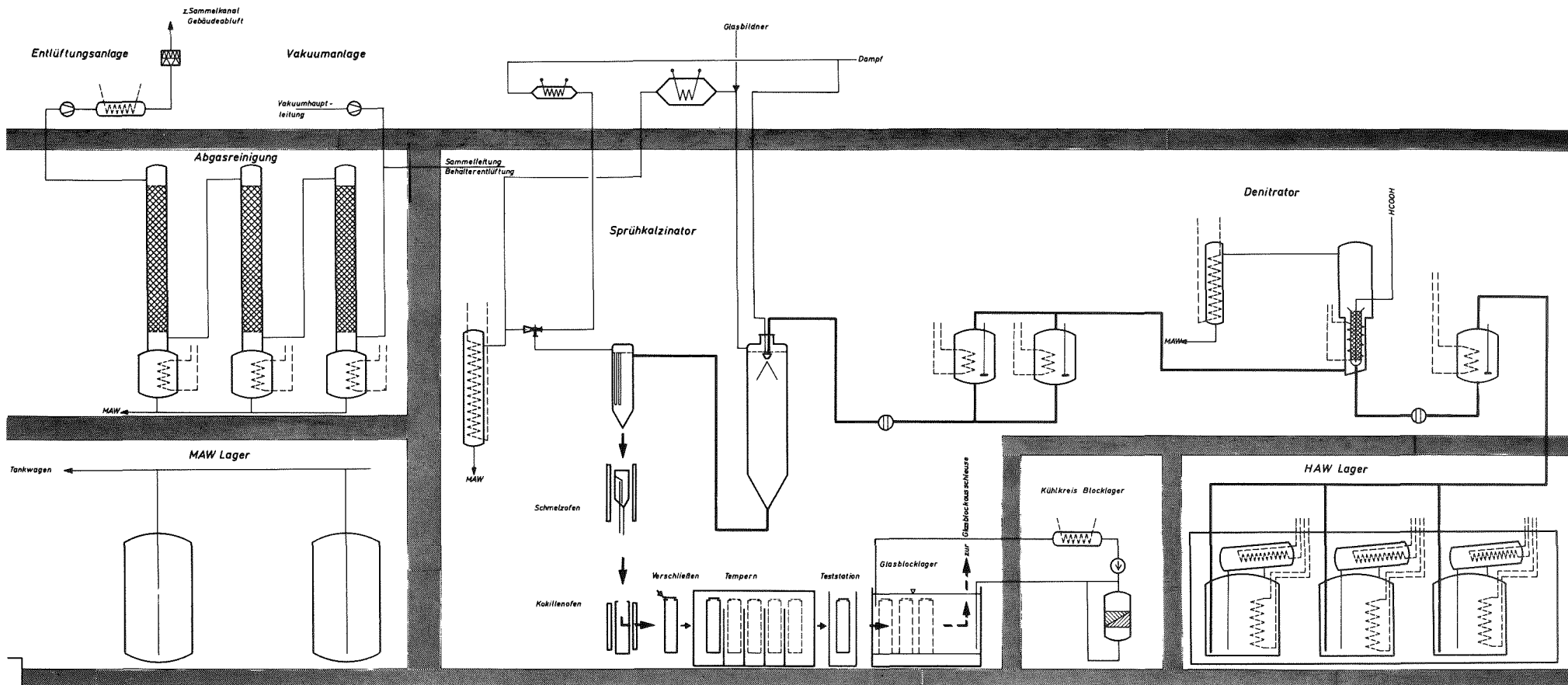


Abb. 27 Anlagenschema V E R A

geschmolzen und in Endlagerbehälter abgefüllt (Abb. 24). Von den bekannten Sprühkalzinatoren unterscheidet sich die Eigenentwicklung in der direkten Beheizung mit überhitztem Dampf, der im Kreislauf geführt wird. Diese Methode vermeidet durch niedrigere Wandtemperaturen die Verkrustungsgefahren und hat gegenüber der elektrischen Wandbeheizung den weiteren Vorteil, daß sie den Bau von großen Apparateeinheiten mit hohen Durchsatzleistungen, ähnlich handelsüblichen Zerstäubungstrocknern erlaubt. Dadurch entfällt die Notwendigkeit zur Errichtung von Paralleleinheiten bei größeren Durchsätzen.

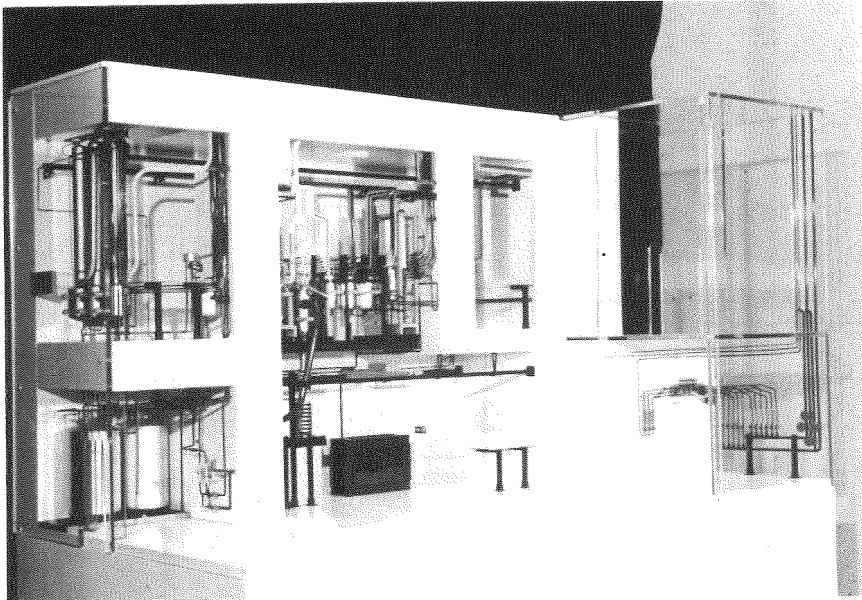


Abb. 28 Modell der Versuchsanlage VERA zur Verfestigung hochaktiver Spaltproduktlösungen

Die Mehrzweckversuchsanlage VERA wird einen Durchsatz von 15 l/h haben. Sie wird in 3 heißen Zellen installiert. Die Bauarbeiten wurden im April 1971 begonnen. Die heiße Inbetriebnahme ist für Anfang 1974 vorgesehen.

4.2 Entwicklung kerntechnischer Einrichtungen für den Transport und die Einlagerung radioaktiver Abfälle in das Salzbergwerk Asse

Alle im Kernforschungszentrum anfallenden radioaktiven Rückstände müssen zu dem ca. 500 km entfernten Salzbergwerk Asse transportiert werden. Die Beförderung erfolgt über Straße und Schiene. Die Transportvorschriften verlangen je nach Natur und Aktivität der radioaktiven Stoffe unterschiedlich stabile und dichte Verpackungen und Abschirmungen. In Zusammenarbeit mit der Abteilung Reaktorbetrieb und Technik des Kernforschungszentrums entwickelt und beschafft die Projekt-Abteilung die für den Transport der verschiedenen Kategorien radioaktiver Abfälle vom Zentrum zum Salzbergwerk erforderlichen Transportbehälter und Geräte.

Schwachaktive Rückstände, d.h. Abfälle, deren Dosisleistung die für Transporte zugelassenen Höchstwerte nicht übersteigt, können in einfachen Industrieverpackungen (Blechtrommeln, Fässern etc.) in handelsüblichen Transportsystemen, z.B. Containern, befördert werden und bedürfen daher keiner besonderen Einrichtung oder Abschirmung.

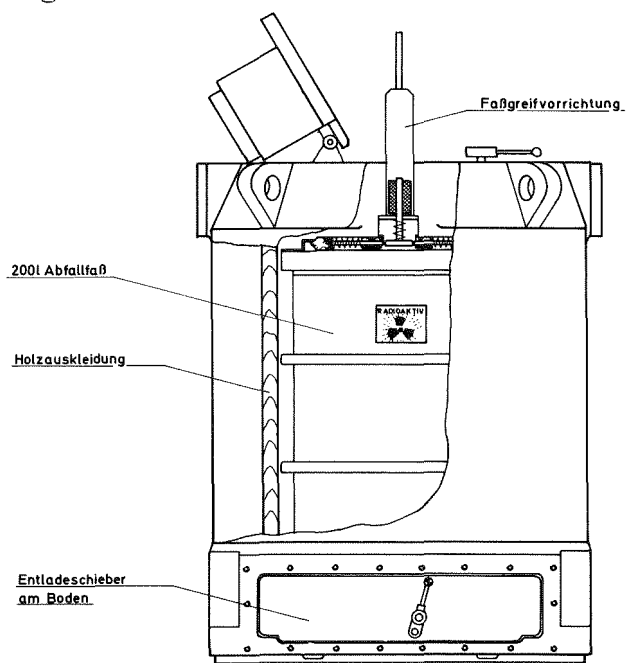


Abb. 29
Einzelabschirmbehälter
für den Transport und
die Einlagerung mittel-
aktiver Abfälle im
Salzbergwerk Asse

Mittelaktive Rückstände, d.h. Stoffe, die zwar einer Abschirmung bedürfen, jedoch im Gegensatz zu den hochaktiven Abfällen noch zu keiner Selbsterhitzung führen, müssen in abgeschirmten Transportbehältern gehandhabt und befördert werden. Von diesen wurden zwei Typen entwickelt. Im Typ Einzelbehälter (Abb. 29), der mit 2 Abschirmdicken ausgeführt wird, kann jeweils eines der als Verpackung vorgeschriebenen stabilen 200 l-Rollreifenfässer befördert werden. Im Sammelbehälter (Abb. 30) können 7 Abfallfässer transportiert werden. Zur Reduzierung des Transportgewichts und damit der Transportkosten wurde dieser so gebaut, daß die Abschirmung in drei Stufen variiert werden kann.

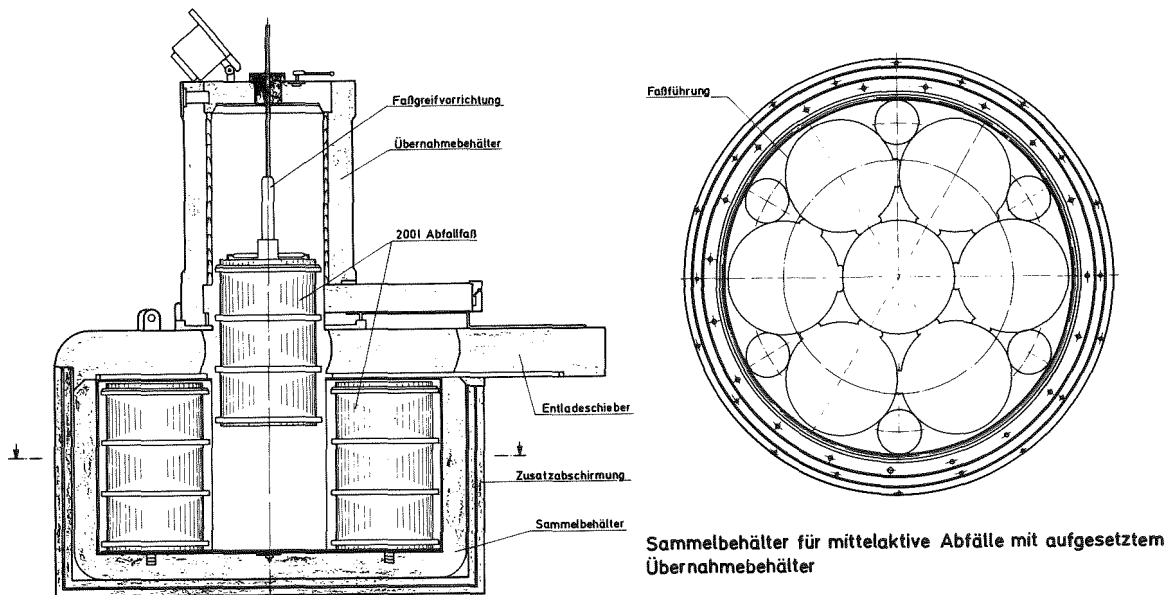


Abb. 30

Beim Transport hochaktiver Rückstände, das sind im wesentlichen die aus der Verfestigung von Spaltproduktlösungen stammenden Glasblöcke, muß der Transportbehälter nicht nur über eine ausreichende Abschirmdicke verfügen, sondern auch die freigesetzte Zerfallswärme sicher abführen können. Es wurde ein Behälter entwickelt, der jeweils einen der in

der Anlage VERA erzeugten Glasblöcke transportieren und in die Lagerpositionen im Salzbergwerk ablassen kann.

Die Projektteilung entwickelt ferner die zur Einlagerung aller radioaktiven Rückstände in das Salzbergwerk Asse notwendigen kerntechnischen Einrichtungen. Dies erfolgt in Zusammenarbeit mit der Gesellschaft für Strahlen- und Umweltforschung (GSF), München, die das Bergwerk betreibt und für die bergtechnischen Einrichtungen verantwortlich ist; die GSF führt außerdem die geologischen und hydrologischen Forschungs- und Überwachungsprogramme aus.

Aufgrund der Erfahrungen aus mehreren Versuchseinlagerungen mit schwachaktiven Rückständen wurden zusammen mit der GSF die Annahmebedingungen für diese Abfallkategorie erarbeitet. Bei der Festlegung der maximal zulässigen Aktivitätsmengen wurde in erster Linie die Beschaffenheit des Abfalls und die Art seiner Verpackung berücksichtigt.

Mittelaktive Abfälle werden erstmals im Herbst 1971 eingelagert. Aufgrund der erhöhten Strahlung müssen alle zur Einlagerung erforderlichen Manipulationen, einschließlich des Transportes durch den Schacht, unter voller Strahlenabschirmung durchgeführt werden. Abb. 31 zeigt die Lagerkammer für mittelaktive Abfälle sowie die Beschickungstechnik.

Diese Einlagerungsmethode ist einfach und bei kleinem Durchsatz voll zufriedenstellend. Die größeren Abfallmengen künftiger Jahre können jedoch damit nicht bewältigt werden. Deshalb soll im Rahmen eines mit EURATOM vereinbarten Versuchsprogramms eine Lagerkaverne errichtet werden, die über einen separaten Schacht beschickt wird. Die Abfälle werden dann übertage aus den Transportbehältern in eine Zelle umgeladen und von dort unabgeschirmt durch den Schacht direkt in die Lagerkammer abgelassen.

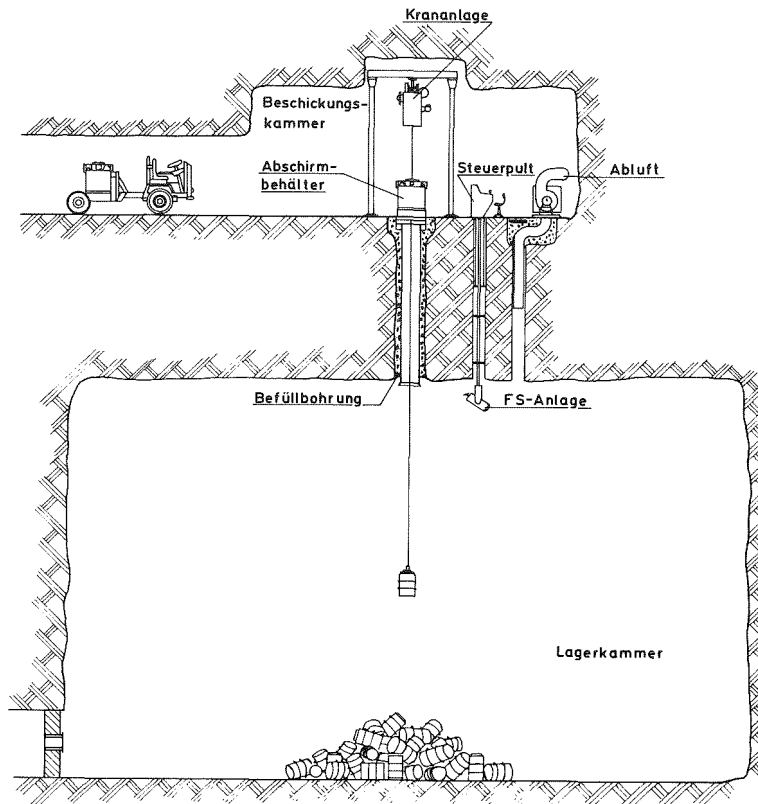


Abb. 31 Prinzip der Einlagerung mittelaktiver Abfälle im Salzbergwerk Asse

Die Einlagerung hochaktiver, selbsterhitzender Abfälle (Glasblöcke) muß so erfolgen, daß die Zerfallswärme sicher an das Salzgebirge abgegeben werden kann. Deshalb werden die Glasblöcke in 50 bis 100 m tiefen Lagerbohrungen, die mehrere Meter voneinander entfernt sind, gestapelt (Abb. 32).

Wenn die Lagerbohrungen bis einige Meter unter die Oberkante gefüllt sind, werden sie mit Betonstopfen abgedeckt und dann mit gemahlenem Salz aufgefüllt (Abb. 33).

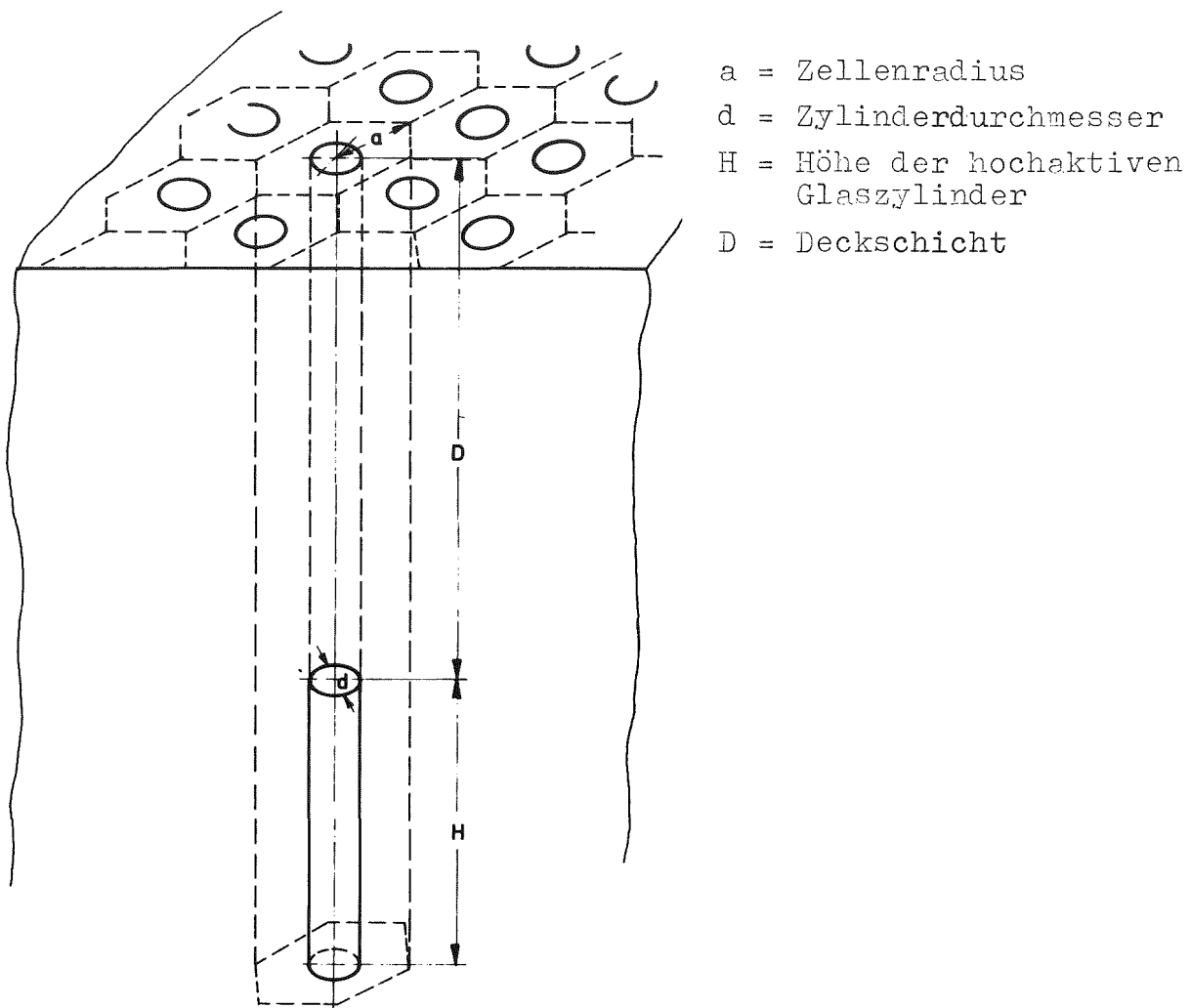


Abb. 32 Räumliche Anordnung der hochaktiven Glaszylinder im Salzbergwerk Asse

Zur Festlegung der Abmessungen der Glasblöcke und der Lagergeometrie werden vom Institut für Elektrische Anlagen und Energiewirtschaft der TU Aachen umfangreiche wärmetechnische Berechnungen durchgeführt. Die Ergebnisse dieser Studie werden durch Versuche mit elektrisch beheizten Simulationselementen überprüft. Die Einlagerung der ersten hochaktiven Glasblöcke ist für das Jahr 1974 vorgesehen.

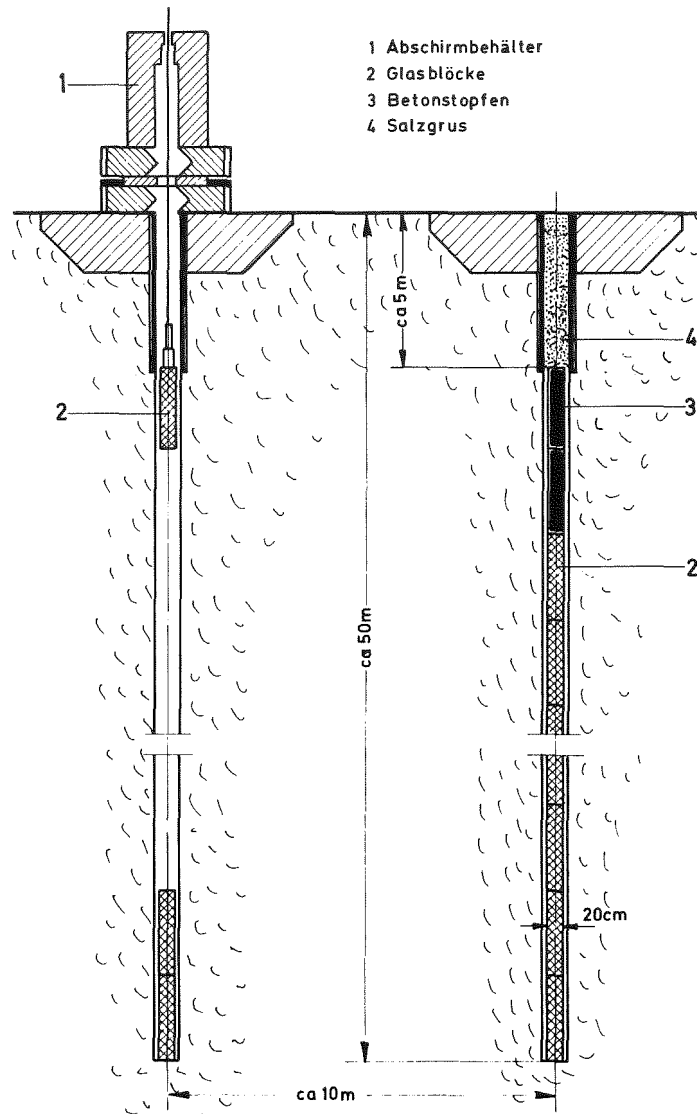


Abb. 33 Schema der Endlagerung hochaktiver Glasblöcke im Salzbergwerk Asse

5. Z U S A M M E N F A S S U N G

In der Abteilung Dekontaminationsbetriebe des Kernforschungszentrums Karlsruhe werden seit 10 Jahren große Mengen radioaktiver Abfälle der verschiedensten Kategorien aufbereitet und zahlreiche kontaminierter Geräte gereinigt. Die hierzu eingesetzten Verfahren und Anlagen haben sich sehr gut bewährt und sind bisher allen Anforderungen gerecht geworden. In letzter Zeit werden auch von außerhalb des Zentrums mehr und mehr radioaktive Abfälle und kontaminierte Geräte angeliefert. Die bei der Abfallbehandlung zurückbleibenden radio-

aktiven Rückstände werden durch geeignete Verfahren in feste, gut fixierte Produkte überführt, die den Anforderungen für die Einlagerung im Salzbergwerk Asse und den Transport dorthin voll genügen.

Trotz der Steigerung der jährlichen Anfallmengen um etwa den Faktor 10 sowie der um einige Größenordnungen höheren Aktivität konnte die in die Umwelt abgeleitete Restaktivität auf dem gleichen, niedrigen Niveau gehalten werden wie vor 10 Jahren. Auch in Zukunft wird sich dieses Bild trotz des zu erwartenden weiteren starken Anstieges nicht wesentlich ändern.

In den Laboratorien werden laufend die im Betrieb eingesetzten Verfahren verbessert bzw. neue Verfahren entwickelt. Die wichtigsten hiervon waren die Entfernung von Polyphosphaten aus Abwässern, die Zerstörung von Komplexbildnern durch Ozonisierung, die Verseifung von Tributylphosphat, die rückstandsfreie Zerstörung von Salpetersäure, die Fixierung wässriger Rückstände in Bitumen und die Dekontamination von Oberflächen. Die Arbeiten der letzten Zeit zielen in erster Linie auf die Verfestigung hochaktiver Spaltproduktlösungen durch ein Borosilikatglasverfahren und durch ein Thermitverfahren sowie auf die Verbesserung der konventionellen Abwasserreinigung.

In der Projektabteilung werden die verfahrenstechnischen Fragen der Verfestigung hochaktiver Spaltproduktlösungen bearbeitet und damit die Grundlagen der späteren Technologie entwickelt.

Für die Endlagerung radioaktiver Abfälle im Salzbergwerk Asse werden hier die erforderlichen technischen und kerntechnischen Konzeptionen und Einrichtungen entwickelt. Die bisherigen Arbeiten haben bereits die Voraussetzungen zur Einlagerung schwach- und mittelaktiver Abfälle geschaffen; die Vorbereitungen für die Einlagerung hochaktiver Abfälle laufen. Die ausgearbeiteten Konzepte werden es erlauben, auch den zu erwartenden Bedürfnissen der Kerntechnik in den nächsten Jahrzehnten gerecht zu werden.

6. LITERATUR

Die nachfolgende Zusammenstellung umfaßt die wichtigsten Veröffentlichungen der Abteilung Dekontaminationsbetriebe zu den vorgenannten Sachgebieten.

6.1 Übersichten über den Gesamtbereich

KRAUSE, H. et al.,
Jahresbericht 1967 der ASD-Dekontamination,
KFK-888 (1968).

KRAUSE, H. et al.,
Jahresbericht 1968 der Abteilung Dekontaminationsbetriebe,
KFK-1030 (1970).

KRAUSE, H. et al.,
Jahresbericht 1969 der Abteilung Dekontaminationsbetriebe,
KFK-1346 (1971).

BÄHR, W., HEMPELMANN, W., KRAUSE, H., NENTWICH, O.,
"Experiences in the treatment of low- and intermediate-
level radioactive wastes in the Nuclear Research Centre,
Karlsruhe",
Management of Low- and Intermediate-Level Radioactive
Wastes (Proc. Symp. Aix-en-Provence 1970), IAEA, Vienna
(1970) 461-484.

KRAUSE, H.,
"Waste treatment and disposal",
Industrial Aspects of the Nuclear Fuel Cycle in Europe,
4th FORATOM Congress, Stockholm 1970,
Paper submitted by Deutsches Atomforum e.V., Section V,
Reprocessing, 12-14.

6.2 Behandlung radioaktiver Flüssigkeiten und konventioneller Abwässer

KRAWCZYNSKI, S.,
Die Behandlung der Abwässer auf dem Gelände des Atom-
forschungszentrums Karlsruhe,
Gas- und Wasserfach (Wasser-Abwasser) 101 36 (1960)
909-914; 101 38 (1960) 969-972.
KFK-36 (1960).

KRAWCZYNSKI, S.,
Der Einfluß von synthetischen Reinigungsmitteln und
Komplexbildnern auf die Dekontamination radioaktiver
Abwässer mittels der chemischen Fällungsmethode,
Atompraxis 6 8 (1960) 320-322.
KFK-32 (1960).

KRAWCZYNSKI, S., KANELLAKOPULOS, B.,
Entfernung von Radiocaesium aus Abwässern durch Fällung
mittels Schwermetallsalzen des Ferrocyanids,
Atomkernenergie 6 5 (1961) 214-217.
KFK-59 (1961).

KRAUSE, H.,
Erfahrungen in der Aufbereitung der radioaktiven Abwässer
des Kernforschungszentrums Karlsruhe in den Jahren 1961
und 1962,
Kerntechnik 6 3 (1964) 97-104.
KFK-227 (1964).

KRAUSE, H., HEPP, H., KLUGER, W.,
Versuche zur Zerstörung von Komplex- und Chelatbildnern
in radioaktiven Abwässern durch Oxidation,
KFK-287 (1964).

KRAUSE, H., NENTWICH, O.,
Die Dekontamination der radioaktiven Abwässer des Kern-
forschungszentrums Karlsruhe in den Jahren 1963 bis 1965,
Kerntechnik 8 3 (1966) 105-110.

KRAUSE, H., NENTWICH, O.,
"The treatment of low-level and medium-level liquid
radioactive wastes at the Karlsruhe Nuclear Research
Centre",
Practices in the Treatment of Low- and Intermediate-
Level Radioactive Wastes (Proc. Symp. Vienna 1965), IAEA,
Vienna (1966) 317-337.

DROBNIK, S., KLUGER, W., HEPP, W.,
Entfernung von kondensierten Phosphaten aus radioaktiven
Abwässern,
KFK-917 (1968).

KRAUSE, H., NENTWICH, O.,
Dekontamination radioaktiver Abwässer im Kernforschungs-
zentrum Karlsruhe,
Chemie-Ingenieur-Technik 40 6 (1968) 301-305.

6.3 Behandlung radioaktiver Festabfälle

KRAUSE, H., STOLLBERG, H., HEMPELMANN, W.,
"Treatment of low-level solid waste at the Karlsruhe
Nuclear Research Centre",
Practices in the Treatment of Low- and Intermediate-
Level Radioactive Wastes (Proc. Symp. Vienna 1965), IAEA,
Vienna (1966) 699-711.

KRAUSE, H.,
Die Verbrennungsanlage für radioaktive Abfälle im Kern-
forschungszentrum Karlsruhe,
Brennstoff-Wärme-Kraft 21 9 (1969) 485.

HEMPELMANN, W., KRAUSE, H.,
Behandlung der festen radioaktiven Abfälle im Kernfor-
schungszentrum Karlsruhe,
Chemie-Ingenieur-Technik 42 9/10 (1970) 645-653.
KFK-1224 (1970).

6.4 Dekontamination von Geräten und Anlagen

KRAWCZYNSKI, S., MEIXNER, A.,
Kontaminations-Schutzanzüge zum Arbeiten in radioaktiv
kontaminierter Umgebung,
Kerntechnik 2 7/8 (1960) 231-233.

KRAUSE, H., HEPP, H., KIENHÖFER, M.,
"Decontamination of equipment and facilities at the
Karlsruhe Nuclear Research Centre",
Proc. of the First International Symposium on the De-
contamination of Nuclear Installations, Harwell, England,
1966. CONF-660520, Cambridge, At the University Press
(1967) 183-188.

HEPP, H.,
Dekontamination von Reaktorbauteilen,
Allianz-Berichte für Betriebstechnik und Schadenverhütung
6 (1968) 22-34.
KFK-720 (1968).

BOLDYREFF, P., KIEFER, H., KRAUSE, H., ZUEHLKE, K.,
"The nuclear emergency assistance team, an institution
for nuclear emergency relief",
Handling of Radiation Accidents (Proc. Symp. Vienna 1969),
IAEA, Vienna (1969) 567-578.

BERGER, W., HEPP, H., SAUERMAN, P.F.,
Untersuchungen zur Dekontaminierbarkeit von Anstrichen,
Farbe und Lack 26, 1 (1970) 44-49.

6.5 Verfestigung radioaktiver Rückstände

KLUGER, W., KRAUSE, H., NENTWICH, O.,
"Fixing of radioactive residues in bitumen",
presented at the Research Coordination Meeting on the
Incorporation of Radioactive Wastes in Bitumen, Dubna,
USSR, 1968. Reported in Bituminization of Radioactive
Wastes, Technical Reports Series No. 116, IAEA, Vienna,
STI/DOC/10/116 (1970).
KFK-1037 (1969).

GUBER, W.,
Verfestigung von hochaktiven Spaltproduktlösungen durch
Einschmelzen in Glas (Projekt VERA),
KFK-Nachrichten 2 1 (1970) 11-12.

6.6 Lagerung und Beseitigung radioaktiver Abfälle

RAMDOHR, H.,
Schrifttumsübersicht über Endlagerung radioaktiver
Abfallstoffe in Salzformationen,
KFK-205 (1964).

KRAUSE, H., RAMDOHR, H.,
Jahresbericht 1964 der Studiengruppe für Tieflagerung
radioaktiver Abfälle,
KFK-357 (1965).

KRAUSE, H.,
Die Lagerung radioaktiver Abfälle in Salzformationen,
EURATOM - Bulletin der Europäischen Atomgemeinschaft 4
3 (1965) 87-90.

KRAUSE, H.,
"The German situation in the field of solidification and
final storage of high-level radioactive wastes",
Proc. of the Symposium on the Solidification and Long-Term
Storage of Highly Radioactive Wastes, Richland, Wash.,
1966, CONF-660208 (1966) 85-89.

KRAUSE, H., RAMDOHR, H., SCHUCHARDT, M.C.,
Jahresbericht 1965 der Studiengruppe für Tieflagerung
radioaktiver Abfälle,
KFK-481 (1966).

KRAUSE, H., RAMDOHR, H., SCHUCHARDT, M.C.,
Jahresbericht 1966 der Studiengruppe für Tieflagerung
radioaktiver Abfälle,
KFK-663 (1967).

KRAUSE, H., RAMDOHR, H., SCHUCHARDT, M.C.,
"Project for storing radioactive wastes in a salt cavity",
Disposal of Radioactive Wastes into the Ground (Proc.
Symp. Vienna 1967), IAEA, Vienna (1967) 479-494.

KRAUSE, H., RAMDOHR, H., BÖHME, G., ALBRECHT, E.,
"Experimental storage of radioactive wastes in the
Asse II salt mine",
Disposal of Radioactive Wastes into the Ground (Proc.
Symp. Vienna 1967), IAEA, Vienna (1967) 519-531.

ALBRECHT, E., KOLDITZ, H., KÜHN, K., TRABANDT, H.E.,
HEPP, H., KLUGER, W., KRAUSE, H.,
Endlagerung radioaktiver Rückstände,
Schriftenreihe des Deutschen Atomforums, Heft 16,
Deutsches Atomforum, Bonn (1969).

BORCHERT, H., DÜRR, K., KLARR, K., KÜHN, K., STAUPENDAHL, G.,
ALBRECHT, E., KOLDITZ, H., THIELEMANN, K., TRABANDT, H.,
HEPP, H., KRAUSE, H., SCHUCHARDT, M.C.,
Tieflagerung radioaktiver Abfälle. Jahresbericht 1968,
KFK-1138 - GSF T-25 (1969).

ALBRECHT, E., KÜHN, K., PERZL, F.,
DIEFENBACHER, W., HEIL, J., KRAUSE, H., SCHUCHARDT, M.C.,
"Disposal of radioactive wastes by storage in a salt
mine in the Federal Republic of Germany",
Management of Low- and Intermediate-Level Radioactive
Wastes (Proc. Symp. Aix-en-Provence 1970), IAEA, Vienna
(1970) 753-771.

BORCHERT, H., DÜRR, K., KLARR, K., KÜHN, K., LAMBY, B.,
STAUPENDAHL, G., ALBRECHT, E., KOLDITZ, H., SCHNECKEN-
BERGER, K., THIELEMANN, K., TRABANDT, H.E.,
DIEFENBACHER, W., HEIL, J., KRAUSE, H., SCHUCHARDT, M.C.,
Endlagerung radioaktiver Abfälle. Jahresbericht 1969,
GSF T-27 - KFK-1212 (1970).

6.7 Patente, Patentanmeldungen, Gebrauchsmuster

KRAUSE, H., KLUGER, W., HEPP, H., GEISEL, R. (Erfinder),
Gesellschaft für Kernforschung mbH, Karlsruhe (Anmelder),
Verfahren zum Dekontaminieren radioaktiver Wasser in An-
wesenheit von Störsubstanzen,
Deutsche Offenlegungsschrift 15 17 664; Anmeldetag: 27.2.1965
Offenlegungstag: 19.6.1969; Auslegungstag: 29.4.1971.

STOLLBERG, H. (Erfinder),
Gesellschaft für Kernforschung mbH, Karlsruhe (Anmelder),
Ofen zum Behandeln von feuchten Substanzen, insbesondere
zum Trocknen von radioaktiv verseuchten biologischen Sub-
stanzen,
Deutsches Gebrauchsmuster 1 925 489;
Anmeldetag: 31.8.1965; Tag der Eintragung; 14.10.1965.

KRAUSE, H., HEMPELMANN, W., RAMDOHR, H. (Erfinder),
Gesellschaft für Kernforschung mbH, Karlsruhe (Anmelder),
Verfahren und Vorrichtung zur Beseitigung radioaktiver
oder giftiger Abfälle,
Deutsches Patent 1 236 944;
Anmeldetag: 30.10.1965; Ausgabetag: 5.10.1967.

STOLLBERG, H. (Erfinder),
Gesellschaft für Kernforschung mbH, Karlsruhe (Anmelder),
Paketiervorrichtung für zusammenpreßbares Gut, insbeson-
dere für radioaktive Abfälle,
Deutsches Gebrauchsmuster 1 931 077;
Anmeldetag: 5.11.1965; Tag der Eintragung: 13.1.1966.

STOLLBERG, H. (Erfinder),
Gesellschaft für Kernforschung mbH, Karlsruhe (Anmelder),
Sackfilter,
Deutsches Gebrauchsmuster 1 941 941;
Anmeldetag: 13.5.1966; Tag der Eintragung: 7.7.1966.

NENTWICH, O. (Erfinder),
Gesellschaft für Kernforschung mbH, Karlsruhe (Anmelder),
Verfahren zum Behandeln radioaktiver oder giftiger Rück-
stände,
Patent-Anmeldung P 15 89 839.2; Anmeldetag: 15.7.1967.

HEMPELMANN, W. (Erfinder),
Gesellschaft für Kernforschung mbH, Karlsruhe (Anmelder),
Nachverbrennungs- und Rauchgasreinigungs-Einrichtung für
eine Anlage zum Verbrennen von Abfällen mit unterschied-
lichen Heizwerten und/oder unterschiedlichen Verbrennungs-
luftbedarf,
Deutsches Gebrauchsmuster 6 917 812;
Anmeldetag: 2.5.1969; Tag der Eintragung: 22.1.1970.
Belgisches Patent 749 835; Ausgabetag: 30.6.1970.
Frankreich: Gebrauchszertifikat-Anmeldung 7 016 207;
Anmeldetag: 4.5.1970.
Schweiz: Patent-Anmeldung 6051/70; Anmeldetag: 22.4.1970.

DROBNIK, St. (Erfinder),
Gesellschaft für Kernforschung mbH, Karlsruhe (Anmelder),
Verfahren zum Entfernen von Salpetersäure und/oder Nitrat-
und Nitrit-Ionen aus wässrigen Abfall-Lösungen,
Patent-Anmeldung P 19 35 273.9; Anmeldetag: 11.7.1969.
Belgisches Patent 753 218; Ausgabetag: 15.9.1970.
Frankreich: Patent-Anmeldung 7 025 886; Anmeldetag: 10.7.1970.
Großbritannien: Patent-Anmeldung 32 775/70; Anmeldetag: 7.7.1970
Italien: Patent 69 395-A/70; Ausgabetag: 10.7.1970.
Japan: Patent-Anmeldung 60 551/70; Anmeldetag: 11.7.1970.
USA: Patent-Anmeldung 53 283; Anmeldetag: 8.7.1970.

KIENHÖFER, M., HEMPELMANN, W., WALDENMEIER, G. (Erfinder),
Gesellschaft für Kernforschung mbH, Karlsruhe (Anmelder),
Vorrichtung zum Schleusen kontaminierter Flüssigkeiten
und/oder Gase,
Patent-Anmeldung P 20 50 598.0; Anmeldetag: 15.10.1970.