

KERNFORSCHUNGSZENTRUM

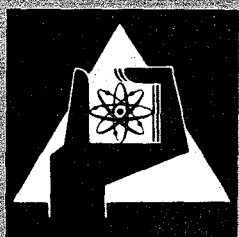
KARLSRUHE

August 1976

KFK 2255

Projekt Wiederaufarbeitung und Abfallbehandlung

**Sammlung der Vorträge anlässlich des
1. Statusberichtes des Projektes Wiederaufarbeitung
und Abfallbehandlung am 17. 11. 1975**



**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

KFK 2255

Projekt Wiederaufarbeitung und Abfallbehandlung

Sammlung der Vorträge anlässlich des

1. Statusberichtes des Projektes Wiederaufarbeitung
und Abfallbehandlung am 17.11.75

Gesellschaft für Kernforschung mbH, Karlsruhe

Inhaltsverzeichnis

	Seite
1. Begrüßung und Eröffnung	1/1-1/5
H. Böhm, Vorstandsmitglied der Gesellschaft für Kernforschung mbH.	
2. Ansprache	2/1-2/4
H. Matthöfer, Bundesminister für Forschung und Technologie	
3. Ziele und Stand des Projektes Wiederaufarbeitung und Abfallbehandlung (PWA)	3/1-3/40
R. Kroebel, Projektleitung PWA	
4. Entwicklung und Stand der industriellen Wiederaufarbeitung in der Bundesrepublik	4/1-4/21
W. Issel, Projektleitung der Kernbrennstoff-Wiederaufarbeitungsgesellschaft mbH. (KEWA)	
5. Betriebserfahrungen bei der Wiederaufarbeitung von LWR-Brennstoffen in der Wiederaufarbeitungsanlage für Kernbrennstoffe (WAK)	5/1-5/10
K.L. Huppert, Gesellschaft zur Wiederaufarbeitung von Kernbrennstoffen mbH. (GWK)	
6. Chemisch-verfahrenstechnische Entwicklungen zum Wiederaufarbeitungsprozeß	6/1-6/31
F. Baumgärtner, Institut für Heiße Chemie (IHCH)	
7. Arbeiten zur Behandlung radioaktiver Abfälle aus Wiederaufarbeitungsanlagen	7/1-7/18
H. Krause, Abteilung zur Behandlung radioaktiver Abfälle (ABRA)	
8. Behandlung des Headend-Abgases	8/1-8/10
W. Weinländer, Institut für Heiße Chemie (IHCH)	
9. Aerosol- und Jodentfernung aus dem Headend-Abgas einer Wiederaufarbeitungsanlage	9/1-9/18
J.G. Wilhelm, Labor für Aerosolphysik und Filtertechnik (LAF)	

10. Verfestigung hochaktiver Abfälle

10/1-10/11

K. Scheffler, Abteilung zur Behandlung
radioaktiver Abfälle (ABRA)

11. Inline-Instrumentierung und rechnergeführte
Prozeßüberwachung bei der Wiederaufarbeitung

11/1-11/12

H.R. Mache, Institut für Datenverarbeitung
in der Technik (IDT)

P. Groll, Institut für Heiße Chemie (IHCH)

Prof. Dr. H. Böhm

17. November 1975

Statusbericht 1975 des Projektes Wiederaufarbeitung und Abfallbehandlung

Begrüßung und Eröffnung

Es ist schon zur Tradition geworden, daß die Gesellschaft für Kernforschung in regelmäßigen Abständen in Form von Statusberichten oder Jahreskolloquien die interessierte Fachöffentlichkeit über die Ziele und Ergebnisse ihrer größeren Projekte informiert. Auch bei unserem jüngsten Projekt, das die Wiederaufarbeitung bestrahlter Brennelemente und die Behandlung und Lagerung radioaktiver Abfälle zum Thema hat, wollen wir an diesem Vorgehen festhalten. So darf ich Sie heute zum ersten Statusbericht dieses Projektes sehr herzlich begrüßen.

Wir freuen uns ganz besonders, daß Sie, Herr Minister Matthöfer zu dieser Veranstaltung gekommen sind und durch Ihre aktive Teilnahme deutlich machen, welche Bedeutung die Bundesregierung diesem Teil des nuklearen Brennstoffkreislaufs zumißt. Wir alle erwarten Ihre Ausführungen mit großem Interesse.

Ich begrüße weiter Herrn Staatssekretär Dr. Hauff sowie die Herren Bundestagsabgeordneten Benz und Pfeffermann als Vertreter des Ausschusses für Forschung und Technologie. Die überaus starke Beteiligung von Vertretern aus den verschiedensten Bereichen der Behörden, der Industrie und der Forschung des In- und Auslandes sowie der Presse dokumentiert nur zu deutlich das Interesse und die kritische Aufmerksamkeit, die Wiederaufarbeitung und Abfallbehandlung in zunehmendem Maße finden. Die Zeiten scheinen vorbei zu sein, in denen Veranstaltungen über Wiederaufarbeitung nur wenige Zuhörer fanden.

Als das Projekt zu Beginn des Jahres 1974 gebildet wurde, bestand bei der GfK schon eine lange Tradition auf diesem Gebiet. In den fast schon historisch zu nennenden F+E Programmen der frühen sechziger Jahre findet

man Arbeiten zur flüssig-flüssig Extraktion des Urans, Plutoniums und der Spaltprodukte genauso wie Vorhaben zur Behandlung und Lagerung radioaktiver Abfälle. Die in die Jahre 67-70 fallende Errichtung der Wiederaufarbeitungsanlage Karlsruhe war ein weiterer und wesentlicher Schritt, die Arbeiten zur Wiederaufarbeitung in Karlsruhe zu einem Schwerpunkt zu machen. In Karlsruhe liegen somit im Bereich der Wiederaufarbeitung und Abfallbehandlung nicht nur auf der F+E Seite viele Erfahrungen vor, sondern auch im technisch-industriellen Bereich durch die Arbeiten der WAK und die seit vielen Jahren durchgeführte Behandlung und Beseitigung großer Mengen radioaktiver Abfälle. Diese Kombination von Forschungs-, Betriebs- und Genehmigungserfahrung stellt zweifellos eine realistische Beurteilung der Gesamtsituation und der einzelnen Projektvorhaben sicher.

Es war deshalb ein folgerichtiger Schritt, die Aktivitäten der GfK auf diesem Gebiet in einem Projekt zusammenzufassen, als die international durch Verzögerungen und Fehlschläge gekennzeichnete Wiederaufarbeitungssituation eine deutliche Verstärkung der F+E Arbeiten erforderte, mit dem vorrangigen Ziel den Bau einer großen deutschen Wiederaufarbeitungsanlage Mitte der achtziger Jahre zu ermöglichen.

Die Gründe, die in den vergangenen zwei Jahren dazu geführt haben, daß die Wiederaufarbeitung von einer durch Überkapazitäten gekennzeichneten, problemarmen Technik zu einem sehr schwierigen Bereich geworden ist, in dem in einigen Jahren mit nennenswerten Minderkapazitäten zu rechnen ist, sind in jüngster Vergangenheit mehrfach genannt worden. Es sind dies u.a. erhebliche Verzögerungen im Ausbau und der Inbetriebnahme von Anlagen in den USA, die Nichtinbetriebnahme einer nach einem wenig erprobten Verfahren konzipierten Anlage der GE, technische Schwierigkeiten der britischen Anlage in Windscale mit einer daraus resultierenden Änderung der Ausbaupläne, sowie die Unterschätzung gewisser technischer Schwierigkeiten und nicht zuletzt die steigenden Anforderungen.

Waren es vor einigen Jahren überwiegend wirtschaftliche Gründe, die eine Wiederaufarbeitung mit dem Zweck der Rückgewinnung des Urans und Plutoniums allein zu rechtfertigen schienen, so tritt seit einiger Zeit immer

stärker der Entsorgungsgesichtspunkt mit dem Ziel einer sicheren Beseitigung bzw. Endlagerung der radioaktiven Produkte in den Vordergrund. Es wird kaum ernsthaft bestritten, daß die Verbrennung des in größeren Mengen anfallenden Plutoniums in Reaktoren sowohl vom energiepolitischen Standpunkt als auch unter dem Gesichtspunkt der endgültigen Beseitigung dieses Stoffes der sinnvollste Weg ist und in Verbindung mit einer sicheren Endlagerung der anderen Abfallprodukte allein eine Wiederaufarbeitung rechtfertigt und notwendig macht. Wenn auch die wirtschaftliche Seite bei der Wiederaufarbeitung von LWR-Brennelementen gegenüber dem Entsorgungsgesichtspunkt zurückgetreten ist, so bedeutet dies nicht, daß die LWR-Wiederaufarbeitung jetzt und in Zukunft vom wirtschaftlichen Standpunkt nicht zu vertreten sei. Aufarbeitungskosten einerseits und Wert der rückgewonnenen Spaltstoffe unter Berücksichtigung des negativen Wertes unaufgearbeiteter Brennelemente andererseits liegen relativ dicht beieinander, so daß es von der Entwicklung, nicht zuletzt des Uranpreises und der Anreicherungskosten abhängt, ob die LWR-Wiederaufarbeitung auch vom wirtschaftlichen Standpunkt allein zu rechtfertigen ist.

Es heißt die Verhältnisse ins richtige Licht zu rücken, wenn man sich einmal vor Augen führt, daß Wiederaufarbeitungskosten von DM 500/kg, ohne Berücksichtigung des Wertes der rückgewonnenen Spaltstoffe, den Strompreis mit nur etwa 2/10 Dpfg/kwh belasten.

Wegen der bei der Wiederaufarbeitung anfallenden Mengen von Plutonium und radioaktiven Spaltprodukten ist die Wiederaufarbeitung und Abfallbehandlung mit der Hypothek belastet, der unangenehmste Teil der Kerntechnik zu sein. Ohne Zweifel sind mit der großtechnischen Wiederaufarbeitung wegen des damit verbundenen Umgangs mit großen Mengen radioaktiver Stoffe zahlreiche und auch schwierige Sicherheitsprobleme verbunden. Sie sind zu einem großen Teil anders als z.B. bei Reaktoren, aber deshalb nicht etwa schwieriger zu beherrschen. Die Tatsache, daß ein großer Teil des F+E Programms unseres Projektes auf Fragen der Sicherheit und der Umweltverträglichkeit ausgerichtet ist, so die Arbeiten zur Abgasreinigung und zur Abfallbehandlung und Endlagerung, zeigt, welchen Stellenwert wir diesem Problem beimessen. Es ist keine Frage, daß notwendige Sicherheitsmaßnahmen nicht mit dem Maßstab der Wirtschaftlichkeit gemessen werden dürfen. Ich halte es aber für

ebenso verantwortungsbewußt, wenn man bei jeder geplanten, unter der Überschrift Sicherheit laufenden Maßnahme, sehr genau nach dem tatsächlichen Nutzen für einen erhöhten Schutz bzw. eine erhöhte Sicherheit fragt.

Bei der GfK ist im Zusammenhang mit der Gründung des Projektes in den vergangenen zwei Jahren sehr ausführlich und auf breiter Basis über die Wiederaufarbeitung und Abfallbehandlung diskutiert worden. Ich kann hier sagen, daß bei uns die Bedeutung dieses Teils des Brennstoffkreislaufs für die weitere Entwicklung der Kerntechnik klar erkannt ist und daß das Projekt die volle Unterstützung der Gremien und der Mitarbeiter des Zentrums findet. Nur so war und ist der starke personelle und materielle Ausbau des Projektes in der kurzen Zeit möglich. Hierfür möchte ich unseren Mitarbeitern, aber auch den Stellen außerhalb des Zentrums, insbesondere den Mitarbeitern des BMFT, die uns beim Aufbau des Projektes unterstützt haben, danken.

Die Arbeiten der GfK zur Wiederaufarbeitung und Abfallbehandlung sind nur ein Teil - wenn auch unserer Meinung nach sehr wichtiger Teil - der von vielen Stellen gemeinsam getragenen Anstrengungen zur Erreichung des Zieles einer sicheren Entsorgung der Kerntechnik. Das Projekt hat deshalb von Beginn an sein Programm in enger Kooperation mit der Industrie geplant und durchgeführt. Auf Grund dieser sachlich engen Bindung war es naheliegend, die KEWA als planende Industrie und die GWK als die die WAK betreibende Gesellschaft um Beiträge zu diesem Statusbericht zu bitten, um Sie, meine Damen und Herren, auch mit den industriellen Planungen einerseits und den technischen Erfahrungen mit einer bestehenden Wiederaufarbeitungsanlage andererseits vertraut zu machen.

Mit diesen kurzen Ausführungen eröffne ich den ersten Statusbericht des Projektes Wiederaufarbeitung und Abfallbehandlung und wünsche Ihnen allen eine interessante Veranstaltung, die u.a. dazu beitragen möge, das Verständnis für die Bedeutung der Wiederaufarbeitung und Abfallbehandlung und deren Probleme zu vertiefen.

Wir können uns keinen besseren Beginn dieses Statusberichtes vorstellen, als durch den zuständigen Bundesminister über die Vorstellungen der

Bundesregierung zu diesem wichtigen Gebiet der Kerntechnik informiert zu werden. Ich darf Ihnen, sehr geehrter Herr Minister Matthöfer, herzlich dafür danken, daß Sie aus Anlaß des Statusberichtes nach Karlsruhe gekommen sind und darf Sie nunmehr bitten das Wort zu ergreifen.

Rede von Bundesforschungsminister Hans Matthöfer zum Statusbericht des Projektes Wiederaufarbeitung und Abfallbehandlung (PWA) der Gesellschaft für Kernforschung am 17.11.1975 in Karlsruhe.

Ich danke Ihnen für Ihre Einladung zu diesem Statusbericht. Ich begrüße es außerordentlich, daß bei dieser Gelegenheit alle Beteiligten - Staat, Industrie und Zentrum - vor Beginn der Realisierung der industriellen Entsorgungsanlagen Gelegenheit haben, in der Öffentlichkeit ihren Standpunkt und ihre Pläne darzulegen.

Zwanzig Jahre nachdem in der Bundesrepublik die friedliche Nutzung der Kernenergie begonnen hat, wurde mit der Inbetriebnahme des Leistungsreaktors Biblis A die wirtschaftlich-industrielle Reife des Stromerzeugung durch Kernenergie demonstriert. Sie wird in den künftigen Jahren einen wesentlichen Platz einnehmen, selbst wenn die Projektionen des Energieprogramms -als Folge der wirtschaftlichen Entwicklung oder von Energieeinsparungsmaßnahmen, die wir ja anstreben- nicht voll verwirklicht werden sollten.

Ich glaube, uns allen ist heute klar, daß ein voller Durchbruch der Kernenergie zur Nutzung in großem Maßstab nur möglich sein wird, wenn

- im Gesamtsystem Kernenergie alle technischen Probleme bewältigt werden und
- die Öffentlichkeit von der Notwendigkeit und Sicherheit der Kernenergie überzeugt werden kann.

Zunächst zu den technischen Problemen:

Die bisherigen Betriebsergebnisse der deutschen Kernkraftwerke haben, so meine ich, gezeigt, daß der Leichtwasser-Leistungsreaktor ein zuverlässiges, leistungsfähiges System darstellt. Ein Reaktor, mag er noch so gut funktionieren, kann aber nur dann sinnvoll und sicher betrieben werden, wenn seine Versorgung mit frischem Brennstoff, also sein Brennstoffkreislauf, ebenfalls sichergestellt ist.

Ich freue mich, daß dies von den Energieversorgungsunternehmen als Betreibern der Kraftwerke erkannt und berücksichtigt wird, die sich bemühen, auch mit eigenen Mitteln die Entwicklung voranzutreiben, um die hier noch zu verzeichnenden Schwachstellen im Gesamtsystem der Kernenergienutzung zu beseitigen. Dieses Engagement konzentrierte sich zunächst auf den Bereich der Versorgung. Hier sind inzwischen die Voraussetzungen für Bau und Betrieb industrieller Anlagen geschaffen worden.

Dort, wo es um die Entsorgung geht, also bei der Zwischenlagerung und Wiederaufarbeitung der bestrahlten Brennelemente, bei der Rezyklierung der rückgewonnenen spaltbaren Materialien (Rest-Uran und Plutonium), bei der Behandlung der radioaktiven Abfälle und ihrer Überführung in lagerfähige feste Produkte, bei der Zwischenlagerung dieser Produkte und schließlich ihrer Endlagerung fragt die Öffentlichkeit zu Recht nach der Wirtschaftlichkeit und Sicherheit der angebotenen Lösungen und auch danach, ob wirklich alles praktisch zu verwirklichen ist, was man als theoretische Konzeption beeindruckend finden mag. Die sichere Handhabbarkeit von Plutonium und die Endlagerung der radioaktiven Abfälle über tausende von Jahren sind nicht ohne Grund zu zentralen Themen der sogenannten nuklearen Kontroverse geworden.

Mit unserer Konzeption eines nationalen, räumlich integrierten Entsorgungssystems sind wir auf einem guten Weg. Die Konzentration von Wiederaufarbeitung, Plutoniumverarbeitung, Abfallbehandlung und Endlagerung an einem Standort gilt weltweit als sinnvoll. Sie wird insbesondere zu einer drastischen Reduzierung der Transporte gefährlicher Materialien und damit zu einer wesentlichen Minderung von Sicherheitsrisiken führen.

Wo sehen wir hier die Aufgaben des Staates ? Unsere unmittelbare Verantwortung liegt sicher im Bereich der Endlagerung radioaktiver Abfälle, deren Sicherheit über einen Zeitraum von vielen tausend Jahren gewährleistet sein muß. Dies kann nur der Staat. Zunächst haben wir uns deshalb um einen geeigneten Standort für das Endlager zu kümmern. Ich hoffe, daß die laufenden Standortuntersuchungen mit einer Vorauswahl

einiger geeigneter Standorte in absehbarer Zeit abgeschlossen werden können.

Ich rechne es auch zu meinen Aufgaben, auf die Schließung des Brennstoffkreislaufs in seinen übrigen Teilen hinzuwirken, Initiativen anzuregen und das Forschungspotential der Großforschungszentren mit in den Dienst dieser Bemühungen zu stellen. Der Industrie werden Aufgaben zufallen wie die Wiederaufarbeitung oder die Verarbeitung des Plutoniums zu neuen Brennelementen.

In diesem Zusammenhang begrüße ich die Gründung der Projektgesellschaft zur Wiederaufarbeitung von Kernbrennstoffen durch die an der Kernenergienutzung interessierten Elektrizitätsversorgungsunternehmen der Bundesrepublik. Ich hoffe, daß die z.Z. noch sehr mühsamen Verhandlungen mit der KEWA über die Finanzierung der Wiederaufarbeitungsanlage möglichst schnell zu einem Abschluß kommen, damit die Arbeit so beginnen kann, wie der Zeitdruck, den wir sehen müssen, es gebietet.

Die nuklear erzeugte Kilowattstunde muß mit den Kosten der Entsorgung belastet werden, um volkswirtschaftlich verzerrte Energiepreise zu vermeiden. Ich sehe hier keine prohibitive Belastung der Kernenergie.

Der Staat gibt derzeit jährlich hundert Millionen Mark an öffentlichen Fördermitteln auf diesem Gebiet aus, bisher insgesamt mehr als eine halbe Milliarde Mark. Die vom Bund bereitgestellten Mittel dienen zur Finanzierung des notwendigen F+E-Programms sowie für Bau und Betrieb von Versuchsanlagen. Das Schwergewicht dieser Arbeiten liegt hier in Karlsruhe, sowohl im Kernforschungszentrum im Projekt Wiederaufarbeitung und Abfallbehandlung als auch bei der WAK. Das Ausmaß des Engagements der Bundesregierung auf diesem Gebiet der Entsorgung wird deutlich, wenn man den Aufbau des Projektes Wiederaufarbeitung und Abfallbehandlung seit 1974 betrachtet - nicht nur der großen Zahlen wegen.

Hier gibt es ein klares Angebot der Gesellschaft für Kernforschung, vorrangig unterstützt durch mein Ministerium, die für die Verwirklichung der industriellen Anlagen notwendige Entwicklungsarbeit in den nächsten Jahren zu leisten.

Zum Schluß noch eine Bemerkung zur internationalen Zusammenarbeit:

Es steht wohl außer Zweifel, daß wir unser Ziel, die Entsorgungsanlagen bis zur zweiten Hälfte der achtziger Jahre zu errichten, nur dann verwirklichen können, wenn wir die Möglichkeiten der internationalen Zusammenarbeit ausschöpfen. Dafür gibt es gute Ansätze, insbesondere im Verhältnis zu Großbritannien, Frankreich und den USA.

Ich bitte Sie, in Anbetracht der gewaltigen vor uns liegenden Aufgaben, der geringen Zeit und der geringen Ressourcen, diese Möglichkeiten intensiv zu nutzen, auch wenn dabei gelegentlich einmal eine liebgewordene Eigenentwicklung zu opfern sein sollte.

Ich bin sicher, daß der heutige Statusbericht eine ergiebige Diskussion fördern wird, die die künftigen Arbeiten an diesem Projekt unterstützt und wertvolle Anregungen liefert.

ZIELE UND STAND DES PROJEKTES WIEDERAUFARBEITUNG
UND ABFALLBEHANDLUNG (PWA)

R. Kroebel (Projektleiter)

1. EINLEITUNG

Unser Projekt Wiederaufarbeitung und Abfallbehandlung (PWA) besteht in dieser Organisationsform seit dem 1.1.1974 als internes Projekt der Gesellschaft für Kernforschung, Karlsruhe. Jedoch schon seit 1960 werden im Rahmen von Institutsarbeiten, die auch zeitweilig als Schwerpunktprogramme koordiniert wurden, in der GfK einschlägige Forschungs- und Entwicklungsvorhaben zur Wiederaufarbeitung und Abfallbehandlung von Leichtwasserreaktorbrennstoffen sowie Schnellbrüterbrennstoffen ausgeführt. Durch das Vorhandensein von Fachleuten und einigen Testeinrichtungen, wie auch der Wiederaufarbeitungsanlage Karlsruhe am Ort, die von der industriell organisierten Gesellschaft zur Wiederaufarbeitung von Kernbrennstoffen (GWK) im Auftrag und für Rechnung des Staates betrieben wird, erschien es naheliegend, daß sich die GfK des Forschungs- und Entwicklungsprojektes (F+E) annahm.

Ende der sechziger Jahre schien die kommerzielle Wiederaufarbeitung, bestärkt durch Entscheidungen in den USA, greifbar nahe zu sein. Bis zur Entscheidung der deutschen Industrie im Jahre 1973, ein eigenes Projekt für Planung und Bau zu beginnen, war deutlich geworden, daß noch erhebliche Anstrengungen auf dem F+E-Sektor nötig sein würden, um das Ziel einer funktionierenden großen Wiederaufarbeitungsanlage für die Mitte der 80er Jahre zu erreichen.

Dieses Ziel wurde von der Bundesregierung im Rahmen ihres Entsorgungskonzeptes gesteckt /1/, wobei die Forschungs- und Entwicklungsleistungen als staatliche Förderung eines industriellen Errichters und Betreibers in Aussicht gestellt wurde. Die Begründung für diese noch fehlenden Leistungen ist nicht prinzipieller Natur, denn am Verfahren der bisherigen Wiederaufarbeitung wird wenig geändert. Einschneidend sind vor allem der große Sprung von einer 50-100 Jahrestonnentechnologie auf eine solche von 1500 Jahrestonnen, d.h. der 'scale-up', verschärfte Auflagen zur weiteren Reduzierung der Umgebungsbelastung und der mehrfach höhere Abbrand der BE. Allein dadurch steigen für die Großanlage die Anforderungen für die Rückhaltung von Schadstoffen um den Faktor 100. Viele an sich bewährte Rückhalte-Systeme müssen daher neu überarbeitet werden, manche kommen erstmalig zum Einsatz. Als Beispiele werden in den folgenden Fachbeiträgen vor allem die Abgas- und die Abfallbehandlung einzeln vorgestellt.

Im Rahmen dieses Statusberichts ihres Projektes Wiederaufarbeitung und Abfallbehandlung wird die GfK erstmals öffentlich darlegen, welchen Teil sie zum Gesamtvorhaben 'Große Wiederaufarbeitungsanlage' beiträgt. Zuvor soll jedoch die immer wiederkehrende Frage beantwortet werden, warum Wiederaufarbeitung die richtige Option ist.

2. WARUM WIEDERAUFARBEITUNG ?

Die chemische Wiederaufarbeitung abgebrannter Brennelemente wird als Teil des nuklearen Brennstoffkreislaufs ausgeführt, um

1. unverbrannte Spaltstoffe wie Uran-235 und das während des Abbrandvorganges gebildete Plutonium für den Kreislauf zurückzugewinnen (Wiederaufarbeitung im engeren Sinne) und
2. die entstandenen z.T. stark radioaktiven Spaltprodukte abzutrennen; diese müssen anschließend in geeigneter Weise zu endlagerungsfähigen Produkten umgesetzt werden (Abfallbehandlung und Endlagerung).

Die Rückführung der Spaltstoffe Uran und Plutonium in den Brennstoffkreislauf, auch der Leichtwasserreaktoren, bewirkt eine geringere Abhängigkeit der BRD von Einfuhren spaltbaren Materials sowie von Trennarbeit, die bisher nur von den USA und der UdSSR in nennenswerten Mengen erhältlich ist.

Eine Entsorgung der Reaktoren von den abgebrannten Brennelementen muß eine sinnvolle Abfallbehandlung ohne Vergeudung von Spaltmaterial ebenso beinhalten wie die Möglichkeit, die behandelten Abfälle sicher endzulagern.

Ihren unabdingbaren Wert erhält die Wiederaufarbeitung von Leichtwasserreaktorbrennstoff im Sinne einer vollständigen Versorgungsunabhängigkeit von außen durch die schnellen Brutreaktoren, für deren Einführung sie durch die Plutoniumgewinnung die Voraussetzung erst schafft.

Die eben gemachten Angaben reichten lange Zeit als Antwort auf die gestellte Frage, doch gibt es heute mehr Zweifler als noch vor wenigen Jahren, die bohrende Fragen stellen. Das Problem hat je nach den Randbedingungen, die der Fragende im Auge hat, verschiedene Facetten. Ohne vollständig sein zu können, sollten wir doch einige betrachten. Voraussetzung für die folgenden Ausführungen ist allerdings, daß Kernspaltungsenergie noch für eine Zeit von wenigstens 100 oder mehr Jahren gewonnen wird, vielleicht auch gewonnen werden muß, selbst unter Berücksichtigung des Fortbestehens bisheriger wie zukünftiger Primärenergieträger.

Randbedingung 1 - Ressourcenoptimierung

Aus dem oben Gesagten geht hervor, daß die Rückführung unverbrauchter Spaltstoffe erst durch die Wiederaufarbeitung möglich ist. Abgebrannter LWR-Brennstoff enthält noch etwa die Hälfte des Spaltstoffinventars des frischen Brennstoffs, wiederum je zur Hälfte als Uran-235 und als neugebildetes Plutonium.

Der sinnvollste Einsatz des Plutoniums erfolgt wie schon erwähnt im schnellen Brüter (SBR), für den das Plutonium gewissermaßen das Ei darstellt, aus dem das Huhn erst werden kann. Dies hat kernphysikalische Gründe, auf die hier nicht weiter eingegangen wird.

Die Ausnutzung der Uranreserven kann durch eine Kernenergiestrategie im Verbund LWR + SBR evtl. HTR um den Faktor 70 erhöht und damit erst wirklich für eine langfristige Energiesicherung eingesetzt werden. Außerdem macht sie uns dann fast unabhängig von Uraneinfuhren.

Wir können daher feststellen, daß das Plutonium und das nicht spaltbare Uran-238 für den schnellen Brutreaktor zurückgewonnen werden müssen, während das restliche Uran-235 durch Wiederanreicherung in den Brennstoffkreislauf des LWR zurückführbar ist. Plutonium kann evtl. auch in LWRs rückgeführt werden (Thermal Recycling), jedoch ist dies eine rein wirtschaftlich zu entscheidende Frage in einer Übergangszeit zum schnellen Brüter.

Randbedingung 2 - Umweltschutz

Bei der nuklearen Spaltung entsteht nicht nur die gewünschte Energie, sondern auch eine gewisse Menge von Spaltprodukten und Transuranen. Die Menge dieser unerwünschten Produkte beträgt je nach Abbrand bei LWR-Brennelementen ca. 3 - 4 % des Schwermetallgehalts, d.h. 30 - 40 kg pro Tonne Uran.

Die Spaltprodukte sind teils inaktiv, teils sind sie radioaktiv, letztere sind instabile Isotope chemisch an sich bekannter Elemente, die sich unterschiedlich schnell in stabile Elemente umwandeln und bei dieser Umwandlung radioaktive Strahlung aussenden.

Die sogenannten Transurane wandeln sich, allerdings deutlich langsamer, unter Aussendung von α -Strahlung ebenfalls in stabile chemische Elemente um. Gefährlich sind diese Stoffe für biologische Systeme nur, während sie noch radioaktiv sind, und zwar entweder durch Aufnahme in den Biozyklus (= Inkorporation) oder durch die Wirkung durchdringender Gammastrahlen (= Exposition).

Während der Abklingzeit müssen sie daher sicher verwahrt werden, wobei 700 Jahre nach der Wiederaufarbeitung (1 Jahr Abklingzeit) ausreichen, um die 'Giftigkeit' für Lebewesen um mehr als drei Zehnerpotenzen zu erniedrigen. Schon nach 1000 Jahren (Faktor 5000) ent-

spricht die 'Giftigkeit' derjenigen des natürlichen Erzes, das zur Herstellung des Brennstoffs erforderlich war /2/. Der weitere Zerfall dauert sehr viel länger, einige hunderttausend Jahre, aber auf diesem sehr viel niedrigeren Gefährdungsniveau. Die Tatsache, daß das Langzeitproblem um ca. vier Größenordnungen niedriger liegt als z.Zt. der Wiederaufarbeitung, wird leider zu oft in der Diskussion vergessen.

Gängige Maßnahmen der Abfallbehandlung bestehen in der Einbindung dieser Schadstoffe in Bitumen, Zement, Glas oder einer zuverlässigen Verpackung und der Einlagerung dieser Produkte in Salzformationen tief unter der Erdoberfläche (Endlager) oder in Betonbunkern (Zwischenlager). Der Schuß in den Weltraum oder die nukleare Verbrennung der Schadstoffe sind zumindest z.Zt. unrealistisch und, wie wir meinen, nicht erforderlich.

Randbedingung 3 - Wirtschaftlichkeit

In einem Artikel von A. Schlitt in der Atomwirtschaft vom Juli/Aug. 75 /3/ wird auch auf die Kostenfrage eingegangen. Die dort genannten Werte könnten den Eindruck vermitteln, die Aufarbeitungskosten seien von 72 DM/kg Schwermetall (= 18 ¢ 1971) auf 500 DM/kg (= 200 ¢ 1975) in der zukünftigen deutschen Großanlage gestiegen. So darf man diese Kosten aber nicht interpretieren, weil 72 DM noch nie ein echter Produktionskostenpreis war, sondern ein reiner Grenzkostenwert zur Auslastung bestehender Anlagen. Weiterhin kennen wir in Relation zu den 500 DM den echten Marktpreis nach 1985 für die zurückgewonnenen Spaltstoffe noch nicht, können aber schon heute feststellen, daß dieser Preis keineswegs prohibitiv für die Rückführung sein muß. Zudem stellen abgebrannte nichtaufgearbeitete Brennelemente einen negativen Wert

dar, da sie gelagert und versorgt werden müssen. Erst beide Kosten zusammengenommen entscheiden über die Wirtschaftlichkeit, wobei der Entsorgungszwang für die radioaktiven Abfälle noch unberücksichtigt bleibt.

Zusammenfassend können wir feststellen, daß die Erfüllung der Randbedingung Ressourcenoptimierung zwingend eine Aufarbeitung fordert, wobei der Zeitpunkt durch den Zwang zur Rückführung der Spaltstoffe gegeben ist. Für Uran-235 ist die Frage nur wirtschaftlich determiniert, für Plutonium durch die Einführungspläne des schnellen Brütters, der rund zehn Jahre vor seiner kommerziellen Einführung eine funktionierende große Wiederaufarbeitungsanlage zur reibungslosen Plutoniumversorgung verlangt.

Die Randbedingung Umweltschutz verlangt zwingend eine Behandlung und Endlagerung der während des Reaktorbetriebes gebildeten Schadstoffe zum Schutze der Umwelt, beziehungsweise die weitere Nutzung des Umweltgiftes Plutonium durch Rückführung in den Reaktor. Diese Rückführung könnte neben der Versorgung des schnellen Brutreaktors auch wie bereits erwähnt in die Leichtwasserreaktoren erfolgen.

Die Randbedingung Wirtschaftlichkeit kann unter diesen Umständen lediglich den wirtschaftlich optimalen Zeitpunkt bestimmen unter Berücksichtigung aller Forderungen aus den ersten 2 Randbedingungen.

In erster Linie wird sie also das 'Wann Wiederaufarbeitung' von LWR-Brennstoffen bestimmen und dabei heute kaum genau erfaßbare Kostenelemente vernetzen müssen, wie den Bau von Zwischenlagern, deren Nutzungsgrad und die Lagerkosten, Preis von Einsatzstoffen und Investitionen für die Wiederaufarbeitung, Abfallbehandlung und Endlagerung, Kredit für die gewonnenen Wertstoffe usw.

Selbst ohne genaue Kenntnis dieser Rechnung muß ein so energieabhängiges Land wie die Bundesrepublik jetzt handeln, weil weltweit Ansätze egoistischer Energiepolitik, insbesondere auf dem Gebiet der Kernenergie, zu spüren sind, die sich darin ausdrücken, daß die Wiederaufarbeitung wegen des Verbleibs der radioaktiven Abfälle nur noch auf nationaler Ebene abzuwickeln ist. Auch die Versorgung mit Uran kann durch nationalistische Politik zu Marktverzerrungen führen, so daß für große Energiekonsumenten die eigenständige Schließung des Brennstoffkreislaufs sichergestellt werden muß, auch wenn dies unwirtschaftlich scheinen könnte.

Diese Entwicklung ist bedauerlich. Sie wird nicht zuletzt durch den massiven Widerstand gegen die Kernenergie gestützt, der dazu führt, daß Anlagen des Brennstoffkreislaufes nicht dort gebaut werden können, wo sie für die gesamte Menschheit das geringste Risiko zu vernünftigem Preis darstellen.

Für mich ergeben sich aus den angestellten Betrachtungen und der Tatsache, daß die Verwirklichung kerntechnischer Großanlagen ca. 10 Jahre Vorlauf bedingen, zwei wesentliche Schlußfolgerungen für das Projekt Wiederaufarbeitung und Abfallbehandlung:

1. Die Wiederaufarbeitung von LWR-Brennstoffen muß ausgeführt werden und
2. jede Verzögerung unserer Forschungs- und Entwicklungsarbeiten muß vermieden werden, um überhaupt noch zuzulassen, daß nach Randbedingung 3 optimiert werden kann. Selbst ohne genaue Kenntnis der Wirtschaftlichkeitsrechnung ist sicher, daß allein Bau- und Belegungskosten von Brennelementzwischenlagern für die 'einmalige' Benutzung pro verlorenes Jahr ein Mehrfaches unserer geplanten jährlichen F+E-Kosten ausmachen wird.

Es muß daher vermieden werden, daß fehlende F+E-Ergebnisse zum kritischen Pfad im Netzplan der Errichtung der Anlage werden.

3. ORGANISATION DER AN DER WIEDERAUFARBEITUNG BETEILIGTEN INSTITUTIONEN UND AUFGABENTEILUNG

In Abbildung 1 ist die Aufgabenverteilung nach dem derzeitigen Stand der Kenntnisse oder Festlegungen für das Gesamtprojekt 'Entsorgung des nuklearen Brennstoffkreislaufes der LWR-Linie' dargestellt.

Der Bund übernimmt oder regelt:

1. Im Endlager für radioaktive Abfälle:

Sicherheit und Risikoabdeckung, evtl. Betrieb durch staatliche Betreibergesellschaft unter Bundesaufsicht.

2. Im Forschungs- und Entwicklungsbereich:

z.Zt. durch GfK und GSF selbstverantwortlich im Rahmen der Programme dieser Gesellschaften

- Forschungs- und Entwicklungsarbeiten zur Wiederaufarbeitung, Abfallbehandlung und Endlagerung der Schadstoffe des Brennstoffkreislaufs,
- Überprüfung und Anpassung von ausländischem Know-how für die Anlage,
- Aus- und Heranbildung von Fachleuten für die Kernverfahrenstechnik.

3. Im Prototypbetriebsbereich = aktive Versuchsbetriebsanlagen:

z.Zt. durch GWK, GfK und GSF selbstverantwortlich im Rahmen der Programme dieser Gesellschaften

- Sammeln und Auswerten von Betriebserfahrungen sowie Erprobung der im F+E-Bereich erarbeiteten Ergebnisse auf betriebliche Tauglichkeit,
- Ausbildung von Fachleuten für die Kernverfahrenstechnik.

Zusammenwirken der verschiedenen Institutionen für große Wiederaufarbeitungsanlagen in Europa und USA

Funktion \ Land	Land			
	D	F	GB	USA
Betreiber	* KEWA (GWK)	CEA	BNFL	Allied-Gulf General Electric Getty Oil
Ingenieurfirma	UHDE LURGI NUKEM	SGN	BNFL	Bechtel
F + E	GfK (GWK) GSF	CEA	BNFL UKAEA	ERDA
Zusammen- Arbeit	geregelt in URG-Vertrag und Unterverträgen			bilateral

* Auftraggeber: PWK
Projektträgergesellschaft für die Wiederaufarbeitung von Kernbrennstoffen

Abb. 1

Die Industrie und Energiewirtschaft übernehmen oder regeln:

1. Im industriellen Anlagenbau:

z.Zt. durch KEWA eigenverantwortlich

- Erstellung eines Anlagenkonzeptes für die Wiederaufarbeitung einschließlich gewisser Teile der Abfallbehandlung, wie im folgenden Referat ausgeführt werden wird.
- Durchführung eines Vorprojektes
- Standortsuche
- Beschaffung von ausländischen Anlagenbau- und Betriebs-Know-how im Rahmen des URG-Vertrages.

2. Im Vermarktungsbereich der Wiederaufarbeitung:

z.Zt. durch KEWA bzw. URG eigenverantwortlich

- Vernetzung der wirtschaftlichen Seite der Wiederaufarbeitung durch Verträge auch internationaler Art, d.h. dem Anbieten von Wiederaufarbeitung im Rahmen der URG.

3. Im finanziellen Bereich:

z.Zt. durch die Projektträgergesellschaft zur Wiederaufarbeitung von Kernbrennstoffen (PWK), einer Gründung der Energieversorgungsunternehmen (EVU).

- Bereitstellung der erforderlichen Mittel für das Vorprojekt.

4. Im Ingenieurbereich:

z.Zt. in Abklärung. Hier werden vor allem die Ingenieurfirmen Uhde/Lurgi und Nukem tätig werden, jedoch wahrscheinlich als Auftragnehmer mit eingegrenzter Verantwortung.

Daneben sehen wir auf Abb. 1 im Vergleich dazu die Strukturen unserer Nachbarländer und der USA. Man erkennt leicht die Homogenität der Verantwortung in England und Frankreich gegenüber der Vielzahl der Verantwortlichen in der Bundesrepublik und den USA.

Es soll hier nicht der Versuch gemacht werden, die Schwierigkeiten beim Bau aller drei amerikanischen Anlagen nur auf diese unvollständige Zusammenfassung der an sich national vorhandenen Kräfte und Kapazitäten zurückzuführen. Eindeutig ist aber, daß sich die Fehler teils auf unterlassene F+E-Vorarbeiten, teils auf den Einsatz unerprobter Technologie sowie auf fehlende umfassende Vorplanung und Koordination zurückführen lassen, sowie auf Genehmigungsaufgaben, die erst nach Planungsschluß neu auftraten.

An dieser Stelle soll darauf hingewiesen werden, daß es bei uns noch kein Gremium gibt, welches alle Beteiligten nicht nur gelegentlich zusammenführt, sondern auch die gemeinsam einzuschlagenden Wege berät und auftretende Lücken verbindlich schließt. Hierbei ist auch in irgendeiner Form an die Beteiligung von Prüfinstanzen staatlicher oder halbstaatlicher Art zu denken.

Wir glauben, daß nur durch eine gemeinsame Anstrengung der staatlichen Einrichtungen und der privatwirtschaftlich organisierten Bau- und Betriebsgesellschaft sowie der Ingenieurfirmen unter Inkaufnahme von sehr späten und differenzierten Daten für das Einfrieren der Planungsgrundlagen das Ziel der WA für 1985 noch erreichbar ist. Da die derzeitige Planung der KEWA die aktive Inbetriebnahme der Großanlage für 1983/84 vorsieht, sowie den Volllastbetrieb ab 1985, ergibt sich für GfK folgender Inhalt und Ablauf der Arbeiten:

GfK unterstützt KEWA während der Planungs- und Konstruktionsphase (= 1. Phase) und der späteren Bau- und Inbetriebnahmephase (= 2. Phase) für die Großanlage zur Wiederaufarbeitung von Leichtwasserbrennelementen durch Überlassung von bereits vorhandenem Know-how sowie durch zukünftige F+E-Arbeiten im Rahmen des Projektes Wiederaufarbeitung und Abfallbehandlung (PWA) sowie des Projektes nukleare Sicherheit (PNS).

Die Arbeiten der GfK sind besonders darauf ausgerichtet, Verfahren zur wirtschaftlichen, umweltfreundlichen, den gestellten Sicherheitserfordernissen gemäßen Wiederaufarbeitung oxidischer LWR-Brennstoffe zu entwickeln und die Anwendbarkeit von Know-how aus dem URG-Bereich zu prüfen, gegebenenfalls für deutsche Randbedingungen anzupassen.

4. AUFBAU DES PROJEKTES WIEDERAUFARBEITUNG UND ABFALL- BEHANDLUNG

Das Projekt war 1974 im 1. Jahr seines Bestehens mit dem Ziel tätig geworden, neben unmittelbar sichtbaren Problemen, die der sofortigen Bearbeitung zugänglich waren (nach Maßgabe vorhandener Mittel, wie Fachpersonal, Geld, Testeinrichtungen, laufende Entwicklungen aus dem Entwicklungsprogramm Brennstoffaufarbeitung EBA), vor allem durch Aufstellung eines Fließschemas für die Großanlage verborgene Probleme der großtechnischen WA zu entdecken und möglichst gleichzeitig dem Umfang nach näher zu bestimmen. Dieses Fließschema wurde von PWA der KEWA zur weiteren Bearbeitung für die Konzeptstudie im Herbst 1974 übergeben und stellte damals den gesammelten Erfahrungsstand von GfK, GWK, KEWA, Uhde/Lurgi und St. Gobain Nucleaire dar.

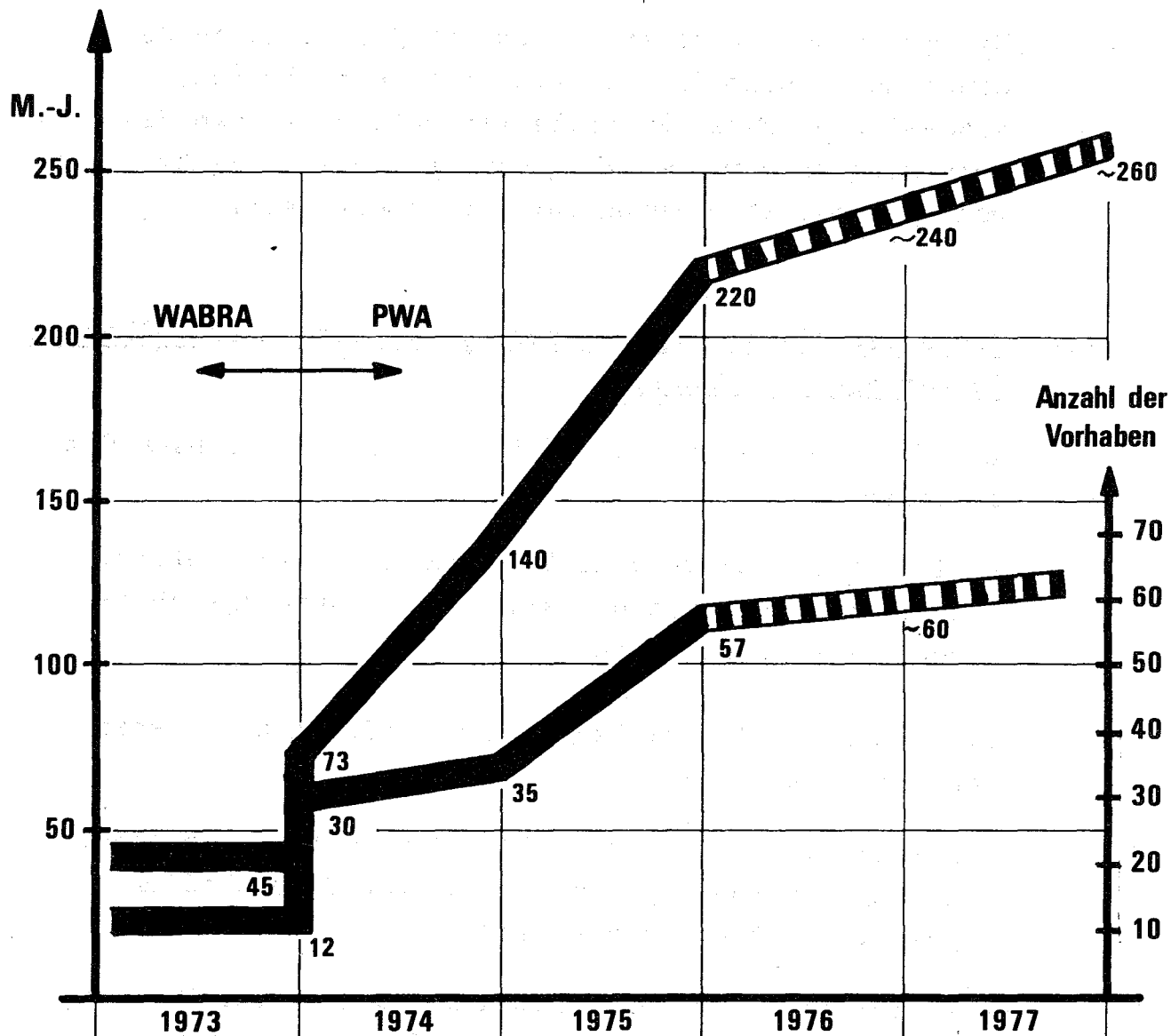
Der Einfluß dieser Studie auf die Zahl der Vorhaben, den Personalaufwand und die Mittel ist in Abb. 2 dargestellt. Man ersieht hieraus, daß durch die Zielvorgabe 'Großanlage' die Zahl der Vorhaben von 12 auf 30 unmittelbar anstieg und durch die Vertiefung mit Hilfe des Fließschemas nochmals eine Verdoppelung eintrat.

4.1. Personalsituation (Stand Okt. 1975)

Zur Bearbeitung dieser knapp 60 Einzelvorhaben im Bereich des Projekts Wiederaufarbeitung und Abfallbehandlung (PWA) stehen ca. 200 Mannjahre der GfK (davon 7 GWK-E) sowie 20 delegierte Industrieingenieure der Firmen Nukem und Uhde/Lurgi zur Verfügung.

Damit sind z.Zt. rund 220 Mitarbeiter im KFZK für F+E-Arbeiten des PWA tätig und weitere 20 stellt das Projekt Nukl. Sicherheit (PNS).

Entwicklung des PWA



Gesamtaufwand des PWA in Mio.-DM

9,0	19,2	33,1	44,1	48,0
-----	------	------	------	------

Abb. 2

Die Aufgaben machen eine weitere personelle Verstärkung erforderlich. Deshalb wird für 1976 eine Aufstockung um 20 auf 240 MJ vorgesehen.

Die geplanten Ausgaben für das Projekt sind zu den einzelnen Jahren in der unteren Leiste der Abb. 2 ausgewiesen. Eine pauschale Projektion bis zum Betriebsbeginn der Großanlage im Jahre 1985 ergibt rund 500 Mio DM Aufwand für das F+E-Projekt.

4.2. Ziele des PWA für die Planungsphase der zu erstellenden Großanlage (1. Phase)

Als Ziel des PWA in der 1. Phase ergibt sich nach dem Zeitplan der KEWA:

- bis 1977/78 notwendige F+E-Ergebnisse zu liefern, damit die technische Planung der Großanlage abgeschlossen werden kann.

Die Schwerpunkte der F+E-Arbeiten müssen sich dabei konzentrieren auf:

- Erfüllung sicherheits- und genehmigungstechnischer Auflagen durch Anpassung bekannter Technologien, ggf. Entwicklung neuer Verfahren.
- Verfahrens- und Komponentenentwicklung zur Erhöhung der Verfügbarkeit und Wirtschaftlichkeit von Wiederaufarbeitungsanlagen sowie die Prüfung bzw. Weiterentwicklung ausländischer Verfahren und Komponenten unter Berücksichtigung der Sicherheit von Anlage und Umwelt.
- Abfallbehandlung und Endlagerung sowie prozeßseitig Maßnahmen zur Verminderung des Anfalls von radioaktivem Abfall unter Beachtung sicherheitstechnischer Er-

fordernisse, damit die Großanlage um die zur Optimierung der Abfallbehandlung erforderlichen Zusatzanlagen erweitert werden kann.

In der 2. Phase, dem baubegleitenden Programm, wollen wir Lösungen für die Probleme erarbeiten, die sich während der technischen Ausführung durch weitere Auflagen der Behörden sowie durch die fortlaufenden Betriebserfahrungen der WAK und der URG-Partner ergeben. Damit soll sichergestellt werden, daß einerseits alles verfügbare Know-how einfließen kann, andererseits nur getestete Komponenten zum Einsatz kommen.

In der 3. Phase, d.h. langfristig über den Bau der ersten Anlage hinaus, wollen wir für Folgeanlagen tätig werden. Eine solche Anlage könnte Anfang der 90er Jahre nötig werden, so daß die Planung hierfür ab ca. 1981/82 beginnen müßte, d.h. bevor von der 1. Anlage Betriebserfahrungen vorliegen. Die Arbeiten hierzu stellen den langfristigen Teil des Programms des PWA dar und werden unter anderem die wünschenswerten Verfahrensalternativen, die aus zeitlichen Gründen für die erste Anlage zu spät kommen, wie neue Head-end- sowie bessere Wastebehandlungs- und Endlagermethoden, beinhalten. Zusätzlich muß dann die aus Personal- und Mittelknappheit zurückgestellte Wiederaufarbeitung von Schnellbrüterbrennstoffen befriedigend gelöst werden. Hierzu sollten die Arbeiten ab 1979 bereits, möglichst auch im internationalen Rahmen, anlaufen. Das CEA aber auch England haben hier einen Vorsprung vor uns, den wir möglichst durch Know-how-Tausch und Programmteilung aufholen sollten.

4.3. Zusammenarbeit mit auswärtigen Forschungseinrichtungen

Um die genannten Ziele zu erreichen, setzt die GfK zwar vornehmlich eigenes Personal ein bzw. die erwähnten delegierten Ingenieure, nutzt aber auch ihre nationalen und internationalen Verbindungen für die Zusammenarbeit auf dem F+E-Sektor aus. Z.B. hat die GfK einen Vertrag mit dem CEA abgeschlossen, der es gestattet, vorhandene französische Testanlagen für deutsche Untersuchungen zu nutzen. Diese Zusammenarbeit wie auch der bezahlte Einsatz von CEA-Arbeitsgruppen für Fragestellungen des deutschen Programms trägt erste Früchte. Insbesondere die z.Zt. laufenden aktiven Versuche zum Abgasproblem in Marcoule sowie heiße Versuche zur Extraktion und experimentelle Untersuchungen zur Kritikalitätssicherheit bei Fehlbedienungen in Fontenay-aux-Roses sollen hier herausgestellt werden. Insgesamt werden zehn verschiedene Vorhaben zusammen mit dem CEA bearbeitet.

Darüberhinaus bemüht sich die GfK in den Programmen für die Behandlung radioaktiver Abfälle mit der US-ERDA sowie mit Eurochemic zu gegenseitigem Know-how-Austausch zu kommen. Diese Arbeiten laufen gerade an. Außerdem wird sich das Projekt durch die Mitwirkung am Programm der Europ. Gemeinschaften im Endlagerbereich verstärken.

Soweit es die uns bekannten Unterlagen erkennen lassen, gibt es nur wenig Doppelarbeit bei den URG-Partnern.

Wünschenswerte Parallelarbeiten gibt es auf dem Gebiet der Edelgasabtrennung und des hochaktiven Abfalls, wobei es sich um Verfahrensalternativen handelt.

Soweit andere deutsche Zentren auf diesem Gebiet Arbeiten durchführen (KFA, HMI, GSF), erfolgt deren Abstimmung im Rahmen der Arbeitsgemeinschaft der Großforschungseinrichtungen (AGF).

Schematische Darstellung der Wiederaufarbeitung mit Angabe wichtiger Ziele

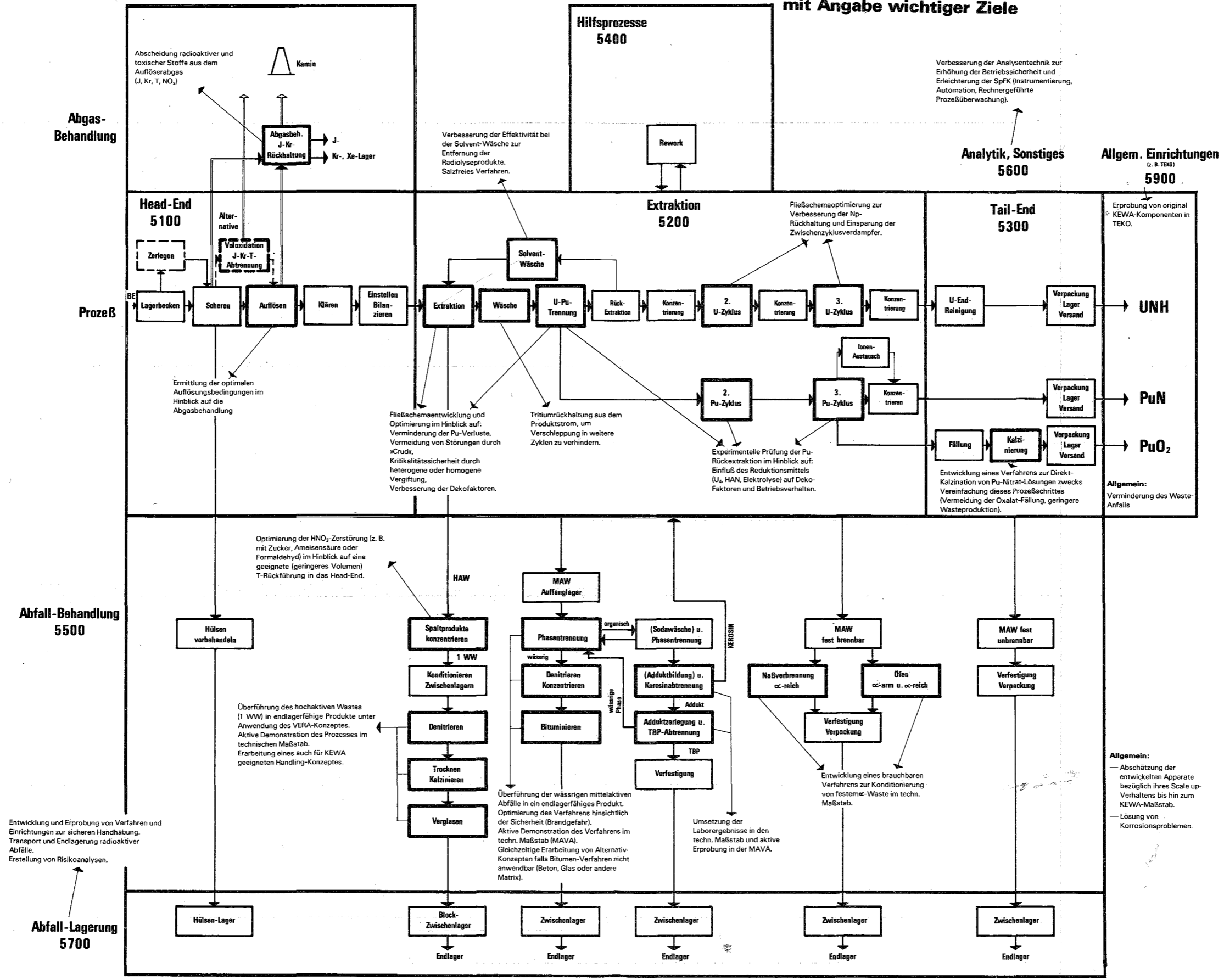


Abb. 3

Eine weitere Unterstützung unserer Arbeiten durch Universitäten, besonders im Grundlagenbereich, wäre möglich.

4.4. Arbeitsgebiete des F+E-Projektes

In Abb. 3 ist das Blockfließbild einer Wiederaufarbeitungsanlage dargestellt. Alle Blöcke, zu denen F+E-Arbeiten erfolgen, sind gekennzeichnet. Wichtige Ziele der Arbeiten wurden einzelnen Blöcken zugeordnet.

Unser Projekt ist entsprechend dem Arbeitsablauf in einer Wiederaufarbeitungsanlage in Teilprojekte gegliedert. Die schwerpunktmäßig wichtigsten, nämlich das Head-end, die Extraktion, die Abfallbehandlung und Endlagerung sowie die Prozeßkontrolle und Analytik möchte ich hier kurz als Themen vorstellen. Die Arbeiten und ihre Ergebnisse werden:

- zur Wiederaufarbeitung im Vortrag 'Chemisch-verfahrenstechnische Entwicklungen zum Wiederaufarbeitungsprozeß' von Prof. Baumgärtner
- zur Abfallbehandlung im Vortrag 'Arbeiten zur Behandlung radioaktiver Abfälle aus Wiederaufarbeitungsanlagen' von Herrn Dr. Krause behandelt.

Einige Fachreferate über Schwerpunktthemen schließen sich diesen Übersichten an.

Head-end (Abb. 4)

Das Head-end umfaßt die Funktionsbereiche:

- mechanische Brennelementbehandlung (Lagerbecken, Zerlegen der BE, Scheren)
- Auflösen des Brennelementkerns (Uranoxid, Plutonium und Spaltprodukte gehen in Lösung bzw. ins Abgas)

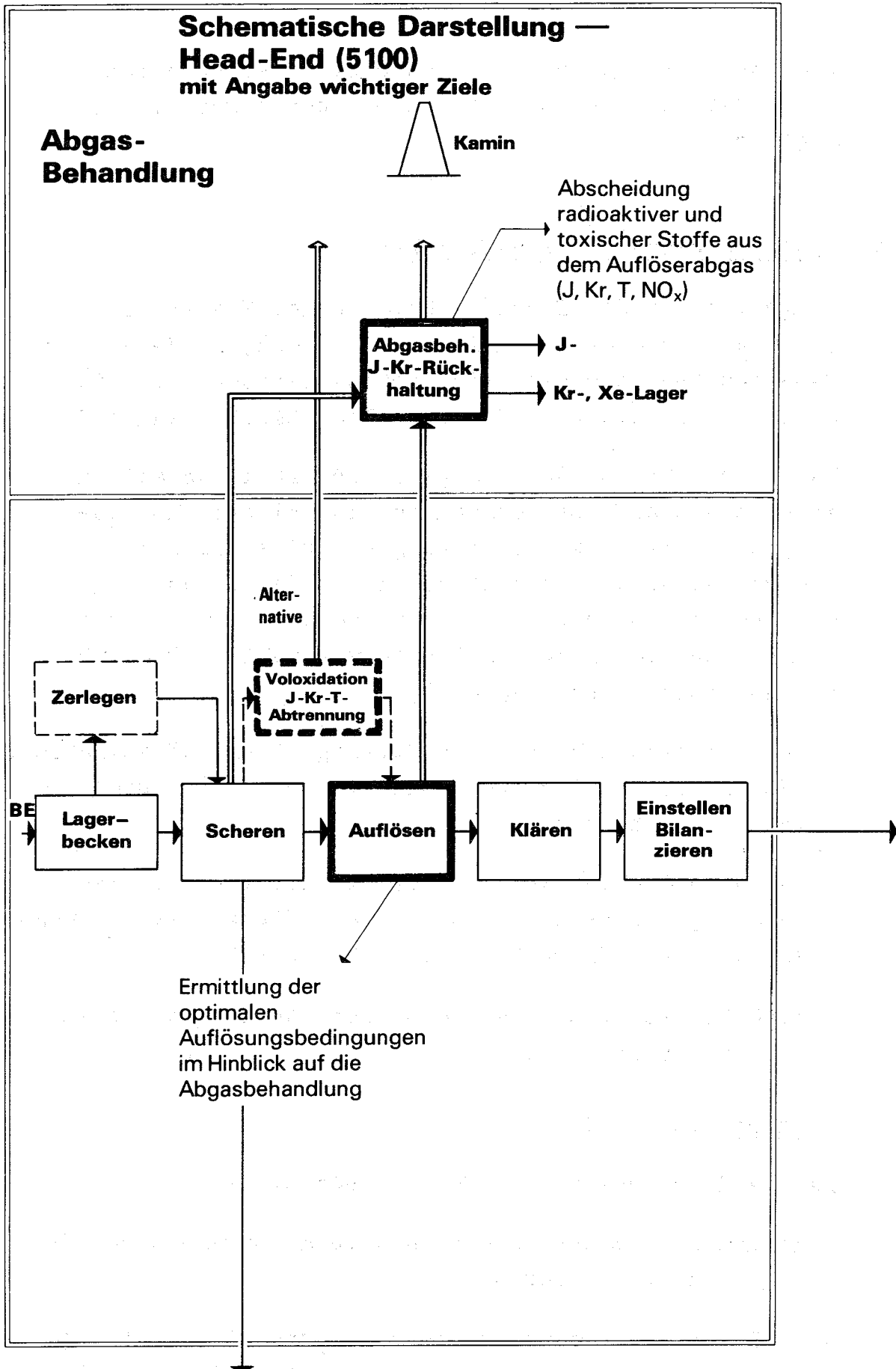


Abb. 4

- Ableitung und Behandlung des Abgases von Schere und Auflöser
- Vorbereitung der Brennstofflösung zur Extraktion (Klären der Lösung, Spaltstoffbilanzierung, Speiselösungseinstellung).

Hierbei ist vor allem die Abgasbehandlung ein umfangreiches F+E-Thema mit den Teilzielen Jodverflüchtigung (IHCH + CEA), Jod- und Aerosolfilterentwicklung (LAF), Kryptonabscheidung (IHCH im Projekt Nukleare Sicherheit) sowie der Entwicklung von Meßinstrumenten für das Abgas und die homogene Neutronenvergiftung der Speiselösung (IHCH + IRCH). Zur Lösung der anstehenden Entwicklungsaufgaben ist der Bau von inaktiven Teststrecken notwendige Voraussetzung, denn geänderte Abgasbedingungen erfordern auch die Neubearbeitung bereits bekannter Verfahren wie des Auflösevorgangs und der Stickoxidrückhaltung.

Aktive Teststände des CEA in Marcoule können von der GfK mitbenutzt werden.

Wir bearbeiten im langfristigen Programm ein neues Vorbehandlungsverfahren, die Voloxidation, sowie die Erfassung der Tritiumausbreitung im Wiederaufarbeitungsprozeß (IRCH).

Als Zwischenergebnisse unserer Arbeiten zum Head-End können wir neben dem Bau von zwei Testanlagen (Auflöser + Abgasteststand in der Heißen Chemie und Kryptondestillationsteststand im LAF (PNS)) auf ermutigende Ergebnisse der ersten aktiven Versuche in Marcoule verweisen.

Es zeigte sich sowohl in inaktiven wie in den ersten aktiven Versuchen, daß das Spaltjod-129 verflüchtigt und aus der Gasphase an von der GfK mitentwickelten Absorbern zurückgehalten werden kann. Außerdem wurden eine Reihe von Analysemethoden entwickelt und erprobt, um die notwendigen Messungen machen zu können. Zu diesem Teilprojekt wird in zwei detaillierten Folgebeiträgen berichtet.

Die tragenden Institute der GfK sind die Heiße Chemie, das Laboratorium für Aerosolphysik und Filtertechnik und das Institut für Radiochemie.

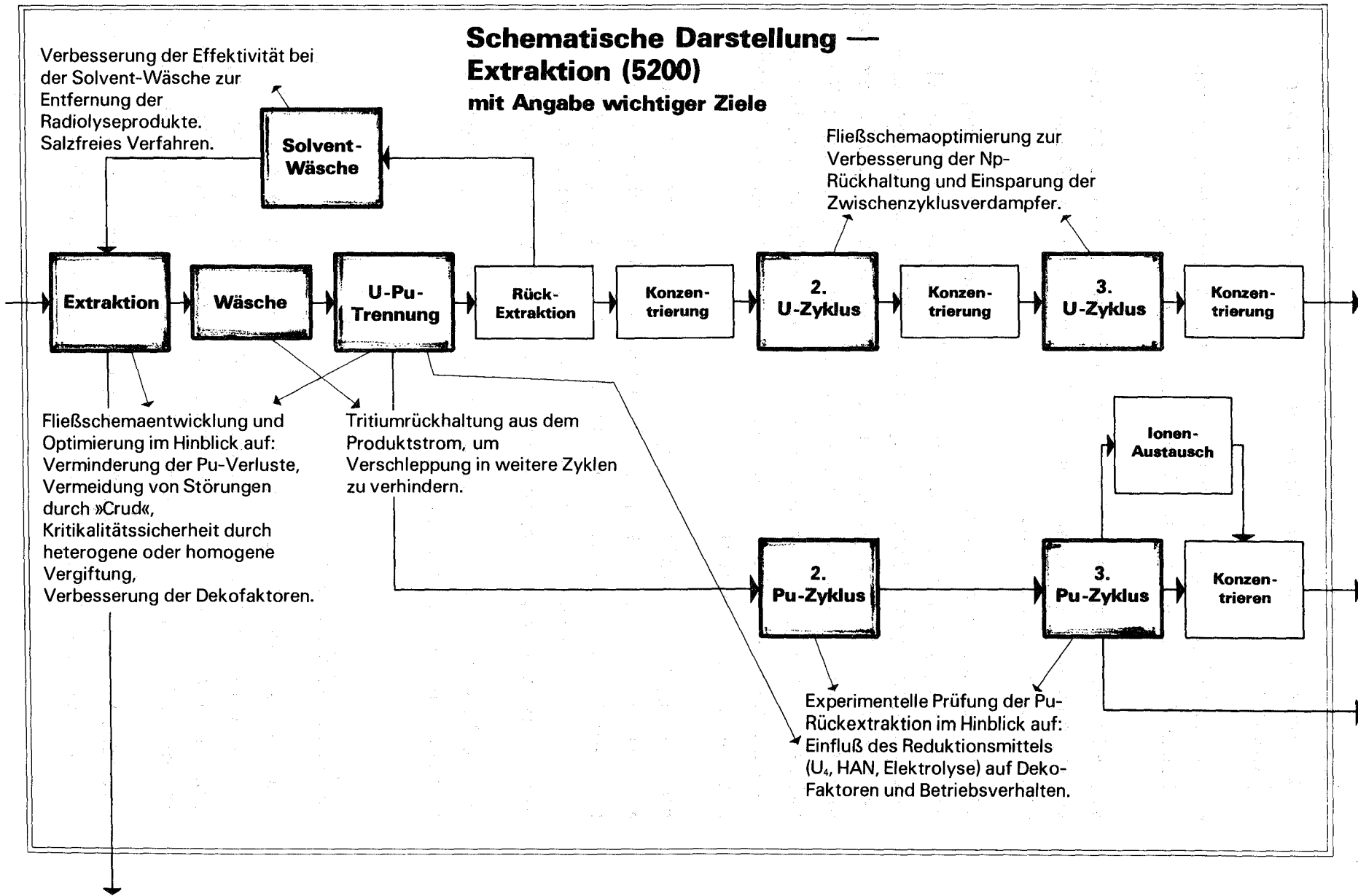
Extraktion (Abb. 5)

Die Extraktion der Wertstoffe Uran und Plutonium mittels Tri-n-butylphosphat (TBP) ist gegenüber den meisten Spaltprodukten sehr selektiv möglich und gestattet die Trennung von Wertstoff und Abfall. Sie umfaßt zwei bis drei Reinigungszyklen jeweils mit der Extraktion der Wertstoffe in die org. Phase (TBP) und Rückextraktion in die wässrige Phase. Der erste Reinigungszyklus wird für beide Wertstoffe gemeinsam (Koextraktionszyklus), die weiteren werden getrennt durchgeführt.

Als Entwicklungsaufgaben geht es um folgende Vorhaben:

- die optimale Fließschemaentwicklung in vorhandenen Laboranlagen (MILLI, LABEX) und halbtechnischen Anlagen (TAMARA, Uran-Teststand),
- die Optimierung von Apparaturen für die Extraktion selbst, z.B. Reduktions- und Oxidationsapparaten für das Plutonium sowie für Hilfsprozesse, wie die sogenannte Solventwäsche, und die experimentelle Erarbeitung der Konzentrierung des Tritiums im 1. Zyklus der Extraktion,

Schematische Darstellung — Extraktion (5200) mit Angabe wichtiger Ziele



- die Berechnung, Entwicklung und Erprobung von heterogenen Neutronengiften und ihren apparativen Einsatz,
- die Entwicklung von Verfahren zur Verminderung von Prozeßabfällen (z.B. durch Salzfreiheit)

Für einige Vorhaben können wir entweder französische Vorarbeiten ausnutzen oder auf französische Teststände zurückgreifen.

Als Zwischenergebnisse unserer Arbeiten sind durch den erfolgreichen und nunmehr störungsfreien Betrieb der Laborwiederaufarbeitungsanlage Milli wichtige Erkenntnisse für die experimentelle Fließschemaentwicklung angefallen. Weiterhin wurden die elektrolytischen Verfahren zur Plutoniumchemie sowie zur Abfallminimierung in den halbtechnisch inaktiven Maßstab vergrößert und erfolgreich getestet.

Es gelang nachzuweisen, daß das Spaltprodukt Tritium mit einer neuentwickelten Pulssäule (CEA-Arbeit) im Head-end zusammengehalten werden kann. Erste Untersuchungen, Hafnium als heterogenes Neutronengift für den Apparatbau einzusetzen, sind vielversprechend.

Die Arbeiten zur Extraktion werden vorwiegend von der Heißen Chemie ausgeführt.

Abfallbehandlung (Abb. 6)

Dem Gebiet der Abfallbehandlung kommt seine für die Wiederaufarbeitung überragende Bedeutung dadurch zu, daß an dieser Stelle des Brennstoffkreislaufs über 99 % aller radioaktiven Schadstoffe verarbeitet werden müssen.

Sie fallen in 6 großen Kategorien an, den hoch-, mittel- und schwachaktiven wässrigen Abfallströmen (HAW, MAW,

LAW), gasförmigen Schadstoffen, Sonderabfällen (Organische Stoffe, Alpha-Waste) und Feststoffen wie Hülsen usw. Alle Kategorien verlangen eine gesonderte Verarbeitung, Verfestigung und Aufbewahrung.

Das Ziel der Vorhaben ist es, eine für das Gebiet der Bundesrepublik optimale Abfallbehandlung von säkular sicheren, endlagerfähigen Verfestigungs- oder Bewahrungsformen für alle 6 Kategorien zu entwickeln. Bisher haben nur wenige Verfahren, wie die Verglasung und Bituminierung, in der fachkundigen Öffentlichkeit Anerkennung gefunden. Auch in anderen Ländern stellt der Waste aller Art noch kein vollständig gelöstes Problem dar, da man ihn entweder zwischenlagert oder als harmlos eingestufte Mengen ins Meer abgibt. Hierfür günstige Standorte hat die Bundesrepublik aber nicht, so daß wir ein anderes und wie wir glauben, langfristig besseres Konzept im Salzendlager entwickeln.

Zusammengefaßt liegen die Schwerpunkte der Abfallbehandlung auf:

- der Behandlung hochaktiver wässriger Lösungen einschließlich der Verfestigung,*
- der Behandlung mittelaktiver und schwachaktiver Lösungen einschließlich Verfestigung (Bituminierung, evtl. Verglasung, Zementierung),**
- der Beseitigung von Tritiumwaste,
- der Beseitigung von organischem Abfall,

* Konkretes Ziel ist die Anlage VERA an der WAK

** Konkretes Ziel ist die Anlage MAVA an der WAK

Schematische Darstellung — Abfall-Behandlung (5500) mit Angabe wichtiger Ziele

Optimierung der HNO₃-Zerstörung
(z. B. mit Zucker, Ameisensäure oder
Formaldehyd) im Hinblick auf eine
geeignete (geringeres Volumen)
T-Rückführung in das Head-End.

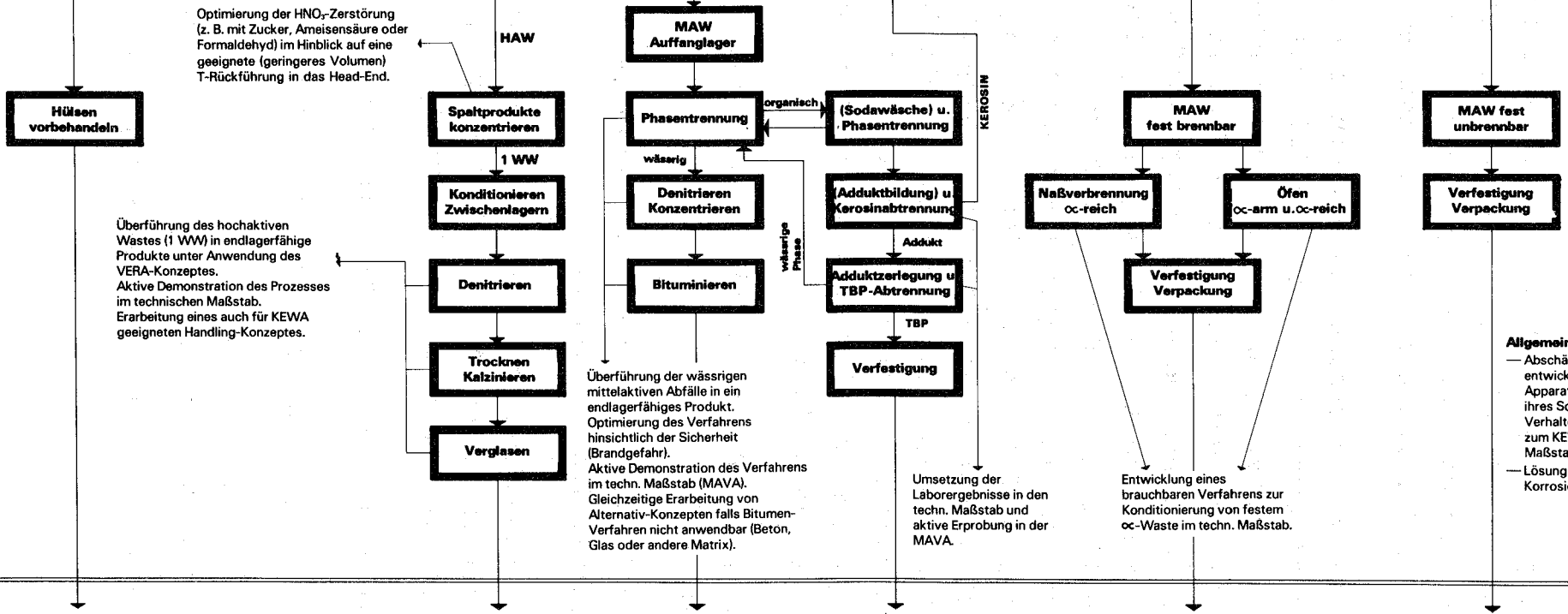
Überführung des hochaktiven
Wastes (1 WW) in endlagerfähige
Produkte unter Anwendung des
VERA-Konzeptes.
Aktive Demonstration des Prozesses
im technischen Maßstab.
Erarbeitung eines auch für KEWA
geeigneten Handling-Konzeptes.

Überführung der wässrigen
mittelaktiven Abfälle in ein
endlagerfähiges Produkt.
Optimierung des Verfahrens
hinsichtlich der Sicherheit
(Brandgefahr).
Aktive Demonstration des Verfahrens
im techn. Maßstab (MAVA).
Gleichzeitige Erarbeitung von
Alternativ-Konzepten falls Bitumen-
Verfahren nicht anwendbar (Beton,
Glas oder andere Matrix).

Umsetzung der
Laborergebnisse in den
techn. Maßstab und
aktive Erprobung in der
MAVA.

Entwicklung eines
brauchbaren Verfahrens zur
Konditionierung von festem
oc-Waste im techn. Maßstab.

Allgemein:
— Abschätzung der
entwickelten
Apparate bezüglich
ihres Scale up-
Verhaltens bis hin
zum KEWA-
Maßstab.
— Lösung von
Korrosionsproblemen.



- der Verfestigung oder Verbrennung von α -aktivem Abfall,
- der Beseitigung von festem Abfall (Hülsen, Apparate),
- den Endlagerfragen für alle Abfallsorten*.

Als Zwischenergebnisse können wir auf den erfolgreichen Versuchsbetrieb über viele Wochen mit dem Herzstück des inaktiven Teststandes zur Hochaktiv-Abfallverglasung, der Sprühkalzination, verweisen. Weiterentwickelt wurden die Denitrierung, auch von mittelaktivem wässrigen Abfall, für die derzeit geplante Anlage MAVA an der WAK, die Bituminierung von verschiedenen Abfallsorten, auch den von Kernkraftwerken usw. sowie die Herstellung von stark aktiven Gläsern, die es gestatten, die Alterung im Zeitraffer zu simulieren.

Die Verarbeitung von organischen Abfällen wurde in halbtechnisch inaktiven Versuchen zur Prototypreife gebracht.

Diese Arbeiten werden vorwiegend von ABRA getragen; eine internationale Zusammenarbeit mit Eurochemic und der US-ERDA ist gesichert. Die Vorarbeiten zum Bau einer inaktiven Verglasungsanlage VERA laufen, um die aktive Anlage an der WAK technisch vorzubereiten. Die Bituminierung von LAW und MAW wurde erfolgreich erprobt bzw. läuft betriebsmäßig für LAW und schwachen MAW.

* Diese Arbeiten stehen im Zusammenhang mit der ASSE II als Versuchslager.

Analytik und Prozeßautomatisierung

Dieses Teilprojekt umfaßt vor allem die Gebiete der Analytik, besonders jedoch Verfahren zur automatischen Erfassung des Prozeßgeschehens. Außerdem sind hier noch einige Vorhaben zusammengefaßt, die nicht bestimmten Teilen des Wiederaufarbeitungs-Prozesses zugeordnet werden können. Sie lassen sich daher auch schaubildmäßig nicht vorstellen.

Es ist das Ziel der Vorhaben, die Funktionsfähigkeit und Schnelligkeit der Prozeßanalytik für eine Großanlage neben der Gewinnung von Prozeßsteuerdaten, vor allem für die Betriebssicherheit (Kritikalität, Massenfluß, Fehlchargenverminderung), zu verbessern, weil sie für diese viel wichtiger ist als für Prototypanlagen wie die WAK.

Die Prozeßanalytik ist ein Baustein der Sicherheit überhaupt und kann in ein Frühwarnsystem einbezogen werden. Voraussetzung hierfür ist allerdings die Verarbeitung aller verfügbaren Daten von in-line-Messungen und Laborergebnissen zu einer rechnergestützten Prozeßüberwachung (Zusammenarbeit IHCH, IDT, ADI). Ferner sollen die Möglichkeit der Automatisierung geprüft und für Teilbereiche, wie Hilfsprozesse, Medienversorgung, Alarmsysteme, Abluft, Nachschub, Statistik usw., Steuersysteme angeboten werden. Die Neu- und Weiterentwicklung von in-line-Instrumenten sowie automatisierbaren Labormethoden sind weitere Ziele. Zum Bereich der Studien zählen die Vorhaben zur Erfassung der Alpha-Strahler in Wasteströmen (IHCH) und zu logistischen Problemen (Bearbeitung IDT) einer Großanlage.

Ein wesentlicher Teil der Arbeiten fällt in Phase 2 (baubegleitendes Programm), sofern in der Phase 1 bis 1977 baureife Unterlagen bis zum Abschluß der Detailplanung des Ingenieurs der Großanlage vorliegen werden.

Es werden folgende Schwerpunkte gebildet oder weiter bearbeitet:

- Die Arbeiten zur in-line-Analytik werden seit Jahren im IHCH betrieben (TAMARA). Die rechnergestützte Prozeßüberwachung ist bereits in Zusammenarbeit mit IDT und ADI entwickelt worden. Diese Arbeitsrichtung wird teilweise durch Prüfung entwickelter Geräte an der WAK verstärkt fortgeführt.
- Die Laborautomatisierung wurde als Thema 1974 neu begonnen, stützt sich jedoch auf Vorarbeiten bei Eurochemic sowie auf Verfahren des IHCH und IRCH.
- Schwierigkeiten, die im Rahmen der Betriebshilfe für WAK behoben werden, stellen die aktuellen Probleme einer Wiederaufarbeitungsanlage für das Projekt.
- Die logistischen Probleme einer großen Wiederaufarbeitungsanlage werden nach Modellen des IDT neu bearbeitet.

Bei der Vielzahl der in diesem Teilprojekt zusammengefaßten Arbeiten ist eine summarische Darstellung schwierig (siehe Fachbeitrag in-line-Instrumentierung und rechnergeführte Prozeßüberwachung bei der Wiederaufarbeitung).

Als Zwischenergebnis liegen mehrere Studien vor, so z.B.:

Die Zusammenstellung des Spaltproduktinventars der Brennelemente, die logistische Betrachtung des Brennelementtransports.

Die Arbeiten zur in-line-Instrumentierung führten zur Auswahl geeigneter Meßmethoden, die teils schon in inaktiven Testanlagen ausgeprüft wurden.

Die Laborautomatisierung entwickelte Geräte und Methoden, deren heiße Tests z.Zt. anstehen. Im Rahmen der Betriebs- hilfe für die WAK wurde die Lösungsmittelwäsche verbessert und die Änderung bereits in die Anlage eingebaut.

Zu diesem Teilprojekt steuern die Anlagen der BNFL, des CEA, der Eurochemic, der WAK und alle am PWA beteiligten Institute der GfK Entwicklungen bei.

Als besondere Ergebnisse des gesamten F+E-Projekts können wir auf die bereits erwähnte Aufstellung der Fließ- schemastudie und die Formulierung unserer einzelnen Auf- gaben und Ziele hinweisen. Diese wurden mit der KEWA vor einem Jahr abgestimmt und die Arbeiten aufgenommen. Die enge Zusammenarbeit, besonders mit dem CEA, wurde begonnen. Im Sinne der Ausbildungsfunktion der GfK wurde ein interner Fortbildungskurs zu 'Problemen in großen Wiederaufarbeitungs- anlagen' mit insgesamt 100 Stunden Vorlesungs- und Übungs- zeit durchgeführt.

Außerdem wurde seit Ende 1974 die Gruppe von jetzt 20 delegierten Industrieingenieuren in die GfK-Arbeits- gruppen integriert.

4.5. Projektierung und Bau von Versuchsanlagen und Testständen

Eingangs wurde auf einige vorhandene Testeinrichtungen im Kernforschungszentrum Karlsruhe hingewiesen. Die Fließschemastudie und die Erstellung der Konzeptstudie der KEWA wiesen aus, daß einige weitere Anlagen zur Erreichung des Gesamtzieles 'Große Wiederaufarbeitungsanlage' noch fehlen. Neben den vorhandenen Anlagen, der WAK und der ADB, dem Filterprüfstand des LAF, der MILLI und TAMARA, mußten folgende Anlagen in das Entwicklungsprogramm aufgenommen werden:

1. Eine Technikumshalle für die Komponentenerprobung (TEKO), die vor allem die inaktive Prüfung von Komponenten im Großanlagen-Maßstab zuläßt sowie Platz für einige prototypische, jedoch maßstabsverkleinerte PWA-Testanlagen schaffen soll, die in den vorhandenen Hallen nicht mehr unterzubringen sind. Planung und Bau erfolgen im Rahmen des Konjunkturprogramms der Bundesregierung.

Vergabe des Projektes ist erfolgt. (Kosten ca. 40 Mio DM)

2. Eine inaktive Versuchsanlage zum Verglasen von simuliertem hochaktivem Abfall als Vorläufer für eine heiße Versuchsanlage VERA an der WAK.

Vergabe des Vorprojektes ist erfolgt. (Kosten ca. 12 Mio DM)

Für die heiße Versuchsanlage sollte in 3 - 4 Jahren mit dem Bau begonnen werden.

3. Ein Head-End-Abgasversuchsstand für alle technologisch wichtigen Prüfungen zur Auslegung des Auflösersystems für die Großanlage.

Projekt ist vergeben. (Kosten ca. 2 Mio DM)

4. Im Rahmen des PNS ein kalter Versuchsstand für die Entfernung des Kryptons aus dem Auflöserabgas.

Projekt ist vergeben. (Kosten ca. 2 Mio DM)

5. Im Rahmen der Nachrüstung der WAK wird eine Anlage zur Verfestigung von mittelaktivem Abfall MAVA und eine Abgasreinigungsanlage für das Auflöserabgas gebaut werden. Für beide Anlagen liefern Entwicklungsvorhaben der GfK (PWA, PNS) wichtige Auslegungsdaten.

(Kosten MAVA ca. 50 - 60 Mio DM, Abgas ca. 15 - 25 Mio DM)

Für einige Abfall- und ein Plutoniumextraktionsvorhaben werden in Zukunft noch kleinere Teststände hinzukommen. (Kosten zusammen ca. 10 - 15 Mio DM). Der Großteil der benötigten technischen Versuchsanlagen dürfte mit dem o.a. Angaben jedoch beschrieben sein.

Einen Überblick über alle Testanlagen, geordnet nach steigendem Reifegrad, gibt Abb. 7 wieder.

Hierin sehen wir, daß alle Anlagen des Laborbereichs, der Teststände und der halbtechnischen Versuchsanlagen von GfK, GWK und GSF abgedeckt sind. Der technisch inaktive Bereich wird von der TEKO eingenommen. Der Betrieb dieser Einrichtung soll durch die Industrie erfolgen. Der technisch aktive Bereich gehört heute eindeutig in den Aufgabenbereich der Industrie.

Testanlagen für Entwicklungsarbeiten geordnet nach steigendem Reifegrad

Abb. 7

Maßstab	TEILPROJEKTE							Verantwortlichkeit
	Head-end 5100	Extraktion 5200	Tail-end 5300	Hilfsprozesse 5400	Abfallbehandlung 5500	Prozeßkontrolle 5600	Endlag. Transport 5700	
Labor	Milli	Milli	Milli		Labor Bitumen- schnecke			Staat (GfK, GWK, GSF)
Teststand	Head-end Teststand LAF-Filter Teststand	TAMARA			VERA	TAMARA		
Halb- technisch Inaktiv	TEKO TTR	U-Teststand		TEKO	VERA			
Halb- technisch Aktiv	WAK	WAK	WAK	WAK	WAK ADB MAVA VERA	WAK	WAK ASSE	
Technisch Inaktiv	TEKO	TEKO		TEKO	TEKO	TEKO		Offener Bereich
Technisch Aktiv	KEWA	KEWA	KEWA	KEWA	KEWA	KEWA	Endlager	KEWA/EVU

4.6. Unvollständig bearbeitete Aufgaben im Rahmen des Gesamtprojekts

Es gibt aber noch Bereiche im Rahmen des Gesamtprojekts 'Große Anlage', die nach Meinung der GfK dringend verstärkt werden müssen.

Der Vorstand der GfK und die Projektleitung des F+E-Projekts haben es für ihre Pflicht gehalten, im Rahmen des Gesamtprojekts alle Entwicklungen mit kritischem Auge zu bewerten, die nicht ausschließlich im Bereich der Industrie beheimatet sind, d.h. alles außer dem Bau der Anlage selbst sowie der Standortsuche. Diese Beobachtung kann aber bei den begrenzten Mitteln an Geld und vor allem Personal, die der GfK als öffentlicher Forschungseinrichtung zur Verfügung stehen, nicht auch automatisch bedeuten, daß erkannte Probleme von ihr bearbeitet werden. Wir können aber über die von uns bearbeiteten Problemstellungen hinaus unsere Partner innerhalb des Gesamtprojekts auf diese bisher von niemand verbindlich übernommenen Aufgaben hinweisen.

Es sind dies nach unserer Auffassung z.Zt.:

1. Die Ausbildung und Bereitstellung einer ausreichenden Anzahl von Fachleuten für Behörden, Ingenieurwesen, Bau und Betrieb der späteren Anlagen in der von der Industrie gewünschten Zeitspanne. GfK kann und wird auch fernerhin einen Teil dieser Leute bei sich schulen, wie z.B. die 20 delegierten Ingenieure der Firmen Uhde/Lurgi und Nukem, oder aus ihren Reihen stellen, aber nach unserem Dafürhalten reicht unsere Kapazität nicht aus.
- Der Betrieb der KEWA-bezogenen Testanlagen oder Originalapparate in der TEKO ist eine Aufgabe, die von der Industrie gelöst werden muß. Hierzu bedarf es fachkundigen Personals.

- Genehmigungsaufgaben, die sich auf den Anlagenbetrieb der künftigen Großanlage beziehen, können jedenfalls von GfK nicht sinnvoll abgeklärt oder experimentell geprüft werden.
- Für experimentelle Sicherheitsuntersuchungen mit Spaltstoffen stehen nur wenige und z.T. nicht ausreichende Testanlagen zur Verfügung, neue können zeitgerecht sowie aus Kostengründen nicht mehr erstellt werden.
- Für die flüssig-HAW-Lagerung kann die GfK ebenfalls keine Leistungen erbringen.
- Das Endlager fällt mit Ausnahme von kerntechnischen Entwicklungsarbeiten und Sicherheitsbetrachtungen nicht in den Bereich der GfK.

4.7. Beteiligte Institute und Abteilungen der GfK und GWK

Die am Projekt mitwirkenden Institute und Abteilungen der GfK sind dem Umfang der Arbeiten nach:

1. Institut für Heiße Chemie (IHCH)
2. Abteilung Behandlung radioaktiver Abfälle (ABRA)
3. Abteilung Reaktorbetrieb und Technik (RBT)
4. Institut für Radiochemie (IRCH)
5. Institut für Datenverarbeitung in der Technik (IDT)
6. Laboratorium für Aerosolphysik und Filtertechnik (LAF II)
7. Abteilung Datenverarbeitung und Instrumentierung (ADI)
8. Institut für Neutronenphysik und Reaktortechnik (INR)
9. Institut für Reaktorbauelemente (IRB)

10. Institut für Materialforschung (IMF)
11. Laboratorium für Isotopentechnik (LIT)
12. Institut für angewandte Systemanalyse (IAS)

PWA-tangierende Arbeiten der Projekte PNS und SpFK sowie PSB werden berücksichtigt.

Nächst wichtiger Partner ist die GWK, deren Entwicklungsgruppe (GWK-E) in die Projektarbeiten integriert ist. Darüber hinaus soll in Abstimmung zwischen GWK und GfK die WAK als Testbett für die entwickelten oder zur Wahl stehenden Komponenten und Verfahren im Rahmen des Möglichen eingesetzt werden. Daneben entsenden KEWA und GfK ständige Beobachter zu französischen und englischen Betriebs- und Testanlagen, um durch Kooperation eine Verbilligung und/oder einen Zeitgewinn zu erzielen.

5. ZUSAMMENFASSUNG

Das Projekt wird sich zunächst fast ausschließlich auf die erste deutsche Großanlage ausrichten, jedoch müssen einige Arbeiten längerfristiger Natur auch jetzt beibehalten werden, um den nahtlosen Übergang auf weitere Anlagen für LWR bzw. Nachbesserungen, wie sie bei Erstanlagen dieser Art erwartet werden müssen, zu ermöglichen.

Wie eingangs erwähnt wurde, kann auch die Brüterwiederaufarbeitung nur noch begrenzte Zeit in Wartestellung gehalten werden, um nicht den gleichen Nachlaufstreß, den wir jetzt auf dem LWR-Gebiet gegenüber dem Ausland haben, noch einmal zu wiederholen. Da die Brennstoff-Aufarbeitung von Oxidbrütern prinzipiell mit den gleichen Verfahren möglich ist, sollten hier schon jetzt die Kooperation mit dem Ausland gesucht und die verschärften Anforderungen an die Technik, Kontrolle usw. als Fortführung unserer LWR-Arbeiten anvisiert werden.

Nach heutiger Schätzung dürfte die erste Anlage für LWR-Brennelemente etwa 1985 ihren Betrieb aufnehmen.

Von den bis dahin zu erbringenden etwa 2000 Mannjahren für F+E-Arbeiten sind bisher ca. 200 mit den Beiträgen dieses KFK-Berichtes zum 1. Statusbericht erfaßt.

6. AUSBLICK

Die GfK arbeitet mit verschiedenen Projekten an Themen der Energiesicherung (Abb. 8), nämlich dem Projekt Schneller Brüter, dem Trenndüsenverfahren, diesem Projekt Wiederaufarbeitung und Abfallbehandlung, dem Projekt Nukleare Sicherheit und dem Projekt Spaltstoffflußkontrolle. Alle gehören zum Gesamtbild der nuklearen Energieversorgung dazu und haben gegenseitige Abhängigkeiten, die nicht dadurch aufgehoben werden können, daß man die Projekte bzw. die hinter ihnen stehenden Probleme isoliert betrachtet. Wir glauben daher, daß es realistisch ist, sich allen diesen Problemen in einem Zentrum zu stellen und glauben ferner, daß alle von uns aufgegriffenen Probleme lösbar sind. Das gilt auch für die Aufgabe 'Wiederaufarbeitung und Abfallbehandlung'. Allerdings müssen hierzu Staat und Wirtschaft jeder seinen Teil an der Gesamtaufgabe übernehmen.

Wir sollten neben allen aufgezählten Forschungs- und Entwicklungsthemen nicht vergessen, daß Wiederaufarbeitungsanlagen bereits funktionieren und dies sogar ohne Umweltbeeinträchtigung.

**AUFGABEN-
ORGANIGRAMM
DER GfK
1975**

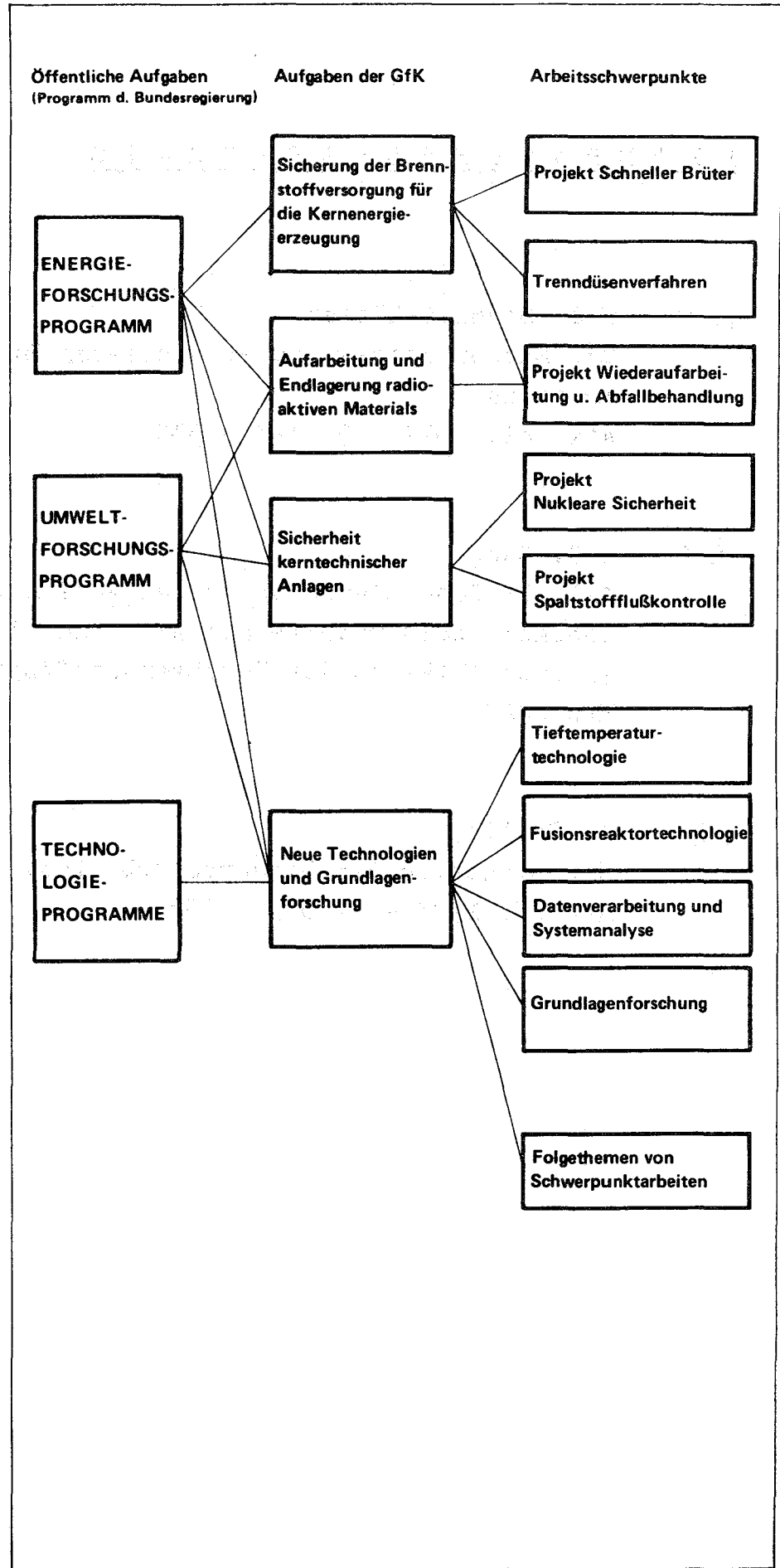


Abb. 8

L I T E R A T U R V E R Z E I C H N I S

- /1/ W.J. Schmidt-Küster
Das Entsorgungssystem im nuklearen Brennstoff-
kreislauf
AtW Juli 1974 - S. 340 - 345
- /2/ H.O. Haug
Anfall, Beseitigung und relative Toxizität lang-
lebiger Spaltprodukte und Aktiniden in den radio-
aktiven Abfällen der Kernbrennstoffzyklen
KFK 2022
- /3/ A. Schlitt
Zur Situation der Wiederaufarbeitung in Europa
AtW 7/8 1975 - S. 335 - 338

STATUSBERICHT 1975 - 17.11.1975

Projekt Wiederaufarbeitung und Abfallbehandlung

W. I s s e l

Sehr verehrte Damen und Herren,

Entwicklung und Stand der industriellen Wiederaufarbeitung
von Kernbrennstoffen in der Bundesrepublik Deutschland

sollen hier mit einem kurzen Abriß über den Stand des Konzepts für die industrielle Wiederaufarbeitung und einem Überblick über den Weg, der dahin geführt hat, aufgezeigt werden.

Entwicklung der industriellen Wiederaufarbeitung

Vor nunmehr zwei Jahren haben die Gesellschafter der KEWA, Kernbrennstoff-Wiederaufarbeitungs-Gesellschaft m.b.H., den Beschluß zur Inangriffnahme des Bau- und Betriebsprojektes einer großen Wiederaufarbeitungsanlage gefaßt. Grundlage für diesen Beschluß war einmal die vertragliche Bindung im Rahmen eines Vertrages der in der United Reprocessors zusammengesetzten Partner, der der KEWA die Option zum Bau der ersten europäischen Anlage einräumt, sowie der sich abzeichnende stark zunehmende Bedarf an Wiederaufarbeitungsleistung Anfang der 80er Jahre.

Selbstverständliche Voraussetzung für die Realisierung dieses industriellen Bauvorhabens mußte ein wirtschaftlich vertretbares Betriebsergebnis sein.

Eine Konzeptstudie als erste Projektstufe wurde daher von der KEWA in der Zwischenzeit erstellt, welche nach Überprüfung der technologischen und wirtschaftlichen Gegebenheiten ein Anlagenkonzept aufzeigt, das an einigen Stellen von früheren Konzepten nicht unwesentlich abweicht. Vor allem an Stellen, an denen eine wirtschaftliche Optimierung nicht als Auslegungsmaßstab diente.

Es erscheint notwendig, hier auf die bisherigen Entwicklungsstufen der Wiederaufarbeitung etwas einzugehen, um das heute von der KEWA vorzulegende Konzept einer industriellen Anlage beurteilen zu können.

Die Entwicklung von Aufarbeitungstechnologien zur Plutoniumgewinnung für ausschließlich bzw. vornehmlich militärische Zwecke liegt jetzt etwa 30 Jahre zurück. Diese Technologien kamen sehr bald in Anlagen von großtechnischem Maßstab erfolgreich zum Einsatz und ließen sich auch ohne größere Schwierigkeiten auf die Aufarbeitung von Kraftwerksbrennstoffen niedrigen Abbrands übertragen. In erster Linie wurde in diesen Anlagen die Lösungsmittelextraktion angewendet und im Laufe der Zeit optimiert. Ausgehend vom Kenntnisstand der in diesen ersten staatlichen Anlagen durchgeführten Aufarbeitung, für die auch zahlreiche andere Aufarbeitungstechnologien untersucht wurden, setzte zu Beginn der 60er Jahre die Planung von Anlagen unter wirtschaftlichen Gesichtspunkten ein, welche besonders die Aufarbeitung oxidischer Brennstoffe für Leichtwasserreaktoren und langfristig auch die Aufarbeitung für Brutreaktoren zum Ziel hatte (Abb. 1).

Etwa gleichzeitig begannen damals erste Überlegungen und Planungen zur Erweiterung der Anlagen in Windscale durch ein neues 800 tato Head-end für Oxidbrennstoffe, bei der Nuclear Fuel Services für den Bau einer 300 tato-Anlage und bei der Eurochemic für die Errichtung einer 100 to-Mehrzweckanlage.

Erste Überlegungen im Jahre 1960 über ein Konzept für eine kleine deutsche Anlage unter industriellen Gesichtspunkten ließen selbst bei den damals noch hohen Plutoniumpreisen kein wirtschaftlich vertretbares Ergebnis erwarten. Wie allgemein bei vergrößerungsfähigen chemischen Prozessen üblich, wurden demzufolge Anlagenkosten mit entsprechend der Anlagengröße nicht proportionalem Faktor soweit eskaliert bis sich eine wirtschaftliche Anlagengröße ergab. Eine Anlage in der Größenordnung der bereits laufenden Anlagen von 1000 bis 2000 tato zeigte ein günstiges Kostenbild.

Maßstab für alle Überlegungen und Kostenrechnungen waren dabei Aufarbeitungspreise, die ein rückgewonnenes Material zu Kosten lieferten, die mit frischem Brennstoff und demzufolge auch wieder mit Kosten für andere Energieträger konkurrenzfähig waren.

Das zunächst noch geringe Brennstoffaufkommen sowie die zu erwartende Überkapazität durch den Ausbau bestehender Anlagen, verbunden mit einem oberen Limit für die Aufarbeitungskosten führte zu Überlegungen und Untersuchungen, in welcher Weise eine neue Wiederaufarbeitungsanlage

- a) zunächst Uran und Plutonium zu attraktiven Gesteinungskosten erzeugen kann,

b) bei der zu erwartenden Überkapazität mit möglichst niedrigen Aufarbeitungskosten sich einen ausreichenden Marktanteil sichern kann.

Diesen Forderungen entsprachen alle in der Vergangenheit konzipierten Projekte. Man strebte an

- niedrige Investitionskosten durch kleines Bauvolumen
- schnellen Materialdurchsatz; zu erreichen durch Kleinhalten der Puffermöglichkeiten, vor allem auch der Lagerbecken
- möglichst viele Verarbeitungsstufen in der kleinstmöglichen Apparatur und mit wenigen modernen, dafür aber komplexen Verfahrensabläufen
- wenig Personal.

Das von der General Electric entwickelte Aqua-Fluor-Verfahren, welches beim Bau der Morris Anlage (Illinois), zur Anwendung kam, kann als typisch für zahlreiche Auslegungsvorgaben der damaligen Planungen gelten.

Auch die Anlage der Nuclear Fuel Services wurde bereits sehr früh nach diesen Auslegungskriterien errichtet. Allerdings wurde dort der technologisch erprobte Purex-Prozeß weiterhin eingesetzt.

In Europa wurde die Eurochemic im Hinblick auf das Ziel umfassenden Erfahrungsgewinns zwar mit wesentlich mehr Komfort an einzelnen Stellen errichtet, jedoch fehlten darüber hinaus Auslegungsvorgaben, die eine wirtschaftliche industrielle Aufarbeitung möglich gemacht hätten oder auch nur zur Klärung der Wirtschaftlichkeit hätten beitragen können.

Als man in der Bundesrepublik die Wiederaufarbeitungsanlage in Karlsruhe plante, wurde von vornherein auf eine Auslegung unter Wirtschaftlichkeitsaspekten verzichtet, obwohl der Bau der Anlage und der Betrieb nach industriellen Gesichtspunkten abgewickelt wurden und sich das Konzept z.B. von einer Anlage wie der NFS nur wenig unterschied.

Eine rein rechnerische Zusammenfassung der nominellen Leistungen dieser in Planung, Bau und Inbetriebnahme befindlichen Wiederaufarbeitungsanlagen, zeigte Ende der 60er, Anfang der 70er Jahre ein sehr großes theoretisches industrielles Wiederaufarbeitungspotential, welches nur eine geringe Auslastung erwarten ließ.

Die Gesellschafter der Gesellschaft zur Wiederaufarbeitung von Kernbrennstoffen - der Betreibergesellschaft der Wiederaufarbeitungsanlage Karlsruhe - (nämlich Nukem GmbH, Hoechst AG, Bayer AG, Gelsenberg AG) schlossen sich daher mit der KEWA in der URG mit dem französischen Commissariat à l'Énergie Atomique (CEA) und British Nuclear Fuels Limited (BNFL) zusammen, um den Bau der deutschen Anlage zu einem wirtschaftlich vertretbaren Zeitpunkt, etwa 1983-85 sicherzustellen.

Eine für diese Anlage erstellte vorläufige Überprüfung durch die GWK ließ jedoch sehr bald Zweifel an den bis daher diskutierten "wirtschaftlich" vertretbaren Aufarbeitungspreisen aufkommen.

Die in den letzten Jahren etwa seit 1972, bei Planung, Bau und Betrieb der WAK und der ausländischen Anlagen für LWR-Elemente gewonnenen neuen Erkenntnisse ließen frühere Betrachtungen in einem erheblich anderen Licht erscheinen. Keine der Anlagen hatte die planungsgemäßen Erwartungen auch nur angenähert erfüllen können.

Diese Entwicklung wurde durch zwei weitere Aspekte noch erheblich beschleunigt: das gesteigerte Umweltbewußtsein der Bevölkerung im Zusammenhang mit der Genehmigung, dem Bau und Betrieb von kerntechnischen Anlagen sowie die inflationistische Entwicklung der Preise, insbesondere auf dem Gebiet der Kernindustrie.

KEWA-Konzept

Anhand des in der Anpassung an die heutigen Kenntnisse entwickelten KEWA-Konzepts sollen einige wenige der für die Wiederaufarbeitungsanlage entscheidenden Kriterien, die Sicherheit und Wirtschaftlichkeit beeinflussen werden, aufgezeigt werden.

Ein vereinfachtes Schema zeigt zunächst die für die einzelnen Verfahrensschritte vorgeschlagenen Technologien (Abb. 2), welche heute nach erprobten Verfahren zum Einsatz gelangen :

- trockene und nasse Entladung der Brennelemente
- Einlagerung unter Wasser
- Zerkleinerung der Brennelemente mit Bündelschere (Abb. 3)
- selektive Auflösung des Brennstoffs im Auflöser in Salpetersäure mit Abtrennung des festen Strukturmaterials
- Reinigung der salpetersauren Lösung von ungelösten Partikeln, Schlamm und Zirkonspänen
- Homogenisierung und Bilanzierung der Brennstofflösung
- Rückhaltung von Jod und Krypton und anschließende Zwischenlagerung auf dem Gelände
- Extraktion von Uran und Plutonium mit Tributylphosphat aus salpetersaurer Lösung und Abtrennung der hochaktiven Spaltprodukte
1. Extraktionszyklus: Konzentrierung und Zwischenlagerung der Spaltprodukte auf dem Gelände, Trennung von Uran und Plutonium durch Reduktion von Plutonium mit vierwertigem Uran

- Feinreinigung des Urans durch zwei aufeinander folgende Extraktionszyklen mit jeweiliger Zwischenkonzentrierung des Urans
- Feinreinigung des Plutoniums in zwei aufeinander folgenden Extraktionszyklen
- Feinreinigung, Konditionierung, Abfüllung oder Zwischenlagerung der Endprodukte Uran und Plutonium
- Lagerung der festen Abfälle auf dem Gelände
- weitestgehende Rückführung der flüssigen Prozeßabfälle
- Konditionierung, Konzentrierung und Lagerung der nicht rückführbaren schwach- und mittelaktiven Abfälle. Eine Konditionierung für die Einlagerung in ein Endlager, wie z.B. Verglasung oder Betonierung ist zunächst nicht im Projekt enthalten. Alle Produkte werden mit der Möglichkeit zur Nachbehandlung zwischengelagert und können später von dort direkt in ein Endlager überführt werden. Aus Kostengründen sollte jedoch die Endlagerung so früh wie möglich angestrebt werden.

Anhand des Kapazitäts- bzw. Leistungsschaubildes (Abb. 4) sollen die wichtigsten Auslegungskriterien nochmals aufgezeigt werden :

- 4 t/ato sind das heute überschaubare Durchsatzmaximum erprobter Apparaturen und beinhalten ein betriebliches Optimum
- 15 Jahre Lebensdauer können als übersehbarer Zeitraum einkalkuliert werden
- eine wirtschaftliche Vollausslastung ist bei frühestmöglichem Vollast-Betriebsbeginn 1985 gesichert
- die Übernahme der LWR-Brennelemente mit einem durch-

schnittlichen Abbrand von 34.000 MWd/t bzw. einem maximalen Abbrand von 40.000 MWd/t und die Aufarbeitung nach 365 d Kühlzeit läßt keine unübersehbaren Betriebsschwierigkeiten erwarten

- zwei völlig getrennte unabhängig betreibbare Empfangsstrecken schließen eine längere Unterbrechung der Brennelementabnahme auch bei Störungen aus. Auch Anlieferungsspitzen können übernommen werden (Redundanz)
- trockene Entladeschleusen bzw. besonders gesicherte Naßschleusen sowie ein Transfersystem zwischen mehreren Becken und der Aufarbeitung schirmen die Lagerung gegen störende Einflüsse von außen ab
- zwei völlig getrennte unabhängig betreibbare Betriebsbecken schließen längere Unterbrechungen in der Einlagerung aus. Eine Betriebslagerkapazität von 2 x 700 t erlaubt die Brennelementeinspeisung für eine optimale Betriebsführung. Zwei weitere Becken mit je ca. 1000 t Kapazität dienen der Überbrückung des Aufarbeitungsengpasses bis zur Betriebsaufnahme. Es kann heute noch nicht abgeschätzt werden, ob diese Becken in den Folgejahren als Reserve freigestellt werden können. Der Fall, daß die Becken als Puffer mit einer längeren Aufenthaltszeit vor der Wiederaufarbeitung benutzt werden müssen, ist der wahrscheinlichere.

Alle Becken werden nach der gleichen bautechnischen Konzeption erstellt (Abb. 5). Sie beinhalten

- eine interne Notreserve für Kapazitätserhöhung (nach Durchführung von einigen Zusatzmaßnahmen)
- die Möglichkeit, in relativ kurzer Zeit nach dem gleichen System ergänzt werden zu können

und stellen eine wirtschaftlich und sicherheitstechnisch optimale Anlageneinheitsgröße dar.

- Eine Verteilerschiene erlaubt die Beschickung bzw. Überbrückung verschiedener Lagerbecken und Verknüpfung mit einer der nachfolgenden Aufarbeitungseinheiten
- Für Schere und Auflösung sind zwei parallele unabhängig betreibbare Betriebseinheiten vorgesehen. Für diese hochaktiven, Korrosion und mechanischem Verschleiß, wie Strahlenbelastung ausgesetzten Anlagenteile muß ein 100 %iger standby für den bestimmungsgemäßen Betrieb vorgesehen werden. Für einen Ersatz der einen oder anderen dem Verschleiß unterliegenden Einheit, der ohne Reservezellen etwa vier Jahre in Anspruch nehmen könnte, muß relativ früh eine dritte Ersatzeinheit installiert werden. Eine vierte Zelleinheit dient als Reserve für den Einbau eines Head-ends für Re-cycle-Brennelemente.
- Zwei unabhängig betreibbare Abgasreinigungsanlagen können je wahlweise die Abgase der Auflöser übernehmen (Redundanz)
- Aus den Auflösebetrieben können zwei hochaktive Extraktionszyklen wahlweise gespeist werden. Diese hochaktiven Zyklen sind nur direkter Wartung zugänglich mit Dekontaminations- und Wartungszeiten bis zu einem Jahr; daher für den bestimmungsgemäßen Betrieb je mit 100 %iger Leistung installiert. Jeder Zyklus beinhaltet die dazu gehörende Säurerückgewinnung sowie eine Lösungsmittelrückgewinnung.
- Der 2. und 3. Uranzyklus wird sich in seiner Auslegung stark an den in Windscale seit Jahren erfolgreich mit Mischabsetzern betriebenen Prozeß anlehnen.
Diesem Anlagenteil wird eine hohe Verfügbarkeit zugemessen, außerdem besitzen Mischabsetzer eine ausreichende Flexibilität, um dem jeweiligen Leistungsbedarf der vorgeschalteten Extraktionseinheit angepaßt werden zu können.
Um das Risiko dieses Anlagenteils dem anderer Prozeßschritte anzupassen, aber auch, um einer zu erwartenden Leistungssteigerung gerecht werden zu können, sind baulich die Möglichkeiten für die Installation einer Zweiteinrichtung gegeben.

- Der 2. und 3. Plutoniumzyklus wird mit geometrisch kritisch sicheren Pulskolonnen betrieben.

Die maximale Leistung ist daher auf 40 kg/d Plutonium begrenzt. Diese Leistung ist für den Normalbetrieb ausreichend, nicht jedoch zum Ausgleich betrieblicher Schwankungen, so daß allein aus betrieblichen Anforderungen eine zweite Einheit installiert werden muß.

Für eine Leistungssteigerung ist gegebenenfalls eine 3. Einheit zu installieren, für die bauliche Vorsorge getroffen wird. Beide Einheiten sind völlig unabhängig betreibbar.

- Uran und Plutonium werden in die jeweils vom Abnehmer gewünschte Form überführt. Da eine sichere Lagerung der Nitrate in größerem Umfang aus Kosten- und Sicherheitsgründen nicht praktikabel ist, muß zur Sicherung des ungestörten Wiederaufarbeitungsbetriebes die Konversion zu einem festen Endprodukt ins Konzept eingeschlossen werden. In unserem Fall sind dies

PuO_2 , UF_4 bzw. UO_3 für abgereichertes Uran.

- Abfälle entstehen in fester, flüssiger und gasförmiger Form. Sie werden bis zur Überführung ins Endlager (nach entsprechender Vorbehandlung)

a) nur zwischengelagert wie

BE-Strukturmaterialien

Jodfilter

Krypton nach der Abtrennung

evtl. Tritium

b) konzentriert (unter Rückführung der gereinigten Fraktion) - wie hoch-, mittel- und schwachaktive flüssige Abfälle - und danach zwischengelagert

c) verascht und betoniert - wie brennbare Festabfälle - und zwischengelagert

d) kompaktiert und gegebenenfalls betoniert - wie nicht brennbare Laborabfälle, Filter usw.

- Die Endbeseitigung der Abfälle und deren Aufbewahrung fallen unter Bundeszuständigkeit. Konditionierung und Verfestigung für ein Endlager oder langfristiges „engineered storage“ sind daher in dieser Stufe des Industriekonzepts nicht enthalten. Die entsprechenden Arbeiten sind jedoch ebenso wie andere mit dem Standort zusammenhängende Aktivitäten soweit vorangetrieben, daß eine Anpassung des Industrieprojekts an die sich aus der Endbehandlung ergebenden Forderungen umgehend erfolgen kann.

Welchen technischen Stand hat nun dieses Industriekonzept für die Bundesrepublik heute erreicht ?

Zuerst sollte zum Verfahren gesagt werden, daß

die technologische Durchführbarkeit aller im Konzept vorgesehenen und für die Wiederaufarbeitung notwendigen Verfahren heute an verschiedenen Stellen soweit erprobt ist, daß mit der Übernahme dieser uns zugänglichen Technologien bei Berücksichtigung der laufenden Programme URG, GWK, PWA grundsätzlich mit keinem wesentlichen Betriebsrisiko zu rechnen ist. Lediglich die Methoden zur Abgasreinigung bedingen aus heutiger Sicht erhebliche Anstrengungen, um die für die BRD geforderten Grenzwerte einhalten zu können, die im Vergleich zum international praktizierten Rahmen eine wesentlich höhere Rückhaltung radioaktiver Abgase verlangen. Den in den nächsten Jahren zu erwartenden Optimierungen bei der Extraktion und der Abfallbehandlung trägt das Baukonzept der KEWA vom terminlichen Ausbauplan und den räumlichen Gegebenheiten Rechnung.

Für die Abfallbehandlung werden Verfahren vorgesehen, welche einen sicheren Betrieb erlauben. Sowohl aus Gründen der optimalen Lagerung wie auch der Kostenverminderung sind aber noch umfangreiche Entwicklungsarbeiten erforderlich, deren

Ergebnisse bei dem Ausbau der Anlage berücksichtigt werden sollen.

Zu den Apparaturen ist zu vermerken, daß das Konzept der großen Wiederaufarbeitungsanlage, welches auch heute noch mit 1400 tato etwa dem früheren aus wirtschaftlichen Erwägungen in Betracht gezogenem Durchsatz ähnelt, dieser Kapazitätsgrößenordnung jedoch aus wesentlich anderen Gründen entspricht. Einmal genügt diese Leistung etwa dem Bedarf an Entsorgungskapazität für die derzeit betriebenen und geplanten Leichtwasser-Kernkraftwerke der 80er Jahre, zum anderen aber zeigt eine kritische Bewertung der heute verfügbaren Kenntnisse über Leistungsfähigkeit, Zuverlässigkeit, Ausfall-, Reparatur- und Wartungszeiten und Lebensdauer, daß Komponenten wie Pulskolonnen, Mixer-Settler, Scheren-Auflöser heute bis zu Größen von entweder max. 4-5 tato oder max. 8-10 tato entwickelt werden können und daß weiterhin, je nach Beanspruchung, Verfügbarkeitserwartungen von teils 50 %, teils bis 80 % als gesichert gelten können.

Daraus ergeben sich bei optimaler Kombination der Verfahrensschritte 1400 tato gesicherter jährlicher Durchsatz über 15 Jahre. Dieses Konzept läßt infolge dieser Auswahlkriterien auch erwarten, daß im Laufe der Betriebszeit durchzuführende Nachtragsinvestitionen an der gleichen Anlage, ähnlich wie bei neuen chemischen Produktionsanlagen, zu gewissen Leistungssteigerungen führen.

Trotz der umfangreichen Berücksichtigung vorhandener Erfahrungen mit Maschinen und Apparaturen darf aber nicht übersehen werden, daß fast alle Einrichtungen erstmalig realisiert werden, und die damit verbundenen Erschwernisse in Kauf genommen werden müssen. Auch eine gute Erprobung im nicht aktiven Zustand wird nur einzuschränkende Aussagen liefern.

Für KEWA sind daher einmal eine umfangreiche Kalterprobung mit simuliertem Prozeß wie auch eine längere Anfahr- und Inbetriebnahmeperiode mit den unvermeidlichen Verbesserungen und Änderungen zur Beseitigung der Kinderkrankheiten unerlässlich. Zeiten bis zu vier Jahren für die Optimierung einzelner Komponenten ab Lieferung bis zur Leistungserbringung sind hier zu berücksichtigen.

Im Hinblick auf die Sicherheit ist anzumerken, daß

das Konzept alle heute geforderten Maßnahmen zur Erzielung einer höchstmöglichen Sicherheit vorsieht.

Insbesondere sind dies: Sicherheit der Umwelt im Normalbetrieb auch bei Störfällen wie Flugzeugabsturz und Erdbeben; Maßnahmen gegen störende Einflüsse wie Sabotage sind ebenfalls im Konzept enthalten.

Einrichtungen zur Minimierung der Umweltbeeinflussung wie eine Rückhaltung von Tritium und allen anderen Aktivitäten aus dem abzugebenden Wasser durch weitestgehende Rezyklierung und durch Rückhaltung von Jod und Krypton werden vorgesehen. Diese Einrichtungen zur Jod- und Kryptonrückhaltung werden allerdings noch umfangreicher Entwicklungs-, Erforschungs- und Verbesserungsmaßnahmen auch an der Großanlage bedürfen. Jedoch aufgrund der Tatsache, daß die Auslegungsrichtwerte für Kr-85 bereits heute die weltweite Belastung in weiterer Zukunft zugrunde legen und dementsprechend in den ersten Betriebsjahren nur unerhebliche Einflüsse auf die Umwelt vorliegen, sind trotz der zu erwartenden Anlaufschwierigkeiten bei der Abgasbehandlung keine echten Belastungsprobleme zu erwarten, die über das gesetzlich zulässige und sicherheitstechnisch vertretbare Maß hinausgehen.

Noch kurz darf ich auf den Standort eingehen:

Im Auftrag des für die Endlagerung zuständigen Bundes untersucht KFWA mehrere geeignete Standorte in der Bundesrepublik.

Aufgrund des Anlagenkonzepts für eine Wiederaufarbeitungsanlage mit voll integrierter Langzeit-Abfallbehandlung und autarker Infrastruktur werden an den Standort eine Palette von Anforderungen gestellt, die nur von wenigen, in der dicht besiedelten und hochindustrialisierten Bundesrepublik infrage kommenden Standortmöglichkeiten erfüllt werden können.

Ausgehend von einer geringstmöglichen Umweltbeeinflussung werden Ballungsgebiete, sowie bevorzugte Landschaftsschutz- und Erholungsgebiete ausgeschlossen.

Die Anlage selbst benötigt ein Gelände von einigen Quadratkilometern Fläche mit guter Durchlüftung und dem Potential der Endlagerung radioaktiver Abfälle im Nahbereich.

Unter Berücksichtigung eines nuklearen Brennstoffparks und der notwendigen Infrastrukturmaßnahmen ergibt sich ein Generalbebauungsplan für die wesentliche Geländeaufteilung, der für alle in Betracht kommenden Standorte gelten kann (Abb. 6). In diesem Plan wurden folgende Punkte berücksichtigt :

- Trennung in nicht zugängliches Werksgelände und frei zugängliche allgemeine Einrichtungen
- Trennung aktiver und inaktiver Betriebe
- Aktive Betriebe zur besseren Überwachung, geringfügigster Umweltbeeinflussung und Optimierung der aktivitätsführenden Leitungen möglichst geschlossen im Zentrum des Geländes

- Zentralwerkstatt und Lager möglichst nahe bei dem Betreiber, jedoch in der „inaktiven“ Zone
- Energiezentrale 2 und Rückkühlwerk 2 wegen der Forderung nach Redundanz auch im Falle eines Flugzeugabsturzes in 1500 m Entfernung von Energiezentrale 1
- Neben dem Dekontaminationsbetrieb Feststoffabfallager
- Im Anschluß an HAW- und MAW-Lager freie Fläche für die Errichtung der Verfestigungsanlagen und die Anbindung an das Kavernenfeld
- Frischwasserversorgung (Speicher, Wasserwerk) möglichst weit entfernt im Süd-Westen
- Großer Wasserspeicher außerhalb des Werksgeländes zur Einbeziehung in die Landschaftsgestaltung
- Klärwerk im Geländetiefpunkt, entfernt vom Kavernenfeld
- Kurze Wege zwischen Eingang, Zentralgebäude, Medizinischem Dienst und Kantine
- Trennung des Baustellenverkehrs und des betriebsbezogenen Materialverkehrs

Ein kurzes Wort noch zu Ausführung, Abwicklung und Betrieb

Die mit Planung, Bau, Inbetriebnahme und Betrieb verbundenen Abwicklungsprobleme sind zwar nicht projektentscheidend, dürfen in der Gesamtproblematik jedoch nicht außer Acht gelassen werden.

Heute gibt es in der BRD zwar umfangreiche Forschungs- und Entwicklungsmöglichkeiten; die für die Projektdurchführung notwendigen Maßnahmen fordern aber weitere Aktivitäten, für die heute erst in kleinem Umfang die personellen Voraussetzungen vorhanden sind.

Neben dem Aufbau des vom Betreiber und Bauherrn benötigten Personals innerhalb der nächsten acht Jahre auf etwa 1000 - 1200 Personen werden etwa 400 planende und ausführende Ingenieure neben den bei Lieferanten tätigen Spezialisten zeitweilig einzusetzen sein.

Weiterhin werden für Begutachtung, Vor-, Bau- und Abnahmeprüfung und Durchführung des Genehmigungsverfahrens ca. 60 Sachverständige einzusetzen sein.

Auf- und Abbau der notwendigen Kapazität stellen für alle Betroffenen eine erhebliche Belastung dar.

Kostenschätzung

Nach diesen technischen und organisatorischen Überlegungen soll noch etwas auf den Stand der wirtschaftlichen Überlegungen eingegangen werden.

Kritische Beurteilung der herkömmlichen Wiederaufarbeitungserlöse und die industrieübliche Vorsicht bei Inangriffnahme neuer Projekte dieser Größenordnung zeigten sich als nicht unberechtigt.

Investitionskosten liegen heute pro Tonne jährlicher Aufarbeitungsleistung bei einem Mehrfachen früher diskutierter Zahlen. Während im Foratom-Bericht^X von 1970 für eine 1500 t/jaht-Anlage ca. TDM 225/t jährliche Aufarbeitungskapazität^{XX} genannt wurde, rechnet KEWA heute mit 1,350 Mio DM/t jährliche Aufarbeitungskapazität ohne Brennelement-Lager, Energieversorgungsanlagen und Abfallendlagerkonditionierung. Diese Steigerung geht um einiges über das inflationsbedingte Verteuerungsmaß hinaus.

Gründe hierfür sind vor allem:

- Langfristige Verfügbarkeit einer Anlageneinheit gegenüber früher ausschließlich betrachteter Kostenoptimierung
- Erhöhung der Pufferkapazität zugunsten einer gesicherten Entsorgung
- Sicherheitstechnische Auflagen, die über den früheren Stand weit hinausgehen
- Umfassende Infrastrukturmaßnahmen bei Standortoptimierung im Hinblick auf die Umwelt
- Kostensteigerungen in überdurchschnittlicher Höhe für kern-technische Anlagen

Nach Abzug dieser verteuernden Faktoren liegen auch heute die Kosten in der Nähe alter Angaben, nämlich bei etwa vergleichbaren Investitionsausgaben bei 650 Mio DM, gegenüber einem mit einer Inflationsrate von 8 % jährlich hochgerechneten Wert aus der Foratomstudie von 435 Mio DM.

^X The future of reprocessing in Europe

^{XX} Preisbasis 1969

Da hier nun schon einmal Zahlen genannt werden, möchte ich, um Mißverständnisse zu vermeiden, erwähnen, daß es sich um eine Ermittlung für einen angenommenen Investitionsumfang auf der Basis 1975 bzw. 1969 ohne Zinsbelastung während der Bauzeit handelt.

Als Folge dieser gestiegenen Investitionskosten müssen zwangsläufig auch alle davon direkt abhängigen Kosten, wie Zinsen, Reparaturen, Abschreibungen, Strom usw. steigen.

Personalkosten für technische Dienstleistungen, aber auch für Abfallbehandlung, fallen heute stärker als früher ins Gewicht.

Risiko für eine industrielle Wiederaufarbeitung

Diese bisher genannten Investitions- und Betriebskosten kann man heute recht gut aufzeigen, bzw. die Einflußgrößen genau definieren und überwachen. Es darf aber nicht übersehen werden, daß zu diesen heute ermittelten Kosten neben inflationsbedingter Steigerung und bauzeitbedingter zusätzlicher Zinslast Mehrkosten durch heute unbestimmbare Ereignisse kommen können. Diese Imponderabilien bedeuten auch heute noch eine starke Beeinträchtigung einer echt industriellen Wiederaufarbeitung.

Damit wäre zusammenzufassen :

Nach diesen Überlegungen zeigt das KEWA-Konzept, daß

- die vorgeschlagene Anlage nach heutigem Stand der Technik und dem Stand der Entwicklungen funktionstüchtig erstellt und auch betrieben werden kann

- ein sicherheitstechnisches Risiko für die Umwelt und das Personal nach heutigem Kenntnisstand weitestgehend ausgeschlossen werden kann
- ein Verfügbarkeitsrisiko zur reibungslosen Entsorgung der deutschen Kernkraftwerke - notfalls durch weitere Investitionsmaßnahmen - in jedem Fall ausgeschlossen werden kann
- eine zuverlässige Ermittlung von Betriebskosten ohne einen erheblichen Risikozuschlag nicht möglich ist, wobei auch eine weitergehende technologische Erprobung und Optimierung und ein höherer Detaillierungsgrad in der Planung nichts Grundlegendes zur Klärung der Kostenfragen beitragen kann.

Die heute noch diskutierten technologischen Probleme sollten in dem uns zur Verfügung stehenden Zeitraum bei Forschung, Entwicklung, Pilotbetrieb in Karlsruhe, England und Frankreich nicht zuletzt mit der umfassenden Unterstützung des Bundesministeriums für Forschung und Technologie zu lösen sein.

Die bisherige sehr intensive Zusammenarbeit mit dem Projekt Wiederaufarbeitung und Abfallbehandlung hat das Konzept besonders im Hinblick auf die Abfallbehandlung, das Fließschema und die Reduzierung der Emissionen beeinflusst, so daß KEWA ein vom Verfahren her weitaus gesichertes Konzept erstellen konnte.

Die bisherigen Betriebsergebnisse der WAK haben entscheidend zum apparativen und baulichen Konzept beigetragen. Die in den nächsten Jahren in dieser Anlage vorgesehenen Arbeiten werden zusammen mit den zu erwartenden Forschungs- und Entwicklungsergebnissen des PWA weitere wichtige Kenntnisse für Bau und Betrieb der großen Anlage liefern können, aber auch noch müssen.

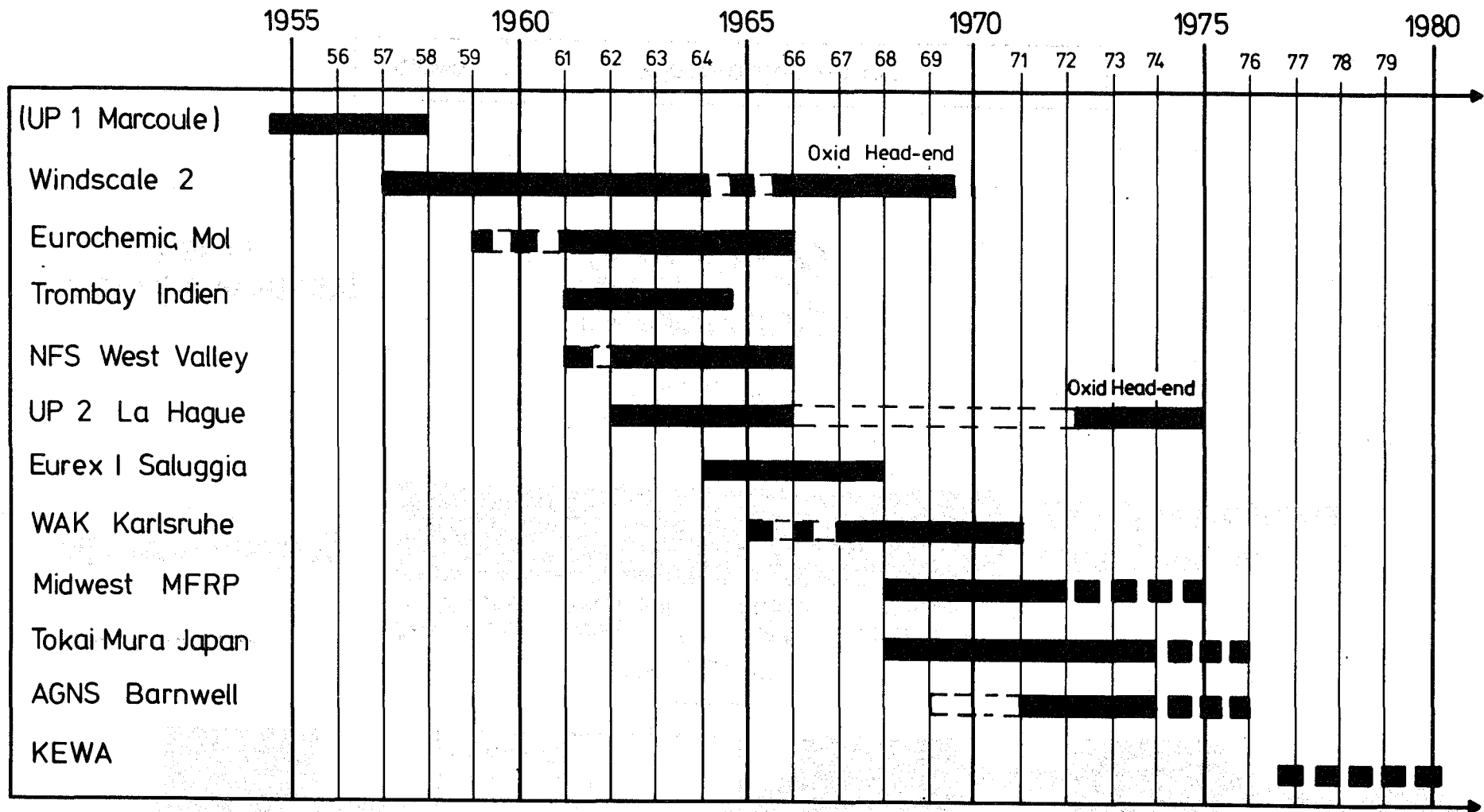
Als letzten, aber sehr wichtigen Beitrag zu dem vorgetragenen Konzept möchte ich aber noch auf den sehr guten Erfahrungsaustausch mit den Betreibern der englischen Anlage in Windscale und mit den Betreibern der Anlagen in Marcoule und La Hague hinweisen. Aus den sehr umfassenden Kenntnissen dieser Partner konnte KEWA vor allem verlässliche Aussagen über Maschinen und Apparate im Großanlagenmaßstab erhalten.

Darüber hinaus wird KEWA in der Lage sein, alle weiteren Arbeiten in enger Zusammenarbeit mit den Planern der neuen großen englischen Anlage in Windscale und den Betreibern des jetzt in Betrieb gehenden Chop-leach und Extraktionsteils von La Hague auszuführen.

Auf der Basis dieser umfassenden Forschungs-, Betriebs-, Planungs- Bau- und Inbetriebnahmeergebnisse sind wir heute überzeugt, daß das für das Bauprojekt gestellte Ziel, soweit es von den technischen Voraussetzungen abhängt, erreicht werden kann.

Abbildungsverzeichnis

- Abb. 1 Errichtung ziviler Wiederaufarbeitungsanlagen
- Abb. 2 Wiederaufarbeitung Verfahrensschritte
- Abb. 3 Auflösung und Extraktion
- Abb. 4 Wiederaufarbeitungskapazität (in Abb. 2 enthalten)
- Abb. 5 Brennelement-Lager-Konzept
- Abb. 6 Generalbebauungsplan



KEWA Errichtung ziviler Wiederaufarbeitungsanlagen
(Baubeginn - 1. heiße Inbetriebnahme)

Abb. 1

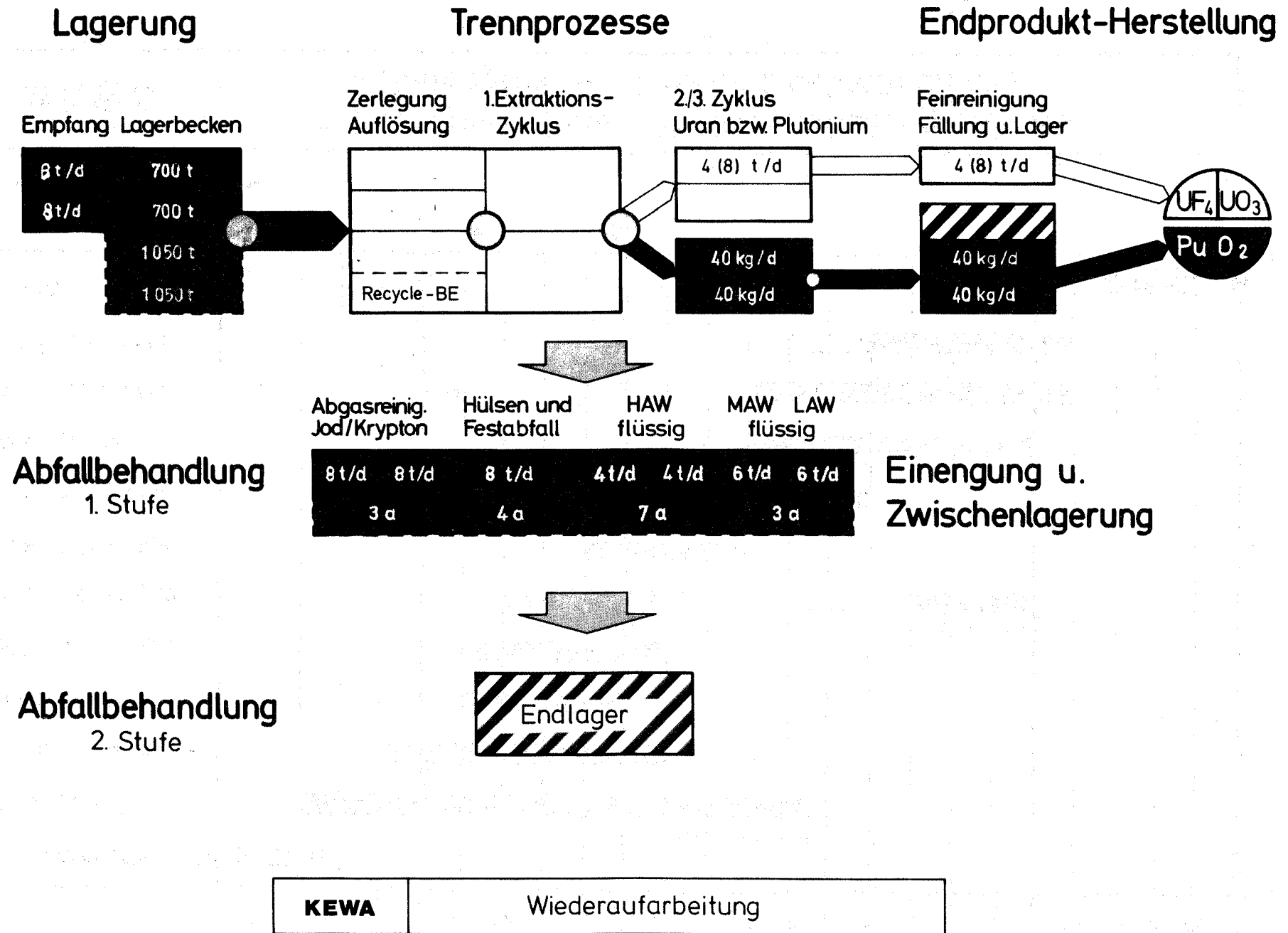


Abb. 2

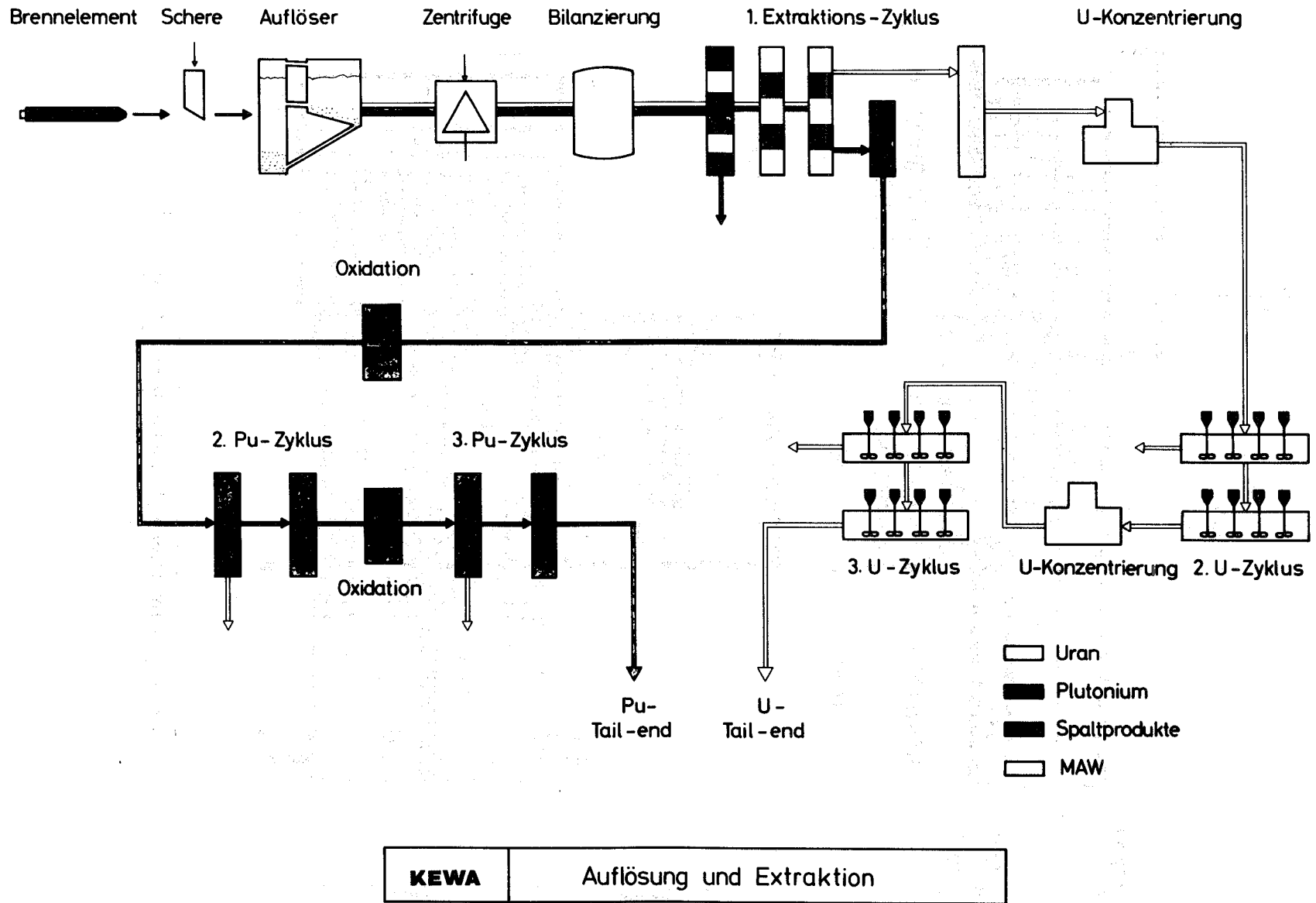
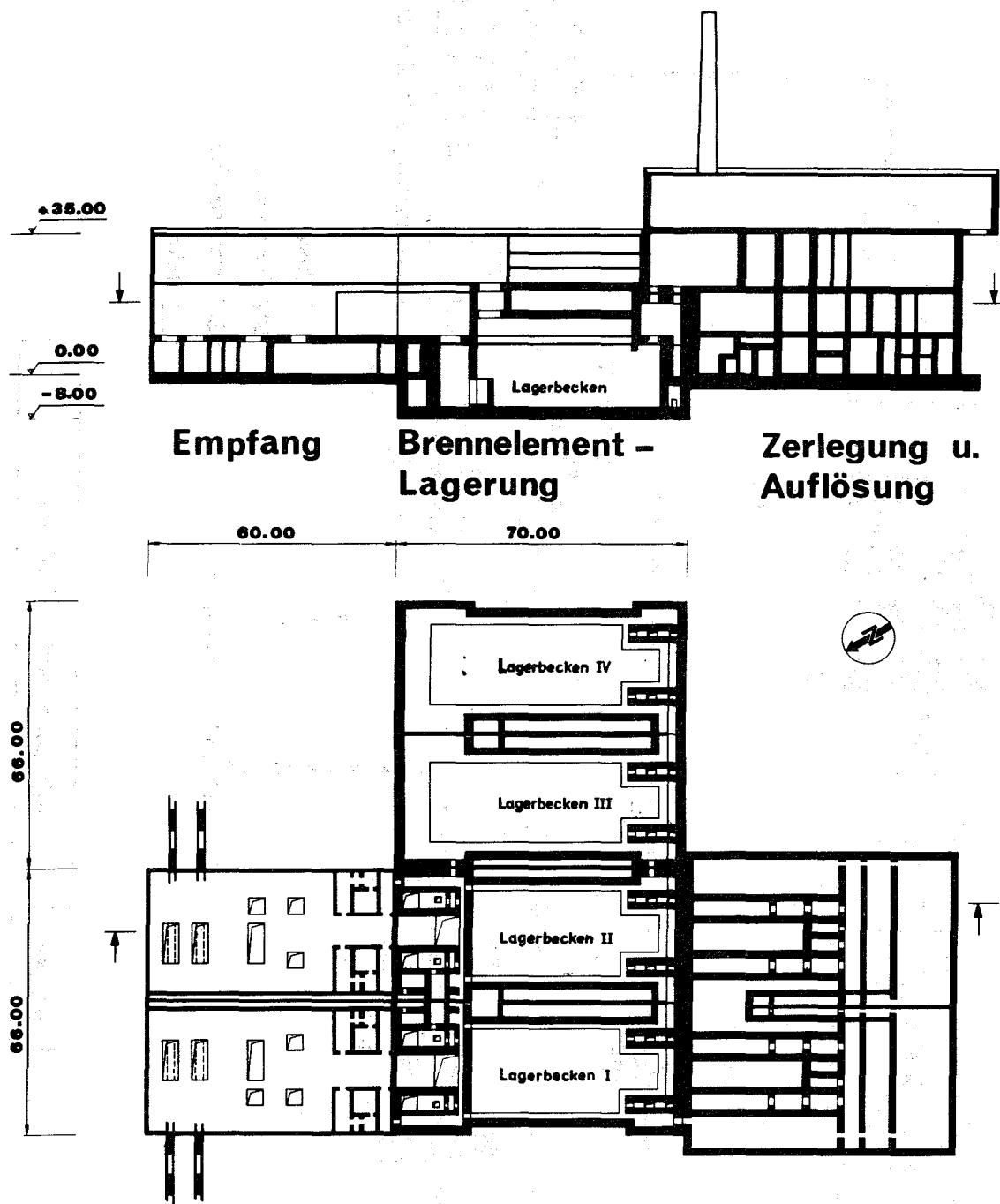


Abb. 3



KEWA	Brennelement - Lagerbeckenkonzept
-------------	--

Abb. 5

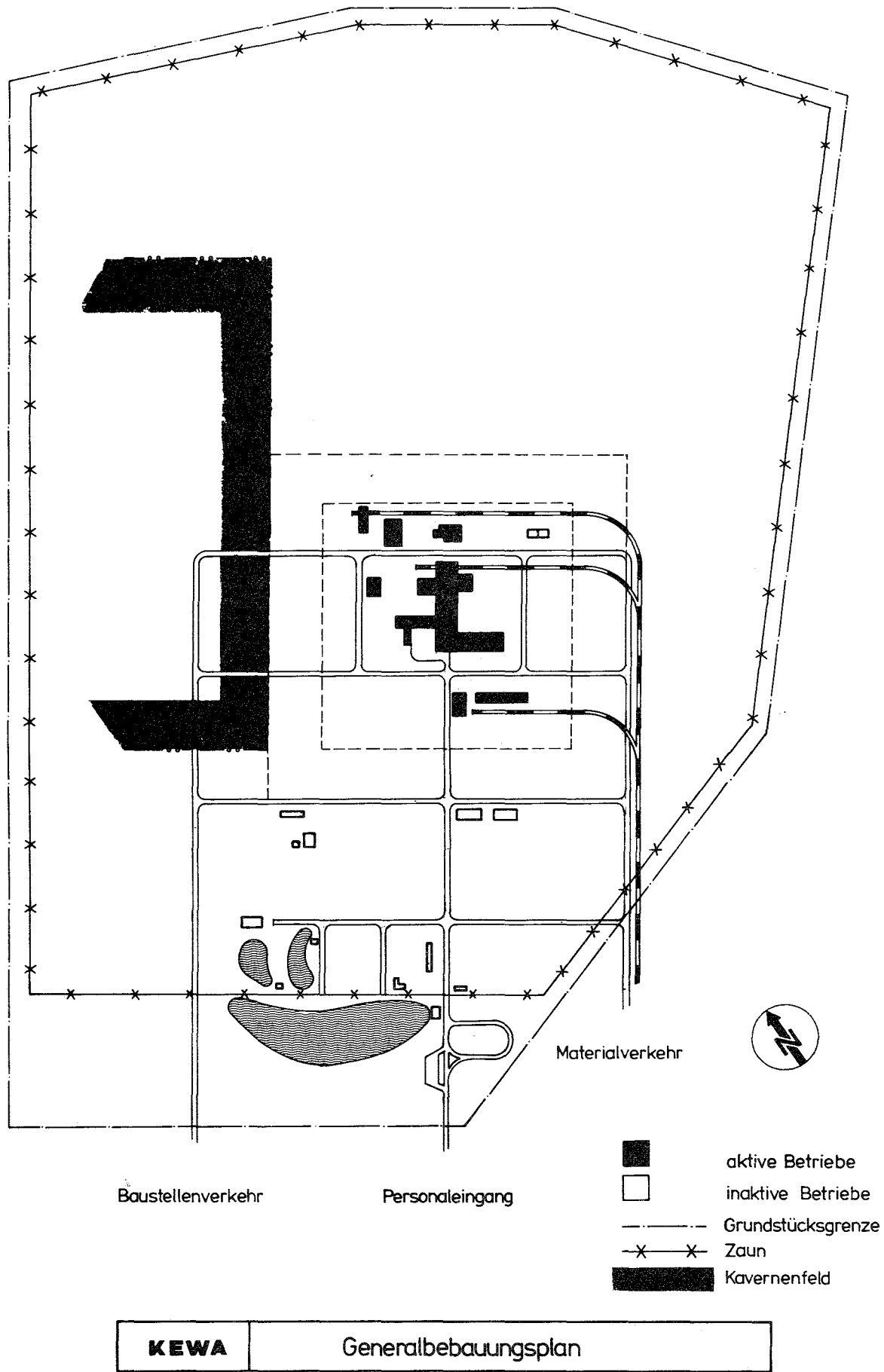


Abb. 6

BETRIEBSERFAHRUNGEN

BEI DER WIEDERAUFARBEITUNG VON LWR-BRENNSTOFFEN IN DER WAK

K. L. Huppert

Der Statusbericht Wiederaufarbeitung und Abfallbehandlung bietet die Gelegenheit, auch über die in der jüngsten Vergangenheit in der Wiederaufarbeitungsanlage Karlsruhe erzielten Fortschritte zu berichten und eine Bestimmung des technischen Standes bei der Wiederaufarbeitung von Oxidbrennstoffen in halbtechnischem Maßstab zu geben.

Als wir vor mehr als drei Jahren an gleicher Stelle über die "heiße Inbetriebnahme" der WAK berichteten - damals nach Durchsatz von 3 Tonnen FR 2-Brennstoff - war es uns klar, daß Probleme auf uns zukommen würden, deren Einzelheiten noch nicht voll erkannt werden konnten. Heute kann man sagen, daß die Probleme definiert und angesprochen sind und in vielen Fällen auch eine Lösung gefunden haben. Ein wesentlicher Teil der aufgetretenen Schwierigkeiten ist unmittelbar mit den hohen, und auch weiterhin steigenden Abbränden verbunden. Daneben ist die Minimierung der Abfallmengen im Hinblick auf die sichere und kostensparende Dauerlagerung als Aufgabe in den Vordergrund getreten. Zusätzlich machen sich heute die erhöhten Forderungen des Umweltschutzes bemerkbar, für die, wie zum Beispiel zur Rückhaltung des Jods, neue verfahrenstechnische Einrichtungen geschaffen werden müssen. Auch von seiten des Betriebes besteht das Bedürfnis nach Verbesserung der Verfügbarkeit und Betriebssicherheit der Anlage. Unter dem Sicherheitsaspekt wurde insbesondere darauf hingearbeitet, die Strahlenbelastung des Betriebs- und Wartungspersonals so niedrig wie möglich zu halten.

Bevor im weiteren Bericht auf die einzelnen technischen Verbesserungen und deren Auswirkung auf das Betriebsverhalten eingegangen wird, soll anhand der 1. Abbildung eine Übersicht über die bisher aufgearbeiteten Brennstoffe aus wassergekühlten Reaktoren gegeben werden.

Zu erwähnen sind die kräftig angestiegenen Abbrände bei den Druckwasserreaktoren, repräsentiert durch KWO. Sie erreichten hier bereits mehr als 24 000 MWd/t SM und werden in den Folgekampagnen 30 000 MWd/t überschreiten.

Bewährung des WAK-Konzeptes in der betrieblichen Praxis

Die zahlreichen in der WAK vorgenommenen Verbesserungen waren vor allem apparativer und verfahrenstechnischer Art, ohne daß an dem grundlegenden Konzept des PUREX-Verfahrens mit vorausgehendem mechanischem Aufschluss Änderungen erforderlich gewesen wären.

Beginnend mit dem Eingang der Brennelemente kann gesagt werden, daß die Anlieferung, Entladung und Einlagerung von Brennelementen in der WAK zu einer sauberen und sicheren Routineangelegenheit geworden ist. Um dieses zu erreichen, waren wesentliche Umbauten der ursprünglichen Installation erforderlich. Das System zum Füllen und Spülen der Transportbehälter mit vollentsalztem Wasser wurde mit selbstentwickelten Filtern ausgerüstet, auf denen die stark strahlenden Schlämme abgeschieden und gesammelt werden. Zur Verminderung der Strahlendosen des Entladungspersonals trug die vollständige Neuverlegung des Rohrleitungsnetzes bei, bei dem Tiefpunkte, die zur Ansammlung von strahlendem Material in den Leitungen geführt hatten, vermieden wurden. Eine Vakuumabsaugung dient zur raschen Beseitigung radioaktiver Rückstände in den Transportbehältern. Die Entladungen können daher heute mit minimalen

Personendosen, geringsten Gerätekontaminationen und ohne die Gefahr von staubförmigen Raumlufaktivitäten abgewickelt werden.

Die folgende Abbildung 2 zeigt die Annahme des ca. 60 Tonnen schweren Excellox-Transportbehälters, mit dem jeweils zwei Tonnen Brennstoff in der WAK angeliefert werden.

Betriebliche Verbesserungen konnten auch bei dem mechanischen Aufschluß der Brennelemente erzielt werden. Mit einer verbesserten hydraulischen Schere, die mehrere Stäbe zugleich zu schneiden erlaubt, kann die Scherleistung bis zu einer halben Tonne pro Tag angehoben werden. Obwohl dieses Aggregat kaum für die Übertragung in den Maßstab einer Großanlage geeignet ist, liefert es doch wichtige Aussagen über das Schneidverhalten der Messer und des geschnittenen Materials.

Die wichtigsten betrieblichen Verbesserungen wurden im Bereich des eigentlichen chemischen Verfahrens und seiner Hilfsverfahren erreicht.

An dieser Stelle soll nochmals kurz das Prinzip des PUREX-Verfahrens in Erinnerung gerufen werden (Abbildung 3):

Die wässrige, salpetersaure Brennstofflösung wird mit einer organischen und mit Wasser nicht mischbaren Flüssigkeit durch Rühren in Kontakt gebracht, wie im Stadium I zu sehen. Die organische Flüssigkeit besteht aus einem Phosphorsäureester, Tributylphosphat, verdünnt mit 70 % Kerosin. Uran und Plutonium lösen sich in dieser organischen Phase, mit der sie nach dem Absetzen abgezogen werden können, während die Spaltprodukte als radioaktiver Abfall in der wässrigen Phase zurückbleiben.

Man erkennt, daß die saubere Trennung der beiden Phasen essentiell für den ordnungsgemäßen Prozessablauf ist. Bereits während der zweiten Aufarbeitungskampagne 1971/72 mit VAK- und

KWO-Brennstoffen mußten wir feststellen, daß die ersten beiden Batterien für die Lösungsmittelextraktion im Ersten Extraktionszyklus (Abbildung 4) bei der Verarbeitung von mäßig hoch abgebrannten Brennstoffen hydraulische Störungen zeigten. Die beiden Phasen trennten sich unvollständig und die Meßsonden zeigten an, daß die Kammern durch Trennschichtniederschläge blockiert wurden. Eine ordnungsgemäße Produktausbringung war nicht mehr möglich.

Die Natur der Niederschläge konnte in Zusammenarbeit mit dem Institut für Heiße Chemie und Kollegen des französischen CEA schnell aufgeklärt werden. Es handelte sich um schwerlösliche, amphotere Verbindungen des Spaltelements Zirkon mit Zersetzungsprodukten des Lösungsmittels.

Da Eingriffe in das chemische System nicht ohne nachteilige Sekundäreffekte möglich waren, wurde ein Ausweg auf apparativem Wege gesucht. Es wurde eine neue Extraktionsbatterie, die sogenannte HA-Batterie Typ 2, eingebaut, deren Einbauten die Ansammlung von Niederschlägen weniger als diejenigen der früheren Batterie begünstigten. Insbesondere sind die 15 Stufen dieser Batterie mit Airlift-Fördereinrichtungen versehen, die Schlämme schon bei ihrer Entstehung über die wässrigen Wehre und damit zum hochaktiven Abfallstrom befördern. Abbildung 5 zeigt die Batterie vor ihrem Einbau in der WAK; die Antriebsmotoren sind noch nicht aufgesetzt. Auf der Abbildung erkennt man die dünneren Rohrleitungen für die internen Airlifts für das Fördern der Trennschichtniederschläge sowie die dickeren Spülanschlüsse der einzelnen Extraktionsstufen.

Mit der neuen Einrichtung wurden Brennstoffe der Reaktoren HDR, VAK, MZFR und KWO mit gutem Erfolg aufgearbeitet. Das bessere Betriebsverhalten zeigte sich deutlich an den geringeren Verlusten bei der Aufarbeitung, wozu die Mengenbilanz der KWO-II-Kampagne als Beispiel dienen kann (Abb. 6):

Mengenbilanz KWO-II-Aufarbeitung

	SP-Aktivität %	Plutonium %	Uran %
Ausgelaugte Hülsen	(0,3)	(0,3)	(0,3)
Spaltproduktkonzentrat	(99,6)	0,34	0,41
Mittelaktive Abfälle	0,09	0,25	0,30
Plutonium-Produkt	10^{-6}	99,11	0,1
Uran-Produkt	10^{-4}	10^{-7}	98,89
	100,0	100,0	100,0

Die rechts neben den Strömen angegebenen Prozentzahlen geben an, wie sich die Spaltproduktaktivität, Plutonium und Uran auf die einzelnen Prozess-Ströme verteilen. Trotz des Abbrandes von ca. 24 000 MWd/t SM blieben die hydraulischen Störungen aus. Dadurch verringerten sich die Uran- und Plutoniumverluste in den Abfallströmen deutlich. Zum Beispiel betragen die Plutoniumverluste im hochaktiven Abfall (Spaltproduktkonzentrat) 0,34 % und im mittelaktiven Abfall (MAW) 0,25 %; das sind Verlustzahlen, die für höher abgebrannte Oxidbrennstoffe als vorzüglich gelten können und die auch im Hinblick auf die spätere Waste-verfestigung günstig sind.

Wir möchten jedoch mit dem neuen Extraktor Erfahrungen im Dauerbetrieb sammeln, insbesondere mit kurz gekühlten Brennstoffen, bevor wir ein abschließendes Urteil abgeben können.

Abfallminimierung

Weitere Modifikationen, die an der Anlage vorgenommen wurden, können unter der Zielsetzung der Abfallminimierung gesehen werden.

Die hochaktiven Spaltproduktlösungen lassen sich nach unseren jüngsten Erfahrungen bei der Konzentrierung im ersten Wasteverdampfer (1 W) der WAK auf ein Restvolumen von 750 Liter pro Tonne einengen. Bei niedriger abgebrannten Elementen, wie im Falle des MZFR mit 6000 MWd/t SM, kann das Volumen wesentlich weiter reduziert werden. Durch kontrollierte Verdunstung bei der Lagerung dieser Flüssigkeiten erfolgt eine weitere Konzentrierung, die das spezifische Wastevolumen auf rund 500 Liter/Tonne Brennstoff reduziert. Die hohen Konzentrationsfaktoren konnten erst erreicht werden, nachdem im gesamten Verlauf des Verfahrens der Zusatz von Fremdsalzen, wie z.B. Natriumnitrit für die Pu-III-Oxidation, konsequent ausgeschlossen worden war.

Die mittelaktiven flüssigen Abfälle (MAW), die rund ein Promille der nach der Auflösung vorhandenen Gesamtaktivität enthalten, werden nach wie vor per Tankwagen an die Dekobetriebe des Kernforschungszentrums abgegeben. Die spezifische Aktivität dieser Lösungen konnte deutlich unter den maximalen Planwert von 0,1 Curie/Liter gesenkt werden. Dazu trug unter anderem eine weitere Modifikation an der bereits erwähnten HA-Batterie bei, die es gestattet, das verbrauchte und durch hochaktiven Waste kontaminierte Kerosin der Raffinatwäsche dem Lösungsmittelstrom zur Ergänzung von Verlusten zuzuschlagen.

Zu dem Komplex der Wasteminimierung gehört auch die optimale Rückführung von Chemikalienströmen in den Prozess, die sonst als Abfälle behandelt werden müssten. Zu erwähnen sind hier:

- die erheblich verbesserte Reinigung der aus Prozessabfällen zurückgewonnenen Salpetersäure von radioaktiven Verunreinigungen. Zu diesem Zweck war der 3 W-Säureverdampfer umgebaut und mit einem Aerosolabscheider versehen worden,

- die Wiederverwendung eines größeren Teils des tritiumführenden Abfallwassers zum Ansetzen und Verdünnen von Prozesschemikalien, wodurch die Menge der schwachaktiven Abfälle (SAW) reduziert werden konnte,
- die Wiederverwendung der jodhaltigen Dünnsäure aus den Wäschern der Abgasreinigung bei der Auflösung des Brennstoffs,
- die Rückführung von verbrauchtem Lösungsmittel, TBP-30, aus dem zweiten Plutoniumzyklus in den ersten Extraktionszyklus, womit die Plutoniumverluste verringert wurden. Da vorher diese Plutoniumanteile in den mittelaktiven Abfällen aus der Lösungsmittelwäsche in Erscheinung traten, wurde zugleich auch die Alphaaktivität des MAW verringert.
- Schließlich ist zu erwähnen, daß die gesamten Kerosinabfälle, die etwa 800 Liter pro Tonne aufgearbeiteten Brennstoffs betragen, nach ihrer Reinigung in den ADB-Betrieben vollständig in die WAK zurückgeführt werden.

Alle aufgezählten Verbesserungen, die noch durch weitere Beispiele ergänzt werden könnten, tragen dazu bei, die Abfallmengen aus der Wiederaufarbeitung zu vermindern, und ihre Zusammensetzung im Hinblick auf die Lagerfähigkeit für die Endlagerung zu verbessern. Sie tragen damit auch zur größeren Wirtschaftlichkeit der Wiederaufarbeitung bei.

Emissionskontrolle

Bei den in jüngster Zeit in der WAK vorgenommenen Maßnahmen zur Erweiterung der Abgasreinigung stehen weniger unmittelbare betriebliche Belange, als vielmehr behördliche Forderungen hinsichtlich der Emissionsbegrenzung von flüchtigem Spaltjod im Vordergrund. Während Jod-131 wegen ausreichenden Kühlzeiten bisher keine Rolle gespielt hat, wurde im Jahr 1975 erstmalig Jod-129 mit einer Abgaberate von 40 m Curie im Abluftplan der WAK spezifiziert. Unsere Messungen, ausgeführt von der Abteilung ASS der GfK mittels Neutronenaktivierungsanalyse, haben gezeigt, daß sich diese verschärften Forderungen, insbesondere für das Jahr 1976 mit nur 10 mCi Jod-129, mit den bisher eingebauten Waschtürmen nicht einhalten lassen.

Aus diesem Grunde haben wir in den vergangenen Wochen eine neuartige Filtereinrichtung zur Rückhaltung von Jod aus den Auflöserabgasen eingebaut. Es handelt sich dabei um einen Festbettabsorber, den J. WILHELM und Mitarbeiter vom Labor für Aerosolphysik und Filtertechnik (LAF) entwickelt haben. Über Einzelheiten des Systems wird in einem Folgevortrag berichtet.

Wir beabsichtigen, das Jodfilter bei der jetzt beginnenden KWO-Aufarbeitung erstmals einzusetzen und erwarten einen Abscheidegrad von mehr als 99 Prozent.

Wir glauben, daß mit der Erprobung dieser Jodfilter ein wichtiger Beitrag für die Planung der 1500 jato-Anlage geleistet wird.

Betrieb und Strahlenschutz

Zu Beginn dieser Betrachtungen habe ich 40 Tonnen Brennstoff als bisher aufgearbeitet ausgewiesen. Dazu muß angemerkt werden, daß die Anlagenkapazität und -verfügbarkeit auch größere Durchsätze

erlaubt hätten. Zwei Gründe standen dem entgegen:

- Neben der Aufarbeitung von Brennstoffen auf kommerzieller Basis muß die Anlage für den Einbau und die Erprobung neuer Komponenten abgeschaltet werden. Über einige davon ist in den vorhergehenden Abschnitten berichtet worden. Die notwendigen Montagearbeiten einschließlich der erforderlichen Dekontamination beanspruchten einen entsprechenden Anteil der Arbeitszeit.
- Daneben war es oft schwierig, die beim Betrieb, insbesondere aber bei der Dekontamination anfallenden mittelaktiven Abfälle an die Dekobetriebe abzuführen. Bekanntlich sind hier wesentliche Verbesserungen durch die Fertigstellung des ELMA-Lagers und den Ausbau der ADB-Betriebe zu erwarten.

Wie sehen nun Strahlenschutz und Personenüberwachung in einer Anlage aus, bei denen der Umgang mit großen Aktivitätsmengen und im Rahmen der Komponentenerprobung sogar ständige Eingriffe in das aktive Prozess-System zum Betriebsprogramm gehören?

Die folgende Abbildung 7 zeigt die amtlichen mittleren Personendosen in den Jahren 1973 bis 1975. Durch ständige Überwachung des Betriebsablaufs und sorgfältige Vorbereitung von Interventionsvorhaben konnten die mittleren Monatsdosen von mehr als 100 mrem auf jetzt 40 - 50 mrem gesenkt werden. Diese Werte entsprechen nur 15 - 20 Prozent der zulässigen Jahresdosen und demonstrieren ebenfalls den Fortschritt bei der Wiederaufarbeitung bestrahlter Brennstoffe.

Als Resümée dieser Ausführungen möchte ich den Schluss ziehen, daß die WAK bereits eine Reihe wichtiger Erkenntnisse für die Planung späterer Großanlagen geliefert hat, und daß sie weiterhin ihre Eignung als ausgezeichnetes Testbett zur Erprobung neuer Verfahrensschritte und neuer Komponenten unter Beweis stellen wird.

Leopoldshafen, den 10. November 1975

Abbildungen:

- (1) Aufgearbeitete Brennstoffmengen
- (2) Entladung von Brennelementen
- (3) PUREX-Extraktionsprinzip
- (4) Verfahrensschema
- (5) Verbesserte HA-Extraktionsbatterie
- (6) KWO-II-Bilanz
- (7) Monatsdosen des Betriebspersonals

In der WAK aufgearbeitete Kernbrennstoffe

Jahr	Reaktor	Abbrand MWd/t	Uran t	Plutonium kg
1971	FR-2	11000	3,0	8,7
1971/72	VAK (I)	16700	1,0	5,2
1972	KWO (I)	16500	3,3	21,3
1972/73	MZFR	5000	17,1	48,3
1974/75	HDR	400	7,1	0,9
1975	VAK (II)	15500	1,5	7,5
1975	MZFR	6000	6,0	19,6
1975	KWO (II)	24500	1,4	10,9
	Summe	--	40,4	122,4

Abbildung 1

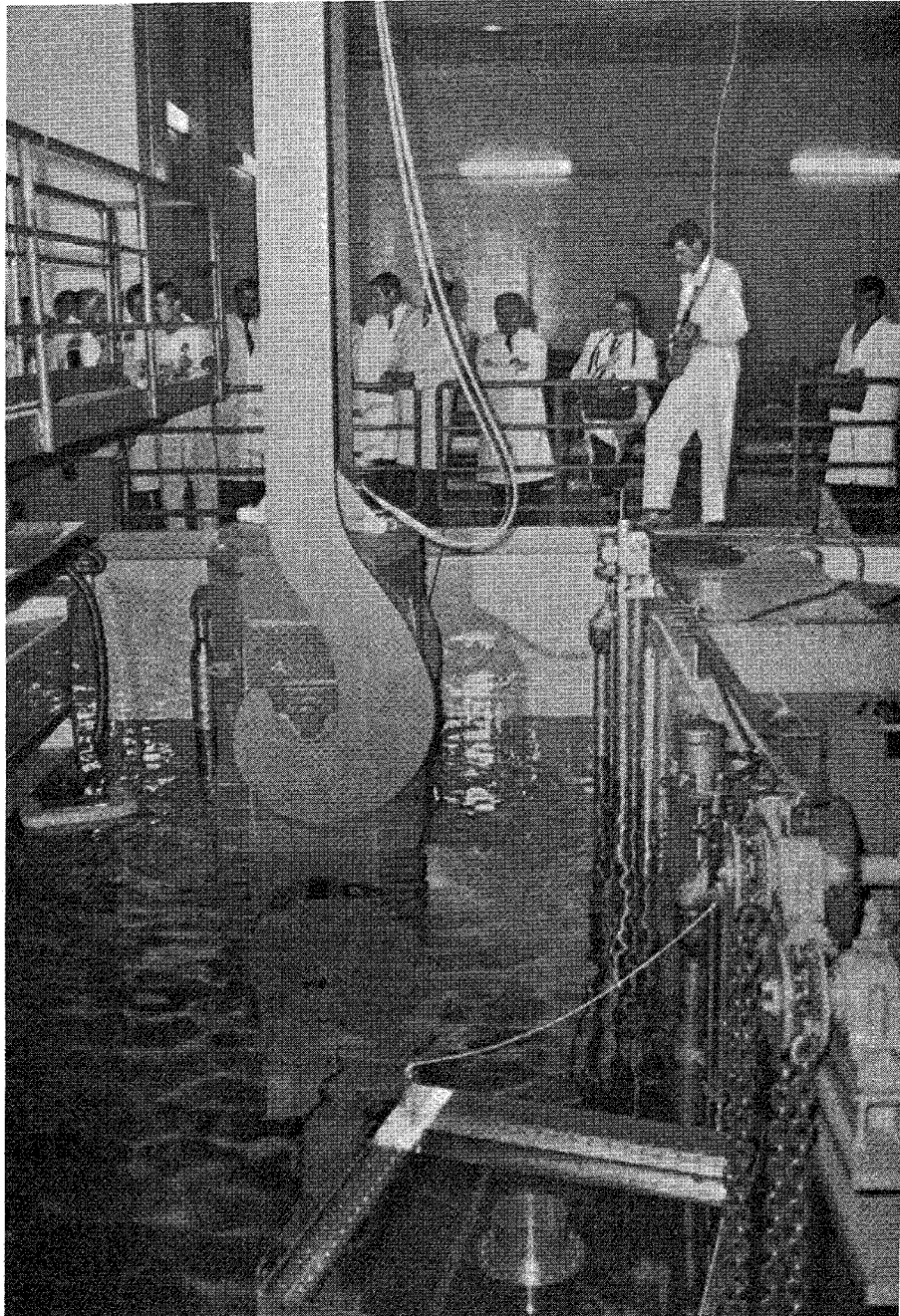
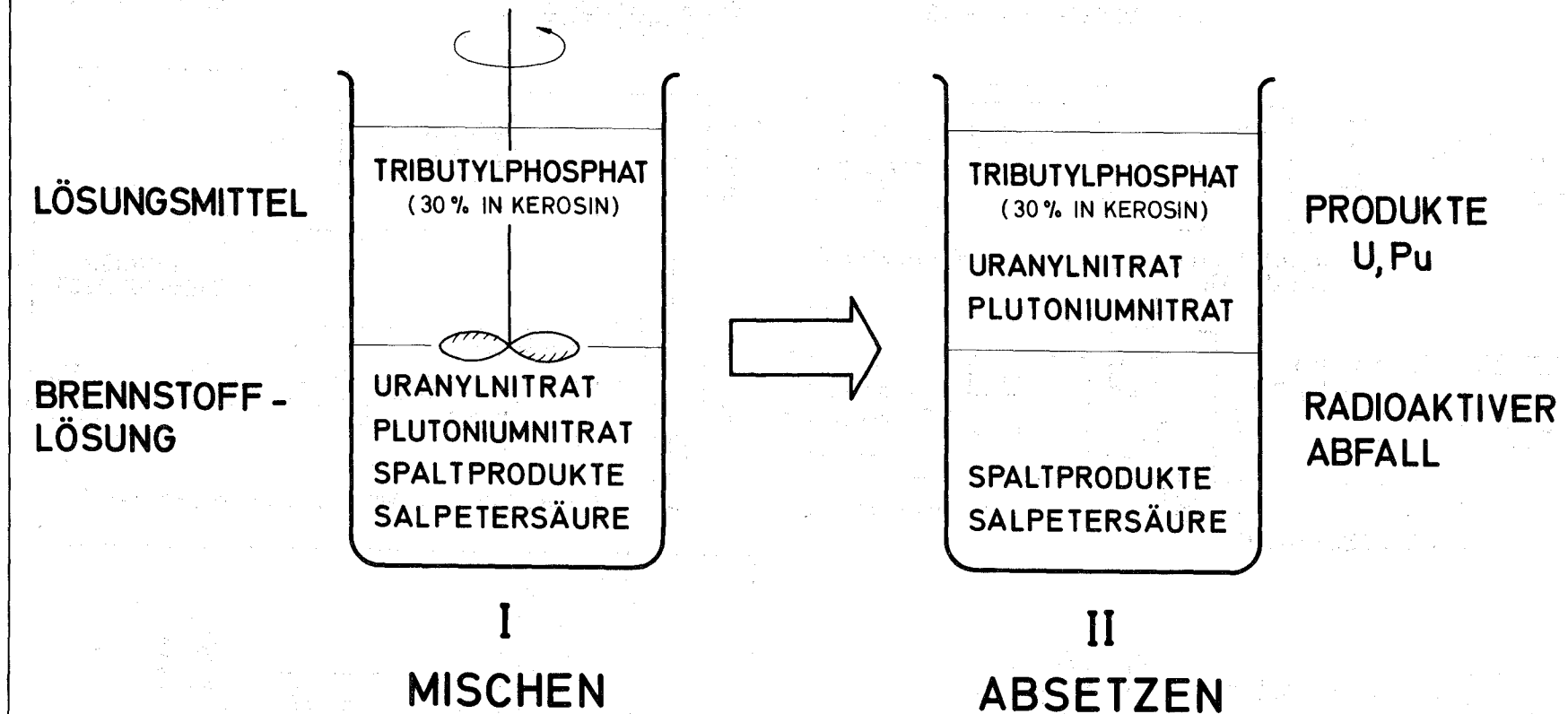


Abbildung 2: Entladung von Brennelementen

PUREX - VERFAHREN

PRINZIP DER EXTRAKTION



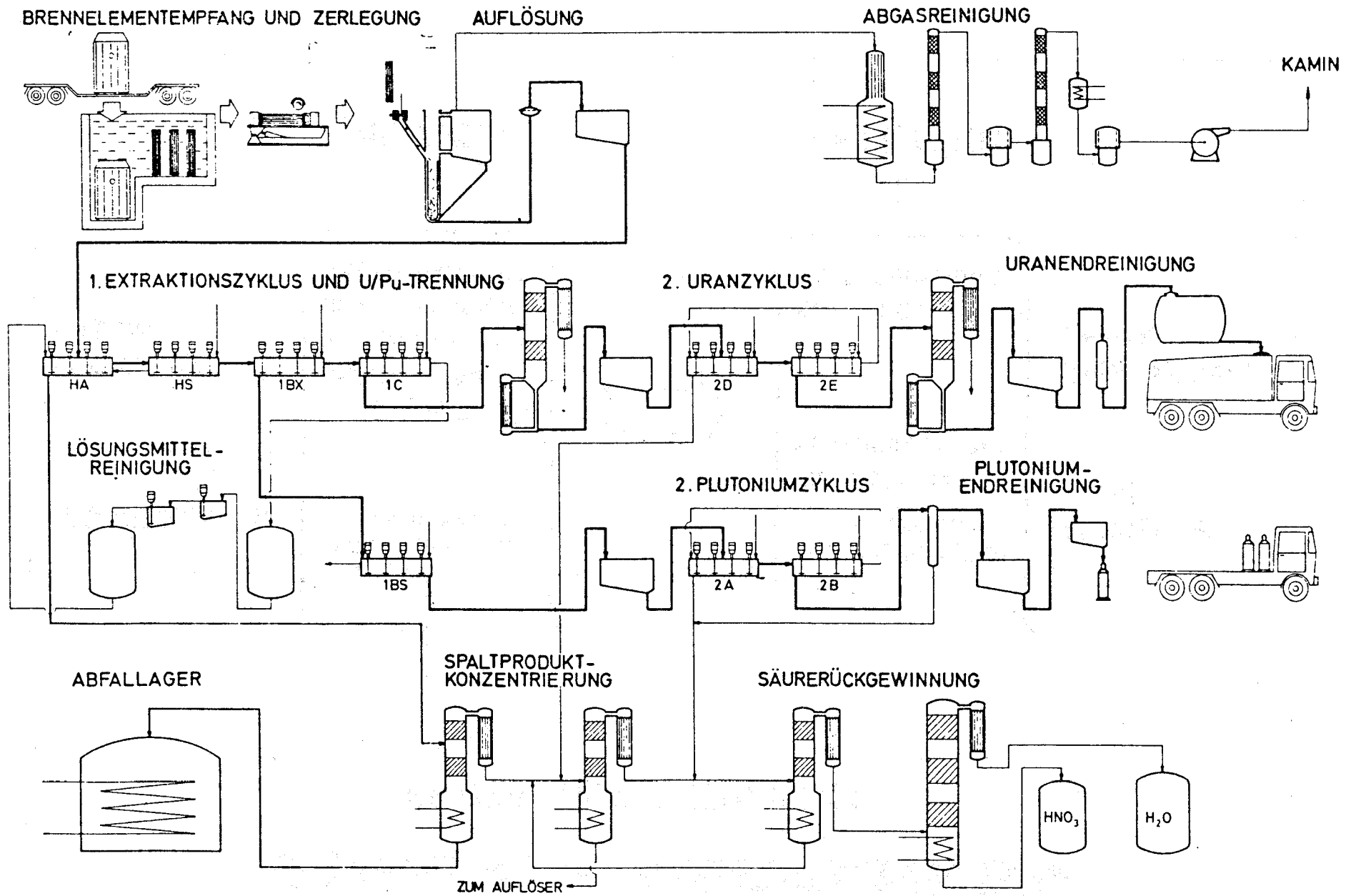


Abbildung 4: Verfahrensschema einer Wiederaufarbeitungsanlage nach dem PUREX - Verfahren
 Dargestellt am Beispiel der Wiederaufarbeitungsanlage Karlsruhe (WAK)

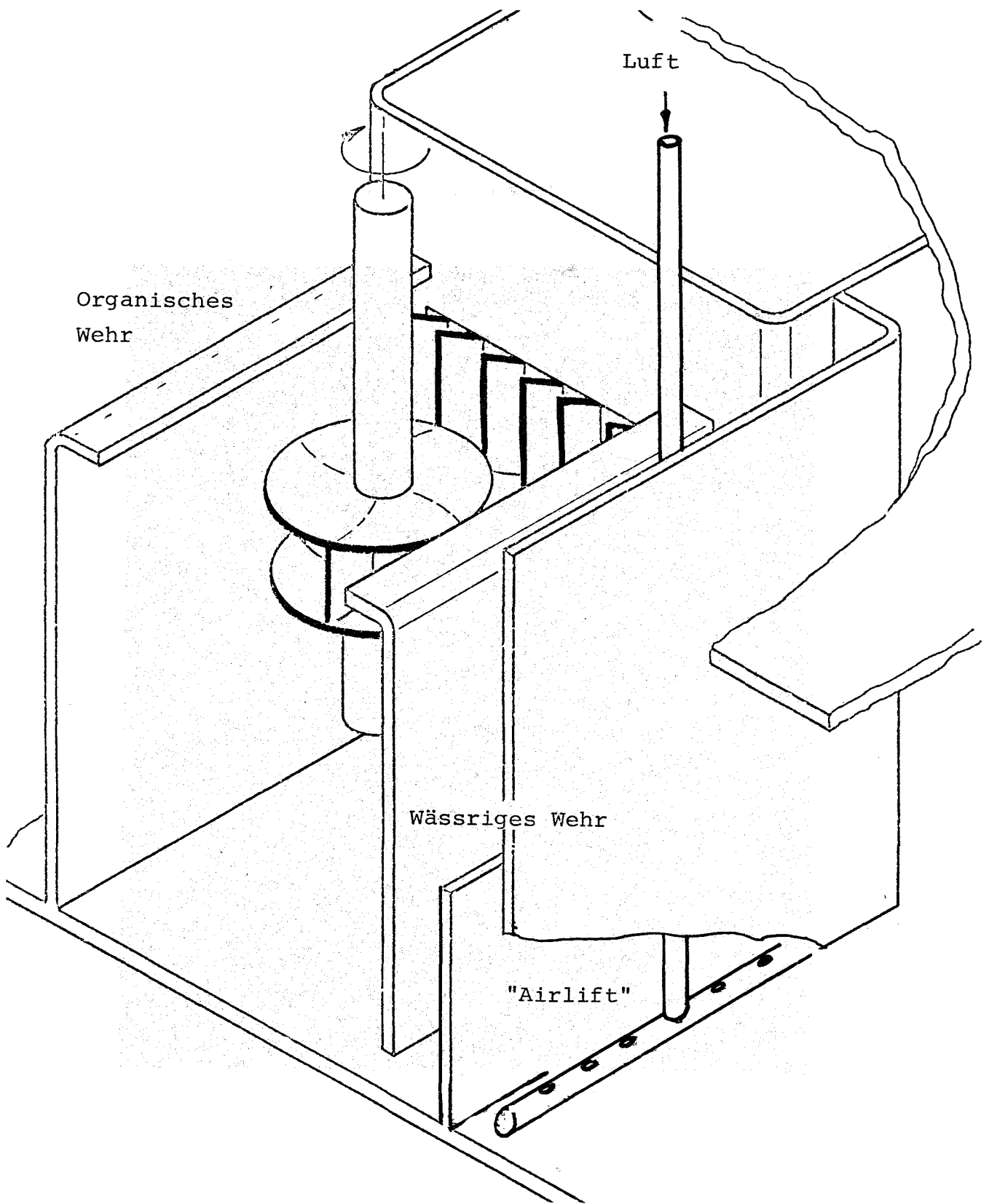


Abbildung 5: Verbesserte HA-Extraktionsbatterie

KWO-II - BILANZ

BESTRAHLTE BRENNELEMENTE

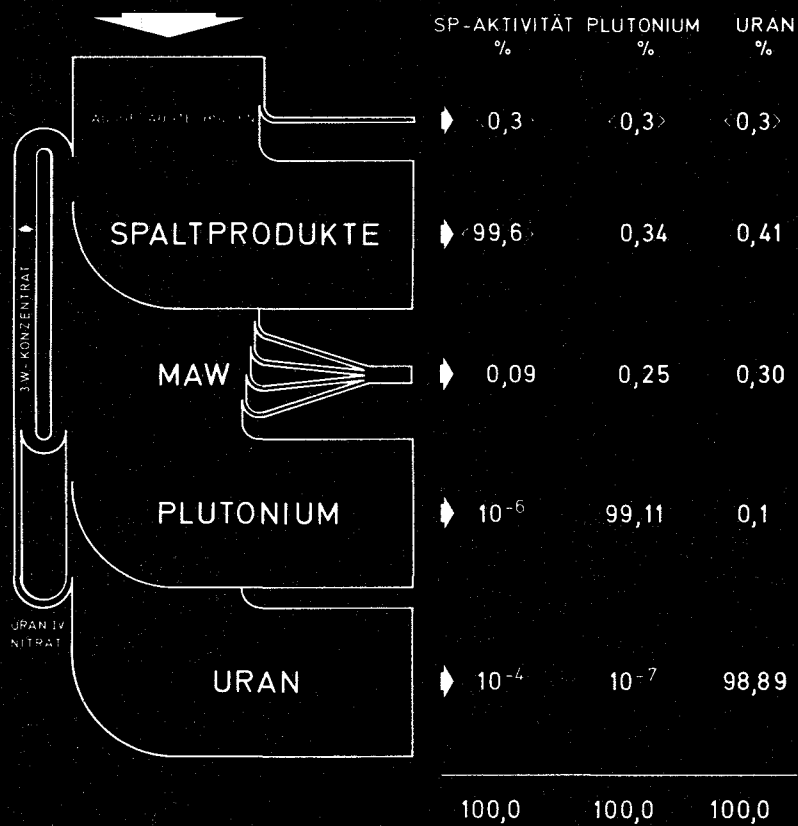


Abbildung 6

STRAHLENSCHUTZ

mrem
Monat

Mittlere amtliche Monatsdosis des
Betriebs- und Wartungspersonals der WAK
1973 - 1975

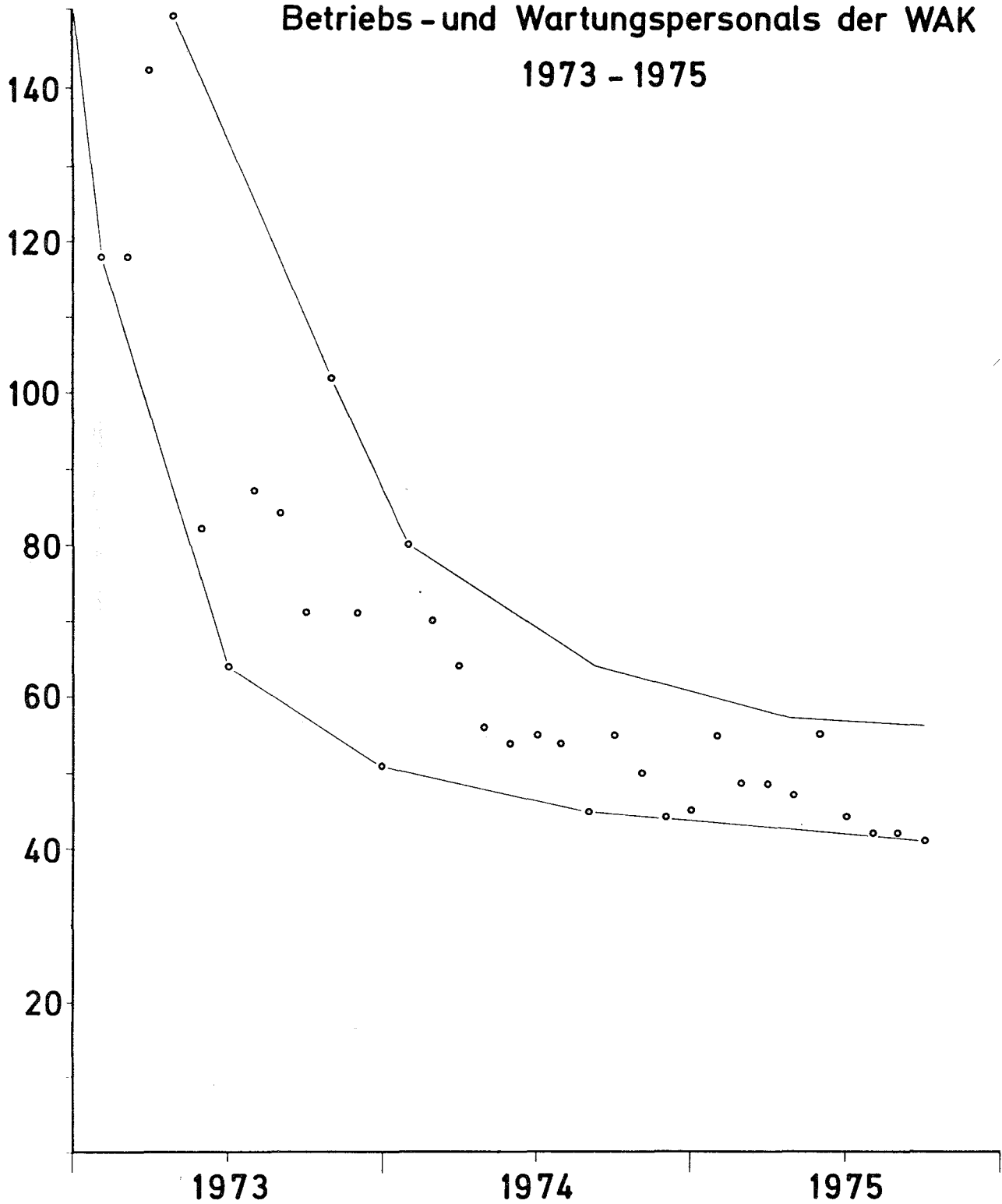


Abb. 7

Chemisch-Verfahrenstechnische Entwicklungen zum Wiederauf-
arbeitungsprozeß von 1965 bis 1975 im Institut für Heiße
Chemie

F. Baumgärtner

Das Projekt Wiederaufarbeitung und Abfallbehandlung ist 1974 zur Unterstützung der KEWA-Anlage gegründet worden. Für das Kernforschungszentrum Karlsruhe war das nicht der Beginn eines neuen Entwicklungsgebietes, sondern Ausweitung auf Projektbreite, was bis dahin Arbeitsgebiet eines einzelnen Instituts gewesen ist.

Schon in den 60-er Jahren war im Kernforschungszentrum Karlsruhe das Institut für Heiße Chemie gegründet worden mit der Aufgabenstellung, Forschungs- und Entwicklungsaufgaben zur Wiederaufarbeitung von Kernbrennstoffen durchzuführen; ursprünglich in Hinsicht auf den Schnellen Brutreaktor.

Damals in den 60-er Jahren standen drei Alternativen zur Wiederaufarbeitung von Kernbrennstoffen zur Diskussion:

1. Aufarbeitung in wässrigem Medium
2. Aufarbeitung durch Verflüchtigung
3. Aufarbeitung in Metall- oder Salzschnmelzen

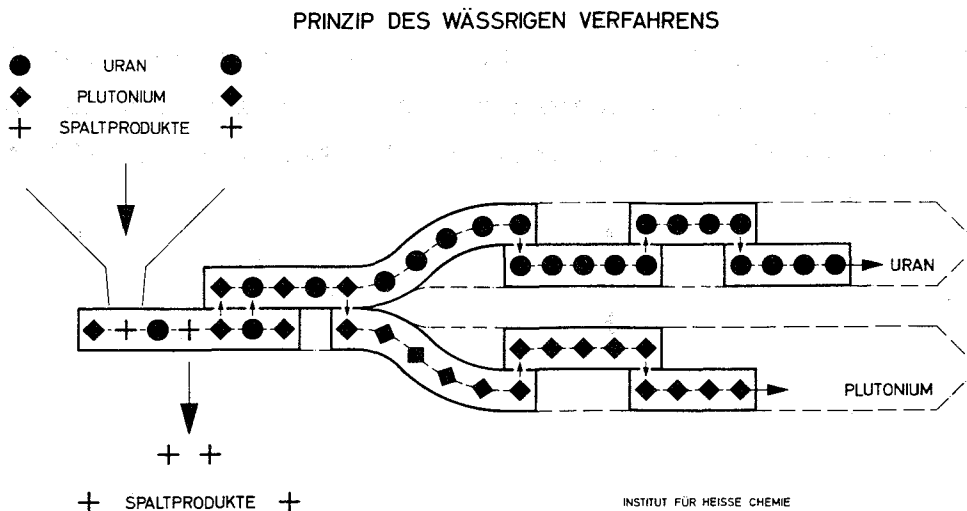
Seit 1965 wird hier in Karlsruhe aber nur noch auf dem Gebiet des wässrigen Verfahrens gearbeitet und für die anderen Alternativen sind seither keine größeren Mittel mehr investiert worden.

Zuerst ist deshalb die Frage zu beantworten, ob durch diese frühe Beschränkung auf das wäßrige Verfahren eine Entwicklungschance für die Wiederaufarbeitung in der Bundesrepublik verpaßt worden ist? Die Richtigkeit dieser frühen Entscheidung für das wäßrige Wiederaufbereitungsverfahren hat sich inzwischen durch den Entwicklungsgang der nichtwäßrigen Verfahren in anderen Kernforschungszentren und Fabrikanlagen bestätigt.

Schicksal der nichtwässrigen Aufarbeitungs-Verfahren.

USA Belgien Frankreich	ANL MOL CEA	Fluorid -Verflüchtigung	eingestellt 1970/74 eingestellt 1969/70 ?
USA	ANL JDAHO		eingestellt 1969 eingestellt
USA	GE	Aquafluor -Prozess	aufgegeben 1974

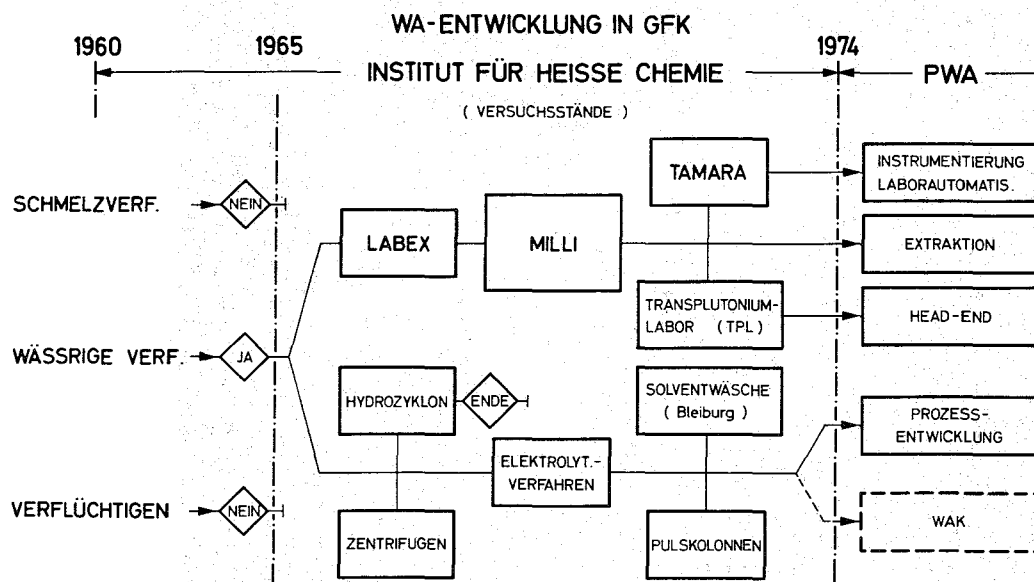
Das Prinzip des wäßrigen Wiederaufbereitungsverfahrens soll hier kurz in Ihre Erinnerung gerufen werden:



Der Brennstoff wird in Salpetersäure aufgelöst. Seine drei Komponenten Uran/Plutonium/und die Spaltprodukte werden dann sukzessive in drei Prozeßströme aufgetrennt: in den hochaktiven Waste = HAW, der gleich am Anfang abgespalten wird und in den Uran- und den Plutoniumstrom, von denen jeder für sich dann noch mehrere Reinigungszyklen durchläuft.

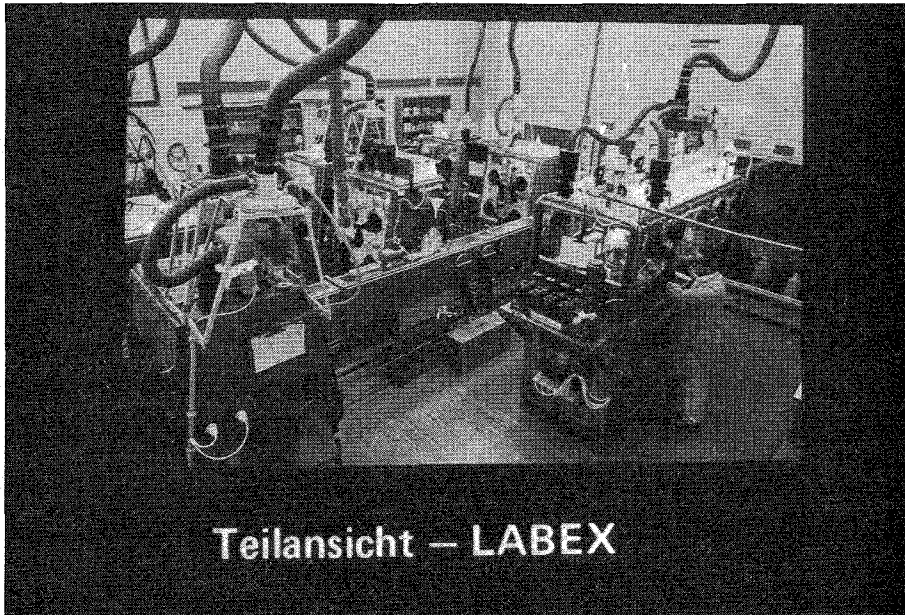
Der chemische Vorgang besteht dabei in einem wiederholten Hin- und Rücktransfer von Uran und Plutonium zwischen einer salpetersauren, wäßrigen Phase und einer petroleumähnlichen organischen Phase. Dieser Phasentransfer wird Extraktion genannt.

Die dabei auftretenden Probleme und Entwicklungsaufgaben haben einen chemischen und einen verfahrenstechnischen Aspekt. Entsprechend läuft seit 1965 im Institut für Heiße Chemie eine chemische und verfahrenstechnische Entwicklungslinie. Die auf beiden Linien erstellten größeren Einrichtungen sind in der folgenden Abbildung aufgeführt. Sie bildeten gleichsam das Stammkapital des Projekts Wiederaufarbeitung.

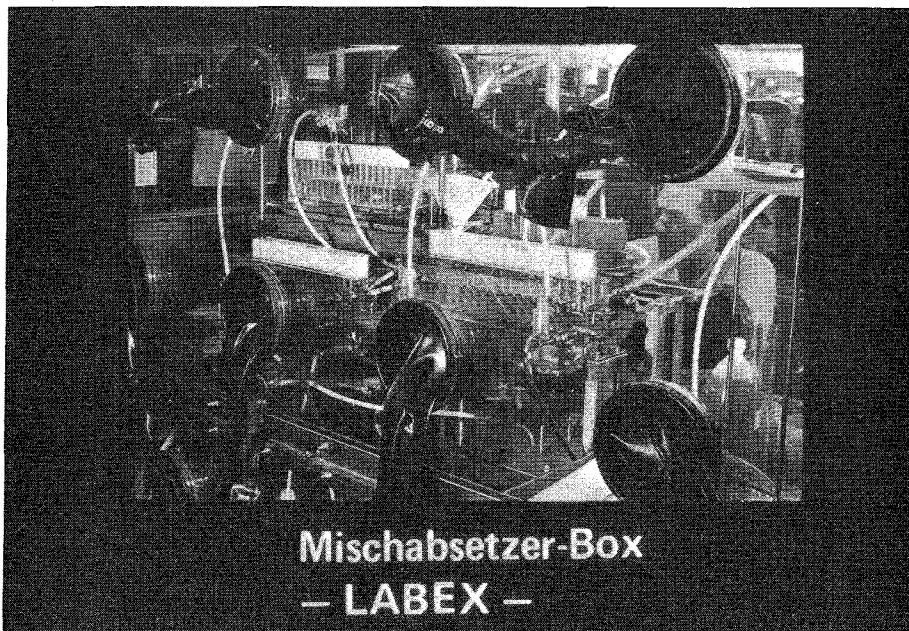


Ein kurzer Blick auf diese Anlagen:

LABEX ist eine Extraktionsanlage im Labormaßstab, geeignet für die Plutonium-Extraktion. Sie dient zur Ausarbeitung von Plutonium-Uran-Extraktionsfließschemas.



Teilansicht – LABEX



Mischabsetzer-Box
– LABEX –

MILLI ist eine hochabgeschirmte α -dichte Wiederaufarbeitungsanlage von 1 kg Tageskapazität mit drei Extraktionszyklen.



Bedienungsraum
— Milli —

Die Abschirmung reicht zur Verarbeitung von 10^5 Curie β - γ -Aktivität. Die Anlage ist geometrisch kritisch sicher konstruiert. Deshalb können in der MILLI auch extreme Extraktionsbedingungen mit Plutonium gefahren werden, die unter normalen Umständen zur Kritikalität führen würden.



1. Schritt: Auflöse-Zelle

2. Schritt: Mischabsetzer

3. Schritt: Probenahmesystem



4. Schritt: Extraktionszyklus



Planung und Konstruktion der Anlage wurden von Verfahrensingeni- euren und Chemikern des Instituts durchgeführt. Die Zeit von Planungsbeginn bis zum ersten hochaktiven Betrieb dauerte fünf Jahre. Seit 1971 ist Milli im hochaktiven Betrieb. Auf die Ergebnisse gehe ich noch ein.

Die wäßrige Wiederaufarbeitung ziviler Kernbrennstoffe hat drei zentrale Probleme:

1. Die verlustfreie Extraktion auch bei hohen Plutoniumgehalten.
2. Die geringe kritische Masse in wäßriger Lösung von 520 g und die niedrige Schwelle der kritischen Konzentration von rund 8 g Plutonium pro Liter.
3. Mögliche Prozeßstörungen durch Radiolyse aufgrund des hohen Abbrandes.

Die Kernprobleme der wässrigen WA

	IHCh-Entwicklungen
1. Plutonium Extraktion	LABEX, MILLI, ELKE
2. Kritikalität : 520 g Pu, 8g Pu/l	} Schnellextraktor } LM Wäsche
3. Radiolyse :	

Fließschemaoptimierung zur verlustfreien Plutoniumextraktion laufen in LABEX und MILLI. Eine weitere Entwicklung für diesen Zweck sind die elektrolytischen Verfahren.

Das Kritikalitätsproblem und das Radiolyseproblem ist ursprüng- lich mit der Entwicklung von Schnellextraktoren angegangen worden.

Der Grundgedanke dabei ist, technisch relevante Prozeßströme durchzusetzen, bei gleichzeitig möglichst kleiner Apparatedimension und minimaler Verweilzeit.

Der Hydrozyklon war der erste Schnellextraktortyp, der untersucht worden ist.

Er hätte den Vorteil geboten, ohne bewegte Apparateile auszukommen. Die Arbeiten zeigten aber, daß eine Apparatevergrößerung in technische Dimensionen beim Hydrozyklon weder technisch noch theoretisch durchgeführt werden kann.

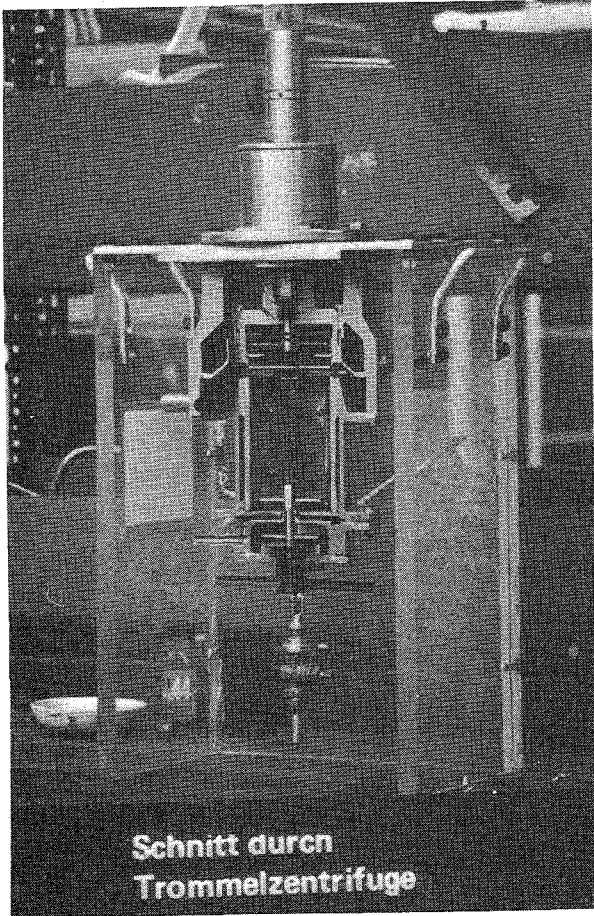
Die weitere Entwicklung konzentrierte sich deshalb auf den Zentrifugalextraktor. Bekannte Typen wie Luwesta und Podbielniak scheiden aus Kritikalitätsgründen für die Wiederaufarbeitung aus. Das Institut für Heiße Chemie entwickelte deshalb einen Extraktor nach dem Trommelprinzip (Abb., S. 9).



Gemeinsame Misch-Trennstufe
— Hydrozyklon —

Wegen seines Trommelrotors wird diese Entwicklung manchmal unrichtigerweise als Savannah-River-Zentrifuge bezeichnet. Unsere Entwicklung unterscheidet sich aber vom Savannah-River-Typ durch zwei wesentliche Merkmale

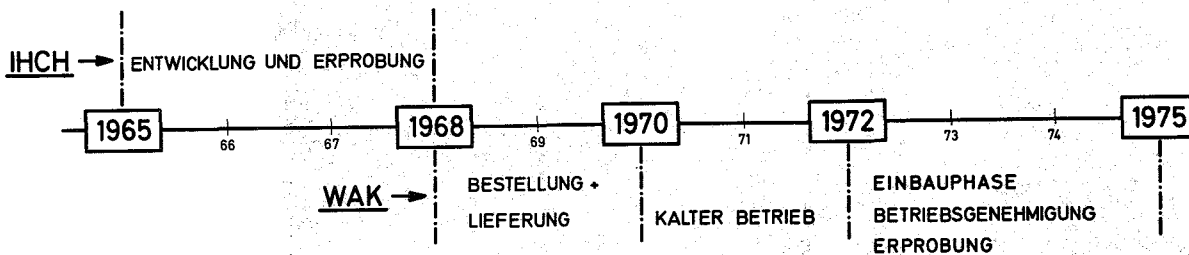
1. achsenfrei fliegend gelagerte Trommel und
2. dampfphasenfördernde Pump-Saugrührer.



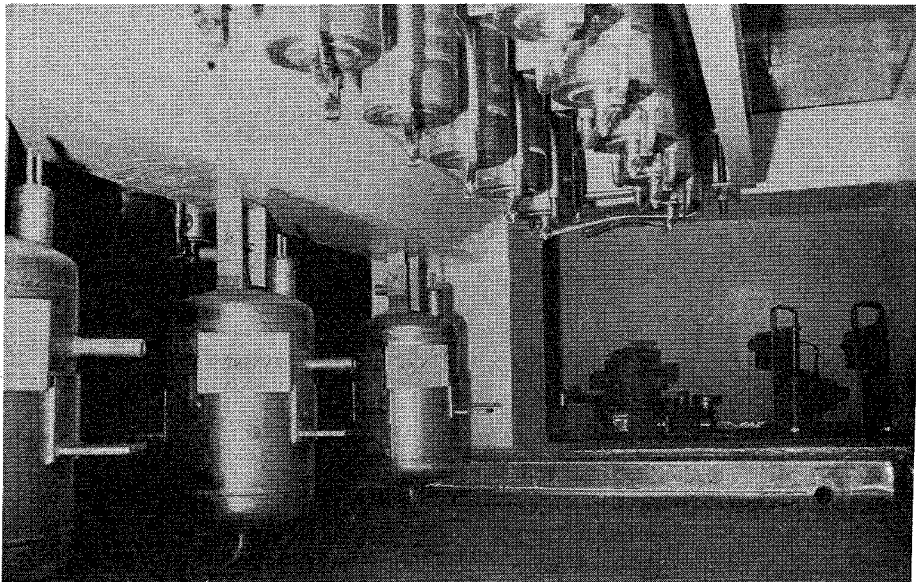
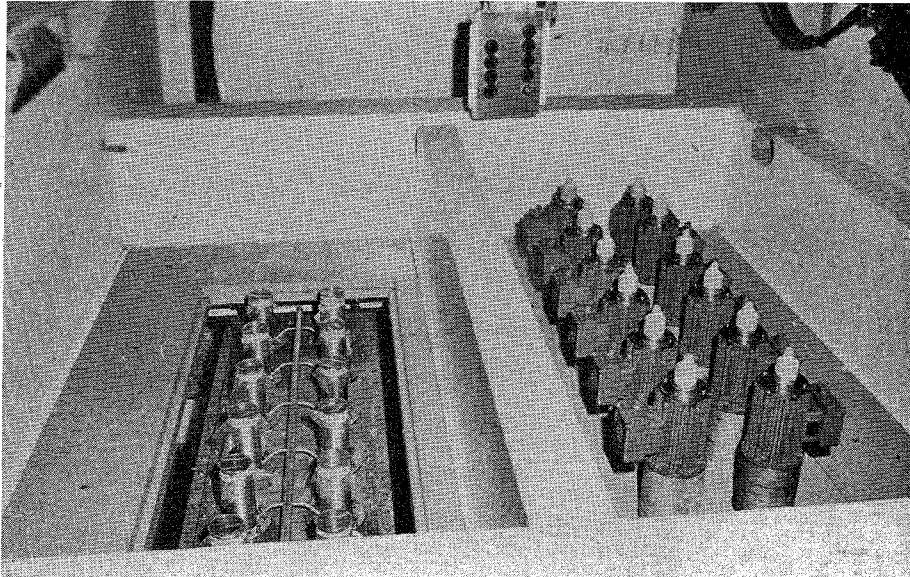
Beide Merkmale führen bei kompakter Bauweise zu höherem Durchsatz und kürzerer Kontaktzeit als die Savannah-River-Zentrifugen sie besitzen.

Eine 12-stufige Prototyp-Batterie mit 200 kg Tagesdurchsatz ist bereits 1970 im Institut fertiggestellt und im Uran-Betrieb getestet worden. Die Gesellschaft zur Wiederaufarbeitung (GWK) übernahm diese Entwicklung und erteilte 1971 den Bauauftrag für eine entsprechende WAK-Zentrifuge.

ZEITBLAU FÜR DIE ZENTRIFUGENENTWICKLUNG



Inzwischen ist die Zentrifuge geliefert, kalt getestet und in die WAK eingebaut worden. Sie befindet sich noch im Erprobungsstadium.



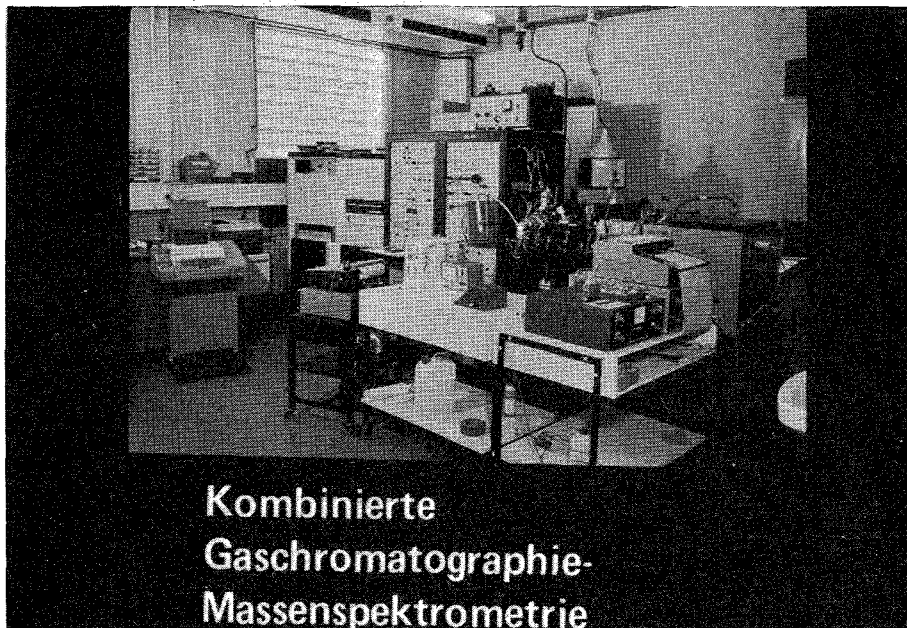
Die Bilder der WAK-Zentrifugenbatterie wurden freundlicherweise von der Gesellschaft für Wiederaufarbeitung zur Verfügung gestellt.

Unter dem Gesichtspunkt, größtmögliche Betriebssicherheit zu erreichen, sind für die KEWA-Anlage in Anlehnung an die Anlagen in Windscale und La Hague jetzt Extraktionskolonnen und Mischabsetzer vorgesehen.

Damit wurde aber das Kritikalitätsproblem in den Extraktoren, dem ja die Zentrifugenentwicklung gegolten hatte, wieder aktuell.

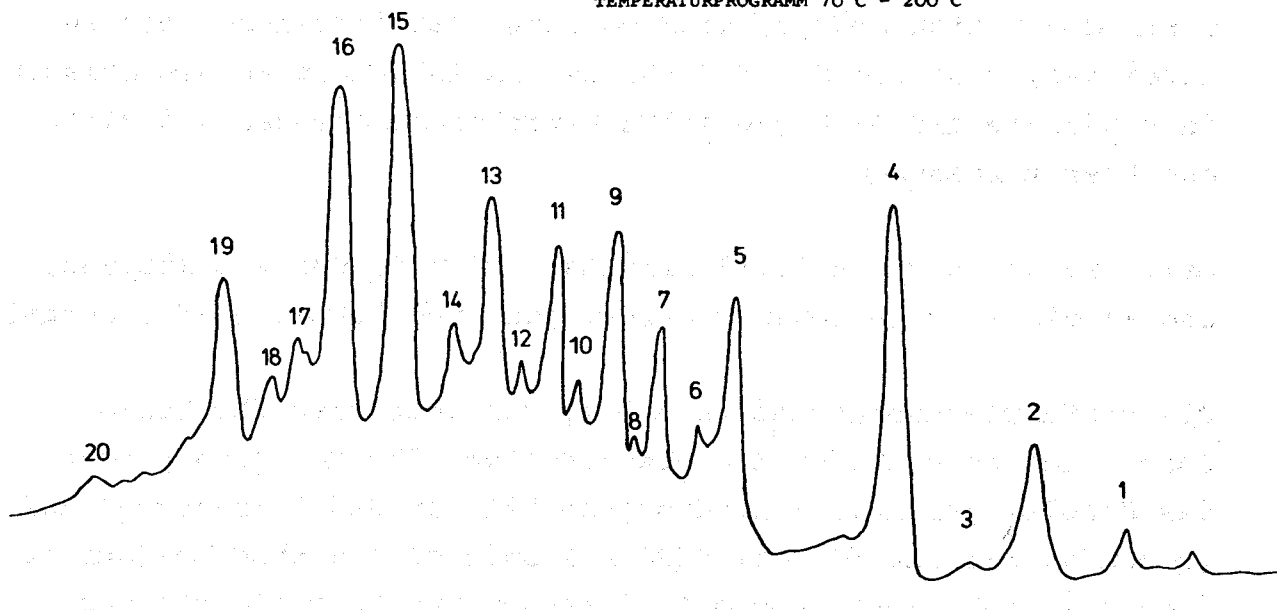
Die verfahrenstechnische Abteilung des Instituts für Heiße Chemie hat seit dieser KEWA-Entscheidung für Kolonnen erneut das Problem der Kritikalitätssicherheit in den Extraktoren aufgenommen. Sie hat für die KEWA-Kolonnen eine Siebboden-Konstruktion aus stark neutronenabsorbierendem und korrosionsfestem Hafniummaterial vorgeschlagen. Damit kann auf einfachere Weise als bisher üblich die Kritikalitätssicherheit von Extraktionskolonnen sichergestellt werden.

Mit der KEWA-Entscheidung für den langsamen Extraktor "Puls-kolonne" rückt nicht nur das Kritikalitätsproblem, sondern auch das Radiolyseproblem wieder in den Mittelpunkt. Die vom Institut gemachten Investitionen für Gaschromatographie, Flüssigkeitschromatographie und Massenspektrometrie, die zur chemischen Identifizierung der Radiolyseprodukte aufgewendet worden sind, finden dabei ihre nutzbringende Anwendung.



Kombinierte
Gaschromatographie-
Massenspektrometrie

GASCHROMATOGRAMM DES H₂O - EXTRAKTS, SÄULE CARBOWAX 20 M,
TEMPERATURPROGRAMM 70°C - 200°C



Zuordnung der einzelnen Peaks

- | | | | |
|--|---------|---|---------|
| 1.) Gemisch von R-C-OCH ₃ | | 11.) $\text{CH}_3\text{O}-\overset{\text{O}}{\underset{\text{O}}{\text{P}}}-\text{O}(\text{C}_2\text{H}_5\text{OH})(\text{C}_6\text{H}_{13})$ | M = 310 |
| 2.) $\text{CH}_3\text{O}-\overset{\text{O}}{\underset{\text{O}}{\text{P}}}-\text{O}(\text{C}_4\text{H}_8)(\text{C}_4\text{H}_9)$ | M = 238 | 12.) $\text{CH}_3\text{O}-\overset{\text{O}}{\underset{\text{O}}{\text{P}}}-\text{O}(\text{C}_4\text{H}_8)(\text{C}_6\text{H}_9\text{OH})$ | M = 324 |
| 3.) $\text{CH}_3\text{O}-\overset{\text{O}}{\underset{\text{O}}{\text{P}}}-\text{OC}_6\text{H}_{11}$ | M = 238 | 13.) $\text{CH}_3\text{O}-\overset{\text{O}}{\underset{\text{O}}{\text{P}}}-\text{OR}$ | |
| 4.) $\text{CH}_3\text{O}-\overset{\text{O}}{\underset{\text{O}}{\text{P}}}-\text{OC}_6\text{H}_{12}$ | M = 252 | 14.) $\text{CH}_3\text{O}-\overset{\text{O}}{\underset{\text{O}}{\text{P}}}-\text{OR}$ | |
| 5.) $\text{CH}_3\text{O}-\overset{\text{O}}{\underset{\text{O}}{\text{P}}}-\text{OR}$ | | 15.) $\text{CH}_3\text{O}-\overset{\text{O}}{\underset{\text{O}}{\text{P}}}-\text{O}(\text{C}_5\text{H}_{10})(\text{C}_6\text{H}_{13})$ | M = 322 |
| 6.) $\text{CH}_3\text{O}-\overset{\text{O}}{\underset{\text{O}}{\text{P}}}-\text{OC}_7\text{H}_{15}$ | M = 266 | 16.) $\text{CH}_3\text{O}-\overset{\text{O}}{\underset{\text{O}}{\text{P}}}-\text{O}(\text{C}_7\text{H}_{14})(\text{C}_4\text{H}_8\text{OH})$ | M = 338 |
| 7.) $\text{CH}_3\text{O}-\overset{\text{O}}{\underset{\text{O}}{\text{P}}}-\text{OC}_8\text{H}_{17}$ | M = 280 | 17.) $\text{CH}_3\text{O}-\overset{\text{O}}{\underset{\text{O}}{\text{P}}}-\text{O}(\text{C}_6\text{H}_{12})(\text{C}_7\text{H}_{15})$ | M = 350 |
| 8.) $\text{CH}_3\text{O}-\overset{\text{O}}{\underset{\text{O}}{\text{P}}}-\text{OR}$ | | 18.) $\text{CH}_3\text{O}-\overset{\text{O}}{\underset{\text{O}}{\text{P}}}-\text{OC}_{14}\text{H}_{29}$ | M = 364 |
| 9.) $\text{CH}_3\text{O}-\overset{\text{O}}{\underset{\text{O}}{\text{P}}}-\text{OC}_{10}\text{H}_{21}$ | M = 308 | 19.) nicht zuzuordnen | |
| 10.) $\text{CH}_3\text{O}-\overset{\text{O}}{\underset{\text{O}}{\text{P}}}-\text{O}(\text{C}_4\text{H}_8)(\text{C}_4\text{H}_8\text{OH})$ | M = 296 | 20.) $\text{CH}_3\text{O}-\overset{\text{O}}{\underset{\text{O}}{\text{P}}}-\text{OR}$ | |

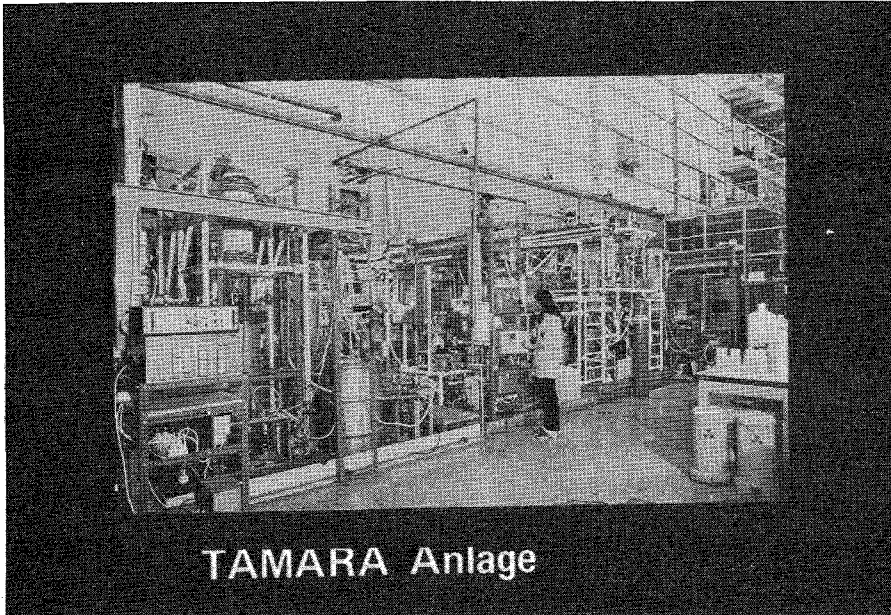
(R = Zweiter Alkylrest im Spektrum nicht zuordenbar)

Die Identifizierung der zahlreichen organischen Radiolyseprodukte im Purex-Prozeß ist praktisch abgeschlossen. Eine Ahnung von ihrer Kompliziertheit und Vielfältigkeit kann vielleicht die Abbildung, S. 12, geben, das die Komponenten von nur einer aus mehreren Fraktionen darstellt.

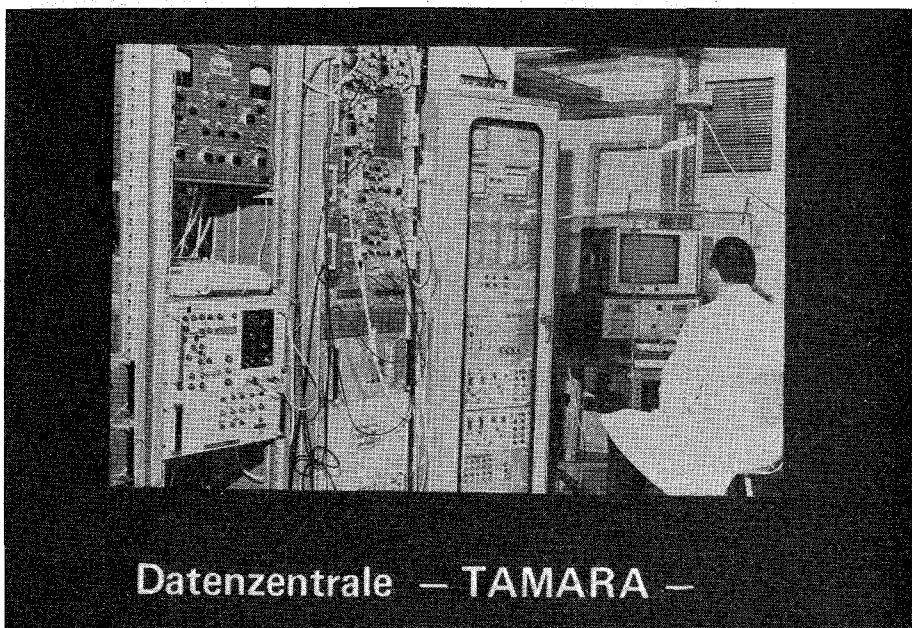
Von diesen Ergebnissen ausgehend, konnten neue Waschverfahren entwickelt werden. Zur realistischen radioaktiven Erprobung neuer Lösungsmittelreinigungsverfahren wurde ein abgeschirmter Lösungsmittelwaschzyklus erstellt. Die radiolytisch degradierten Originallösungsmittel aus der WAK werden darin in Versuchschargen verarbeitet.



Zu den drei zentralen Problemen Plutoniumextraktion, Kritikalität und Radiolyse kommen allgemeine Probleme des radioaktiven Anlagenbetriebs. Dazu gehört in erster Linie die Prozeßüberwachung. Den Entwicklungsarbeiten zur Prozeßüberwachung dient die TAMARA-Anlage.



Es handelt sich dabei um einen Extraktionszyklus im WAK-Maßstab. Im Projekt Wiederaufarbeitung dient die TAMARA-Anlage heute einem gemeinsamen Programm mit dem Institut für Datenverarbeitung in der Technik zu Versuchen der Prozeßsimulation. Die Auslastung des Institutspersonals durch unmittelbare KEWA-Erfordernisse kann dadurch deutlich werden, daß zum Betrieb dieser TAMARA-Anlage nur noch ein einziger Ingenieur der Heißen Chemie zur Verfügung stehen kann. Er ist auf die Unterstützung von Mathematikern und Physikern aus dem IDT angewiesen.



Das Hauptgewicht bei der Entwicklung zur Prozeßüberwachung liegt jetzt bei der Laborautomatisierung.

Der Anlagenbetrieb allein in der Heißen Chemie erfordert im Jahr rund 15.000 analytische Einzelbestimmungen.



Dieser große analytische Aufwand ist von den dafür verfügbaren 12 Mann, die z.T. in drei Schichten arbeiten, nur bei einer sehr weitgehenden Laborautomation möglich.

Nach diesem Überblick über einen Teil des apparativen Potentials, das zu Beginn des Projekts Wiederaufarbeitung im Institut für Heiße Chemie bereitgestanden hat, sollen jetzt die wichtigsten Ergebnisse des MILLI-Betriebs genannt werden.

1. Aufarbeitungskampagne - MILLI

Jahr	Quartal	Brennstoff	Ergebnis
1971	I + II	U + Zr + Mn 56 1500-2000 Ci β γ/l wassr	20 mg HDBP/l pro Durchlauf nach 30 Std spurenhafte Niederschläge Purex auch bei extremer β,γ-Belastung möglich

Die erste hochaktive Milli-Kampagne lief im Jahr 1971. Mit ihr sollten die Grenzen des Purex-Prozesses durch β-γ-Aktivität abgetastet werden. Der Radioaktivitätspegel der Prozeßlösung war damals durch Zugabe von Mangan-56 auf 1500 bis 2000 β-γ-Ci/l Speiselösung eingestellt worden. Diese Aktivität konnte durch Spaltprodukte allein nicht erreicht werden. Damit ist damals die maximal zu erwartende β-γ-Aktivität in Brennstofflösungen um etwa den Faktor 5 überschritten worden. Es zeigte sich bei dieser Kampagne, daß der Purexprozeß auch bei extrem hoher β-γ-Belastung möglich ist.

2. Aufarbeitungskampagne - MILLI

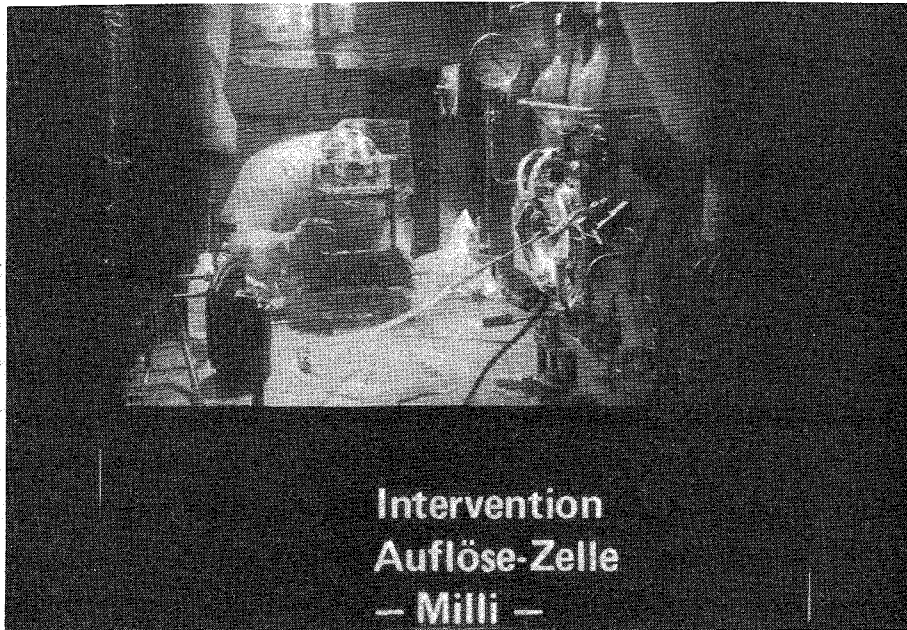
Jahr	Quartal	Brennstoffe	Ergebnis
1971 1972	III + IV + I	Pu-238 / Np-237 0,3-0,4 Wh α-Akt /l org	bei Phasenverschleppung über 50% Pu-Verlust durch HDBP. Pu-Rückgewinnung nur reduktiv möglich Bei Betriebsstörungen begrenzt α-Radiolyse den Purex-Prozeß Entwicklungsaufgaben für hohen Abbrand: a) kurze Kontaktzeit b) keine Phasenverschleppung c) vollständige Produkt u. Solventwäsche
1972 1973	II + III + IV I + II	_____	Intervention: Dekontamination und Erneuerungen im Anlagenteil

Die zweite Kampagne lief im dritten und vierten Quartal 1971. Die Grenzen des Purex-Prozesses durch α-Radiolyse war dabei die Fragestellung. Die sehr hohe α-Strahlenbelastung von

0,3 - 0,4 Wh/l ist nur durch Einsatz von Plutonium-238 erreichbar geworden. Dieses Plutonium belastete das Lösungsmittel mit einer etwa 200-fach höheren spezifischen α -Aktivität als bei reinen Brennstofflösungen auftreten kann. Durch Phasenverschleppung bildete sich Dibutylphosphat in so starkem Maße, daß das Plutonium stöchiometrisch von den Radiolyseprodukten gebunden worden ist. Die reguläre Rückextraktion mit verdünnter Salpetersäure war nicht mehr möglich. Reduktionsmittel mußten dazu eingesetzt werden. Erst durch diese zusätzlichen Maßnahmen ließ sich das Plutonium-238 und das Ausgangsmaterial Neptunium-237 wieder zurückgewinnen. Bei diesem Prozeß bekamen wir die schweren Folgen von zu langer Kontaktzeit, Phasenverschleppung und unvollständiger Produkt- und Solventwäsche zu spüren, die zu Verstopfungen in den Leitungen führten. Wegen der unauflöslichen Niederschläge mußten einzelne Leitungen der Anlage vollkommen erneuert werden.

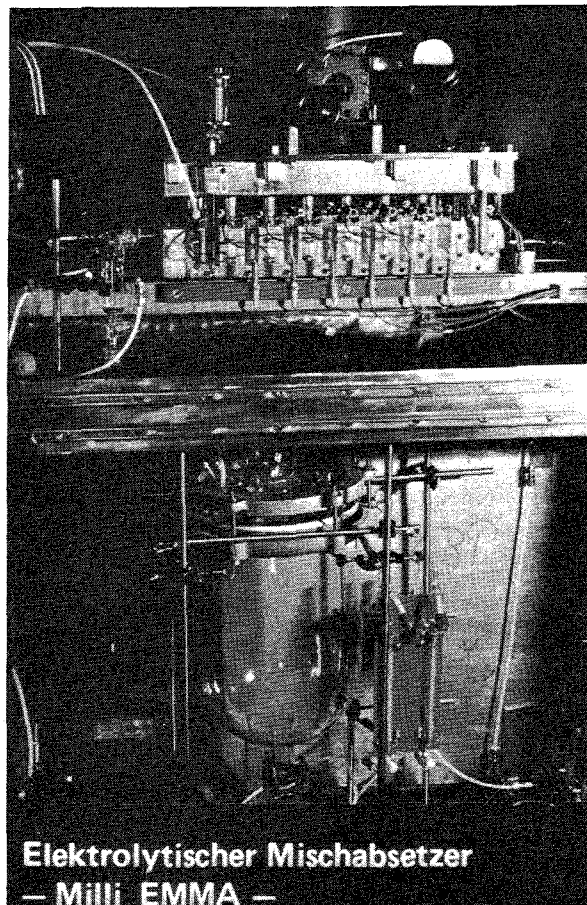


Reparatur an der
Eingangsschleuse
— Milli —



Die Instandsetzung des ersten hochaktiven Milli-Zyklus dauerte etwa ein Jahr. Diese lange Reparaturzeit konnte aber nützlich überbrückt werden. Der noch verfügbare dritte Extraktionszyklus der Milli wurde als Plutoniumversorgungssystem zum Test der elektrolytischen Plutonium-Uran-Trennung eingesetzt. In diese Zeit der Ersatzkampagnen fällt auch die erste elektrolytische Rückextraktion reiner Plutoniumlösungen in der sog. MILLI-EMMA (s. Abb. S. 19).

Diese Rückextraktion reiner Plutoniumlösungen auf elektrochemischem Wege ist eine Forderung der Gesellschaft zur Wiederaufarbeitung (GWK) gewesen, um unsere elektrolytischen Prozeßentwicklungen in der WAK für die Erprobung in Betracht zu ziehen.



Außerdem wurde während dieser Zeit auch noch die Trennung des Dreikomponentensystems Uran-Plutonium-Neptunium auf elektrochemischem Wege durchgeführt (siehe Abbildungen S. 20).

Nach Instandsetzung der gesamten Milli-Anlage im dritten Quartal 1973 wurde ein Plutonium-Uran-Mischoxid von 20 % Plutoniumgehalt der Fa. Gelsenberg verarbeitet.

Dabei zeigte sich, daß die Plutonium-Uran-Trennung mit Uran-IV kein sicheres Verfahren bei hohen Plutoniumgehalten ist. Wegen Instabilität des Uran-IV mußte etwa ein 20-facher Überschuß verwendet werden. Eine Erfahrung, die später auch in der WAK gemacht worden ist

3/4. Aufarbeitungskampagne - MILLI

Jahr	Quartal	Brennstoff	Ergebnis
1972	III + IV	15% Pu Pu-U-Trennung elektrochemisch	DF-Pu in Uran elektrochemisch: > 1000 DF-Pu in Uran (mit U-IV): 100 - 500 elektrochemisch, höhere Betriebssicherheit
1973	I + II + III	reines Pu Rückextraktion elektrochemisch U - Pu - Np - Trennung elektro- chemisch	uranfreie Pu-Rückextraktion (2.+3. Pu-Zyklus) elektrochemisch erfolgreich Verluste a) bisher: 0,1 - 0,5% b) elektrochem.: < 0,01% elektrochemisch, Np-Führung mit Pu oder Uran möglich

5. Aufarbeitungskampagne - MILLI

Jahr	Quartal	Brennstoff	Ergebnis
1973	IV	20% Pu/U (Gelsenberg AG)	konventionelle Trennung mit U(IV) U(IV) instabil 20-fache U(IV)-Menge erforderlich

6. Aufarbeitungskampagne - MILLI

Jahr	Quartal	Brennstoff	Ergebnis
1974	I + II	15% PuO ₂ /UO ₂ (kopraz) 50000 MWd/to 7,5 Jahre Schneller Brüter Downreay	1) Auflösung vollständig 2) Pu-U-Trennung elektrolytisch 3) 45% ige Solventbeladung: Prozeßunterbrechung durch Ausfällung 4) 85% ige Solventbeladung, 3-4m HNO ₃ : Prozeß erfolgreich Brüter-WA mit Purex prinzipiell möglich

7. Aufarbeitungskampagne - MILLI

Jahr	Quartal	Brennstoff	Ergebnis
1974	III + IV	VAK 18000 MWd/to 2,7 Jahre	1) Auflösung: Verlust < 0,1% 2) Extraktion bei 80% Sättigung ohne Störung 3) Pu-U-Trennung mit U(IV) nicht optimal DF-Pu im Uran - 130

Anfang 1974 bekam Milli den ersten Brüterbrennstoff aus Dounreay mit 15 % Plutoniumoxid und einem Abbrand von 50 - 60 Mwd/t zur Verarbeitung. Die Auflösung verlief mit 8 m Salpetersäure vollständig und ohne Störung. Schwierigkeiten traten aber im ersten Extraktionszyklus durch Niederschlagsbildung und Verstopfung der Extraktoren ein. In einem zweiten Anlauf, bei hoher Solventsättigung und 3 - 4 m Salpetersäure, konnte diese Kampagne aber erfolgreich zu Ende geführt werden. Damit hatte sich bestätigt, daß der Brüterbrennstoff nach dem Purexverfahren prinzipiell aufgearbeitet werden kann.

Aufgrund der gemachten Erfahrungen, schon bei der Gelsenberg-Kampagne, über die Plutoniumabtrennung mit Uran-IV ist die Plutonium-Uran-Trennung dabei elektrolytisch durchgeführt worden. Diese elektrolytische Plutonium-Uran-Trennung verlief reibungslos (s. Abb. S. 20, 7. Aufarb.Kamp.).

Im dritten Quartal 1974 nahm Milli dann denselben VAK-Brennstoff auf, der in der WAK so erhebliche Schwierigkeiten bereitet hatte. Aufgrund der gemachten Erfahrungen am Dounreay-Brennstoff wurde von vornherein bei hoher Solventsättigung gefahren. Die in der WAK nach 40 Betriebsstunden aufgetretenen Extraktorverstopfungen traten unter diesen Betriebsbedingungen in der Milli-Kampagne nicht auf. Die Plutonium-Uran-Trennung ist dabei wieder mit der konventionellen Uran-IV-Reduktion durchgeführt worden. Dabei konnte aber auch bei einem 40-fachen Reduktionsmittelüberschuß nicht der erwartete Trennfaktor von 10^3 erreicht werden.

8. Aufarbeitungskampagne - MILLI

Jahr	Quartal	Brennstoff	Ergebnis
1975	I + II	KWO 1% Pu 31000 MWd/to 1,6 Jahre	ohne Schwierigkeit bei 80% Solvent- Beladung 1. Zyklus = Pu-Verlust im HAW = 0,1 % HDBP < 30 mg/l DF - Pu im U = $2 \cdot 10^3$ DF _Y - im Uran = $2 \cdot 10^4$ DF _Y - im Pu = $1 \cdot 10^4$

9. Aufarbeitungskampagne - MILLI

Jahr	Quartal	Brennstoff	Ergebnis
1975	III + IV	KWO 1% Pu 35000 MWd/to 2 Jahre	im Gange, bisher keine Störung

10. Aufarbeitungskampagne - MILLI

in Vorbereitung

Jahr	Quartal	Brennstoff	Ergebnis
1976	I + II	KWO 40000 MWd/to 200d Abklingzeit	

Im ersten Halbjahr 1975 verarbeitete Milli schließlich einen KWO-Brennstoff mit 31000 MWd/t und 1 % Plutoniumgehalt, der höchste LWR-Abbrand, der in der Bundesrepublik bis dahin aufgearbeitet worden ist. Aufgrund der früher gemachten Erfahrungen wurde wieder bei hoher Solventsättigung und 3 - 4 m Salpetersäure gearbeitet. Der Prozeß verlief mustergültig ohne Störungen, ohne Niederschlagsbildung und mit einem Plutoniumverlust im HAW von nur 0,1 %. Die Dekontaminationsfaktoren der Produkte lagen nach dem ersten Zyklus ebenfalls sehr gut wie die Tabelle zeigt. Im Augenblick läuft eine neue KWO-Kampagne mit 35.000 MWd/t. Anfang nächsten Jahres soll ein KWO-Brennstoff mit 40.000 MWd/t und nur 200 Abklingtagen zur Verarbeitung kommen.

Vielleicht ist die Personalstärke des Instituts für Sie noch von Interesse. Das bisher genannte personelle und sachliche Erfahrungspotential, das zwischen 1965 und 1974 aufgebaut worden ist, basierte auf einer Institutsstärke von 86 Personen. Seit der Projekt- und Schwerpunktsbildung hat sich das Institut erweitert auf 115 Mitarbeiter, die Akademikerzahl von 18 auf 22.

Nachdem Sie das Einrichtungspotential der Heißen Chemie und die Wiederaufarbeitungserfahrungen in der Milli-Anlage kennengelernt haben, soll nun noch die Frage behandelt werden, wo liegen nach unserer Auffassung in den kommenden Jahren die Entwicklungsschwerpunkte der Wiederaufarbeitung.

Dazu sollen die Probleme in drei Gruppen gegliedert werden:

1. Die drei zentralen Probleme der Wiederaufarbeitung, nämlich Plutoniumextraktion, Kritikalität und Radiolyse werden auch in Zukunft von gleichbleibender Bedeutung sein.
2. Die Genehmigungsprobleme der KEWA nehmen im Projekt Wiederaufarbeitung und Abfallbehandlung die höchste Priorität ein. Diese Aufgaben entspringen z.T. dem in den letzten Jahren verstärkten Umweltbewußtsein der Öffentlichkeit. Das gilt vor allem für die Emissionsraten an Krypton, Tritium und Jod.

Unter diesem Prioritätenzwang wurde die Abtrennung der langlebigen α -Strahler im radioaktiven Abfall, die bis dahin vom Personal des Transplutoniumlabors des Instituts für Heiße Chemie untersucht worden ist, zurückgestellt und die Bearbeitung der sog. Head-End-Probleme neu aufgenommen.

Die Problemkreise der WA

- I. Die drei zentralen Probleme der WA
 1. Plutonium - Extraktion
 2. Kritikalität
 3. Radiolyse

- II. Die Genehmigungsprobleme der KEWA

Krypton, Tritium, Jod, Störfälle, etc.

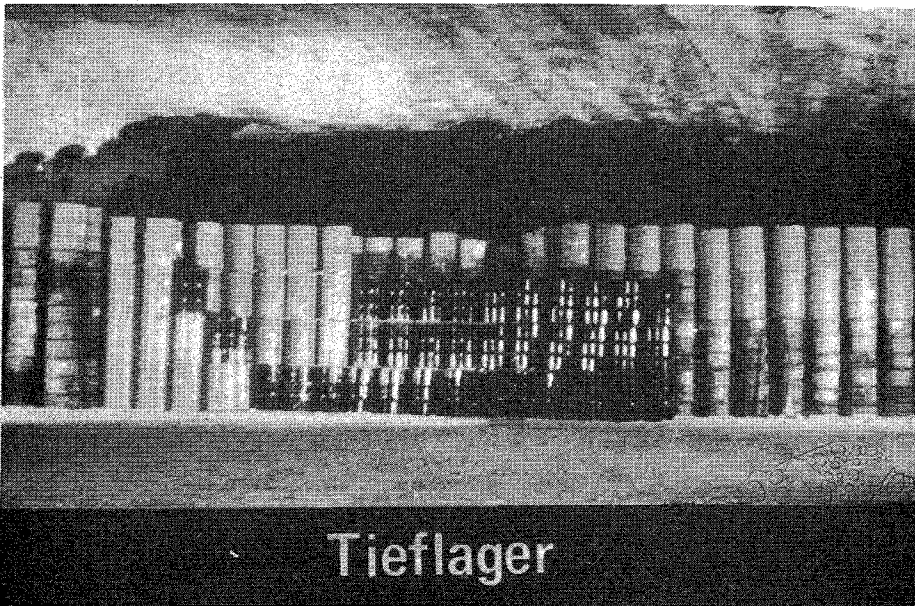
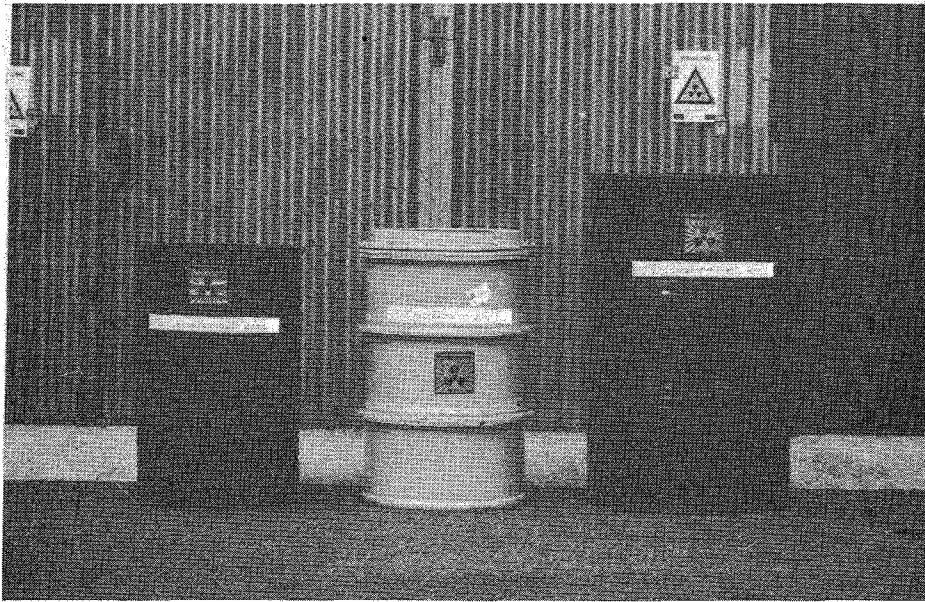
- III. Die Waste - Minimierung;

salzfreie Verfahren

Der Entwicklungsstand auf diesem sehr wichtig gewordenen Gebiet wird in einem eigenen Referat von Dr. Weinländer noch dargestellt werden.

Der dritte, ebenfalls durch die Großanlage deutlich gewordene Problemkreis ist die Minimierung des radioaktiven Abfallvolumens. Dieser neue Problemkreis hat seine Ursache in zwei Gegebenheiten. Erstens in dem geplanten KEWA-Durchsatz von 5 t Brennstoff pro Tag und zweitens im Stand der Technik bei der mittelaktiven Wastebehandlung. Nach der Uhde-GfK-Fliebschemastudie 1974 müßten demnach in der KEWA jährlich 14.500 MAW-Bitumenfässer der abgebildeten Art in einem Tieflager beseitigt werden (siehe Abbildungen S. 25).

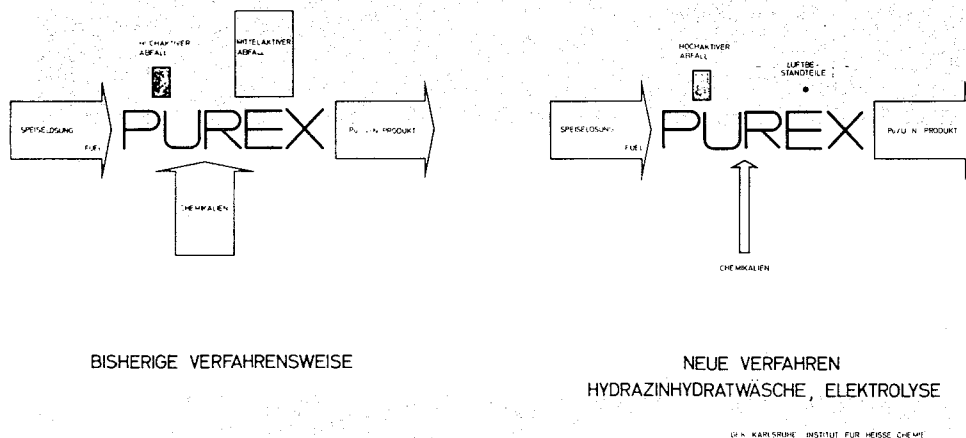
Wenn wir alle anderen Gesichtspunkte außer Betracht lassen, so stellt diese Aufgabe allein vom Umfang des Volumens und der großen Zahl her ein logistisches Problem dar.



Tieflager

Nach unserer Auffassung besteht die Lösung dieses Problems in der Anwendung salzfreier Verfahren. Dadurch kann die MAW-Menge minimiert und der dann hochkonzentrierbare MAW dem HAW zuge-schlagen werden. Betrachten wir dazu das vereinfachte Volumen-Bilanzschema des Purex-Verfahrens.

ENTSTEHUNG DER HA- UND MA-WASTEVOLUMINA



Die Produktvolumina entsprechen in ihrer Menge den Speisevolumina. Wesentlich aber ist, daß die Volumina der beiden wichtigsten Abfallströme, nämlich des hochaktiven und mittelaktiven Abfalls, praktisch vollständig von nicht rezyklierbaren Prozeßchemikalien gebildet werden. Das rechte Bild zeigt die drastische MAW-Reduzierung bei der Anwendung der salzfreien Verfahrensschritte, die im Institut für Heiße Chemie entwickelt worden sind.

Ein optimaler Weg, die Zugabe von Prozeßchemikalien zu minimalisieren, ist die elektrochemische Prozeßführung. Elektrochemische Verfahren anzuwenden heißt, die stofflichen Veränderungen nicht

durch Chemikalienzugabe, sondern mit Hilfe des elektrischen Stroms, herbeizuführen. Der elektrische Strom ist bekanntlich volumen- und gewichtslos.

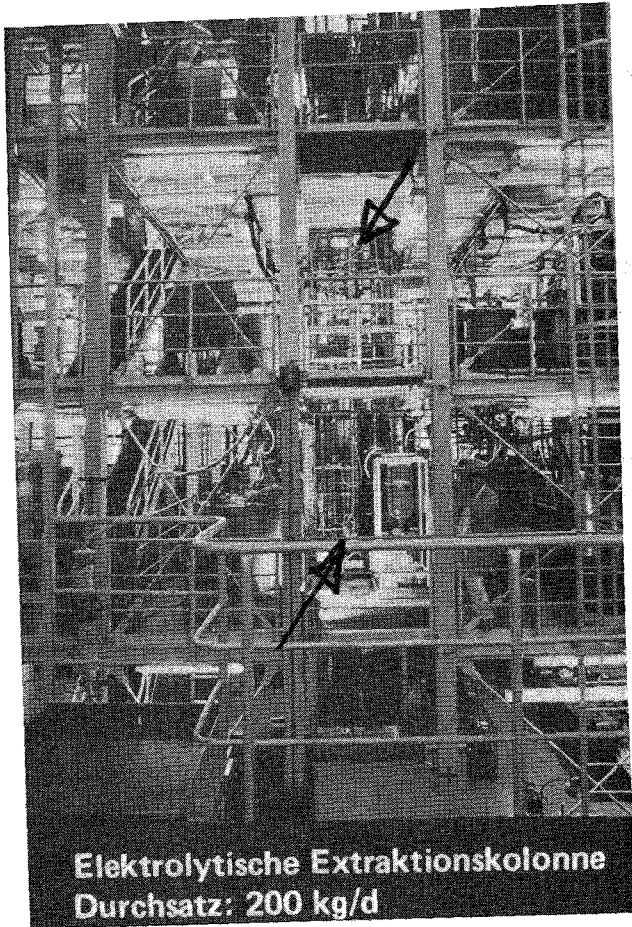
Bei der Wiederaufarbeitung von Brüterbrennstoffen mit ihrem hohen Plutoniumgehalt von 20 % ist der elektrochemische Purex-Prozeß nach unserer Auffassung unumgänglich. Deshalb wurden in der Verfahrenstechnik der Heißen Chemie schon vor mehr als sechs Jahren elektrochemische Prozesse für den Purex-Prozeß ausgearbeitet.

Der erfolgreiche Einsatz der Milli-Emma, das ist ein elektrolytischer Mischabsetzer zur Plutonium-Uran-Trennung, wurde bereits bei den Milli-Kampagnen erwähnt.

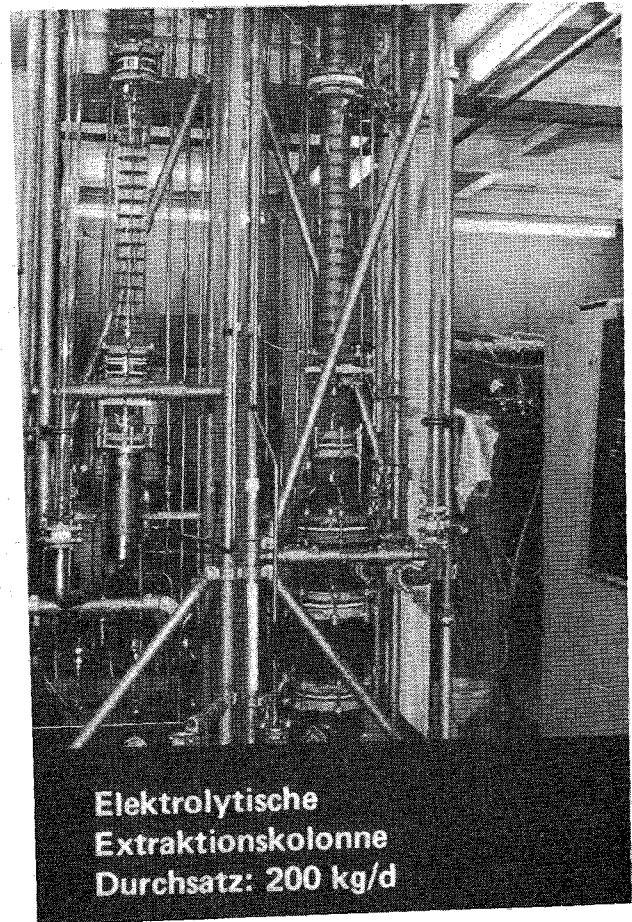
Ein elektrolytischer Mischabsetzer für die reine Plutoniumrückextraktion im Maßstab der WAK ist ebenfalls im Institut für Heiße Chemie entwickelt worden. Er soll wie die Zentrifugen ebenfalls in der WAK getestet werden. Die Ausschreibung für den WAK-Apparat ist bereits abgeschlossen.

Nachdem die Extraktionskolonne der Extraktortyp der KEWA geworden ist, wurde in der Heißen Chemie die elektrochemische Verfahrensweise auch für den Kolonnenbetrieb ausgearbeitet (siehe Abb. S. 28).

Die Abbildungen zeigen eine elektrolytisch arbeitende Extraktionskolonne mit einem Durchsatz von 200 kg Brennstoff pro Tag, die im Technikum der Heißen Chemie im Uran-Betrieb fertig getestet ist.



Elektrolytische Extraktionskolonne
Durchsatz: 200 kg/d



Elektrolytische
Extraktionskolonne
Durchsatz: 200 kg/d

Für die Plutonium-Reoxidation, die jedem der Plutonium-Reinigungszyklen vorauszugehen hat, ist ebenfalls eine elektrochemische Reoxidationszelle entwickelt worden.



Die oben gezeigte Apparatur hat bereits die WAK-Kapazität.

Nun zur Ausgangsseite des Purex-Prozesses. Wenn wir die Liste der Chemikalien betrachten, die gegenwärtig bei der wäßrigen Wiederaufarbeitung verwendet werden, so sind sie bis auf Soda und Natronlauge aus den Elementen der natürlichen Atmosphäre, nämlich Stickstoff, Sauerstoff, Kohlenstoff und Wasserstoff aufgebaut.

PROZESSCHEMIKALIEN DER WA

Herkömmliche

VERFAHRENSWEISE:

HNO_3 , NO_2 , U-IV, $[\text{NH}_3\text{OH}]\text{NO}_3$, $\text{C}_2\text{O}_4\text{H}_2$, Na_2CO_3 , NaOH

Alternative

VERFAHRENSWEISE:

HNO_3 e^- $\text{C}_2\text{O}_4\text{H}_2$ $\text{N}_2\text{H}_5\text{OH}$

nur chem. Elemente der Atmosphäre

N, O, H, C

Die Salzbildner Soda und Natronlauge sind in erster Linie die Prozeßchemikalien der Solventwäsche. Um diese Salzbildner

zu eliminieren, wurde im IHCH die Hydrazinwäsche entwickelt. Hydrazin läßt sich rückstandsfrei in Stickstoff zersetzen. Für die Überführung dieser Prozeßchemikalien nach der neuen Verfahrensweise in die Bestandteile der Atmosphäre, sind wieder elektrochemische Verfahrensschritte anwendbar. Am schwierigsten ist noch die elektrochemische Umwandlung der nichtrezyklisierbaren Salpetersäure in Stickstoff und Sauerstoff. Durch Sekundärreaktionen erreicht hier die Stromausbeute erst 50 % und ist damit für uns noch unbefriedigend. Besser liegen die Verhältnisse bei der Oxalsäurezerstörung. Die Überführung in Kohlendioxid verläuft glatt. Am weitesten ist die Entwicklung bei der Hydrazinzerstörung gediehen. Sie läuft mit idealer Stromausbeute von 100 % glatt zu molekularem Stickstoff.

Die Forschung und Entwicklung auf dem Gebiet der Wiederaufarbeitung von Kernbrennstoffen hat gegenüber der konventionellen chemischen Industrie noch zusätzlich eine besonders schwer zu überwindende Hürde zu überwinden, ehe ihre Ergebnisse in die Technik übernommen werden. Damit meine ich den Nachweis des langfristig wartungsfreien Betriebsverhaltens unter hochradioaktiven Betriebsbedingungen.

In unserem Bereich Chemie, bei der Fließschemaentwicklung, sind wir durch den institutseigenen Millibetrieb in der Regel kurzfristig in der Lage, in hochaktiver Hinsicht autonom und damit in Ergänzung zu den WAK-Betriebserfahrungen unmittelbare Entscheidungshilfen bei der KEWA-Planung zu liefern. Diese Möglichkeit wird von der KEWA-Projektgruppe, an unseren personellen Kräften gemessen, auch besonders stark in Anspruch genommen.

Schwieriger ist die Lage auf dem Gebiet der Verfahrens- und Apparateentwicklung. Wegen der sehr knappen Terminlage der KEWA-Projektierung ist die Chance gering, daß viele der von uns entwickelten elektrochemischen Verfahrensschritte noch über den hochaktiven WAK-Betrieb schließlich in die Großanlage eingebracht werden können, aber vielleicht erreichen wir doch noch mit einigen das Ziel. Diesen Erfolg wünsche ich vor allem meinen Mitarbeitern. Ich hatte das große Glück, in den vergangenen zehn Jahren hier im Zentrum von fachlich sehr guten, begeisterten und leistungsfreudigen Mitarbeitern umgeben zu sein. Diesen Mitarbeitern sind die Ergebnisse zu verdanken, die ich Ihnen hier vorgetragen habe.

Arbeiten zur Behandlung radioaktiver Abfälle
aus Wiederaufarbeitungsanlagen

H. Krause

I. Einleitung

Ein wesentlicher Teil der in der Kerntechnik anfallenden radioaktiven Abfälle entsteht bei der Wiederaufarbeitung bestrahlter Kernbrennstoffe. Diese Abfälle enthalten > 99 % der gesamten nicht natürlichen β/γ -Strahler und, wenn man die Fertigung Pu-haltiger Brennelemente einbezieht, auch > 99 % der gesamten in den Abfall gehenden Aktiniden.

Die radioaktiven Abfälle einer Wiederaufarbeitungsanlage mit einer Jahreskapazität von 1500 t enthalten pro Jahr > 3 Milliarden Ci β/γ -Strahler und > 10 Mio Ci α -Strahler. Die Abfallmengen belaufen sich auf rd. 50.000 m³/Jahr, die nach Behandlung, Konzentrierung und Verfestigung > 4000 m³ endlagerfähiger Rückstände ergeben.

Diese Zahlen machen auf sehr eindrucksvolle Weise die Bedeutung der Abfallbehandlung im Zusammenhang mit der Wiederaufarbeitung bestrahlter Kernbrennstoffe deutlich. Da die radioaktiven Abfälle aus Wiederaufarbeitungsanlagen zum Abklingen ihrer Spaltproduktaktivität auf unbedeutende Werte mehrere Jahrhunderte, zum Zerfall der Aktiniden und einiger sonstiger sehr langlebiger Radionuklide sogar Jahrmillionen benötigen, akkumuliert sich hier die Radioaktivität im Gegensatz zu allen anderen kerntechnischen Bereichen praktisch über die gesamte vorhersehbare Einsatzzeit der Kerntechnik. Diese Tatsachen erhellen wohl auch die Tragweite der im Zusammenhang mit den radioaktiven Abfällen getroffenen Maßnahmen.

Ich hätte es für angezeigt gehalten, in dem ersten Vortrag im Rahmen eines PWA-Statusberichts kein bloßes Referat über unsere eigenen Arbeiten zur Behandlung radioaktiver Abfälle aus Wiederaufarbeitungsanlagen zu halten. Vielmehr möchte ich zunächst die Größenordnung der Probleme aufzeigen, um dann die eigenen Arbeiten in Bezug zu setzen zu dem internationalen Stand auf diesem Gebiet und zu den erforderlichen Lösungen. Für eine detaillierte Beschreibung der eigenen Arbeiten werden die kommenden Statusberichte noch ausreichend Gelegenheit bieten.

II. Mengen- und Aktivitätsvergleich

1. Mengenbetrachtung

Die Abbildung 1 gibt in vereinfachter Form einen Überblick über die Arten und relativen Mengen radioaktiver Abfälle in einer 1.500 tato-Wiederaufarbeitungsanlage. Die Zahlen enthalten neben den reinen Prozessabfällen auch die nicht unbeträchtlichen Mengen an Dekontaminationsabfällen sowie den bei der Abfallbehandlung selbst entstehenden Sekundärwaste. Sie sind insofern sehr pessimistisch, d.h. hoch, als sie vom bisherigen Stand der Technik ausgehen und die neueren Bemühungen zur Verminderung der Abfallmengen, von denen hier z.T. bereits berichtet wurde, noch nicht berücksichtigen.

Man sieht, daß hinsichtlich des Primäranfalls die schwach- und mittelaktiven Abwässer mengenmäßig deutlich an der Spitze stehen, gefolgt von den brennbaren Festabfällen. Bei den Abfallvolumina nach der Verarbeitung und Verfestigung stehen die mittelaktiven Abwässer bei weitem an der Spitze, während die Struktur- und Hüllenmaterialien Platz 2 einnehmen. Die schwachaktiven Abwässer und die brennbaren Festabfälle können bei der Abfallbehandlung soweit in

ihrem Volumen eingeengt werden, daß sie hinsichtlich ihres Endlagervolumens keine große Rolle spielen.

Unter dem Gesichtspunkt der Abfallmengen kommt also den mittelaktiven Abwässern die größte Bedeutung zu.

2. Aktivitätsbetrachtung

Die Verteilung der Radioaktivität auf die einzelnen Abfallströme ist in Abbildung 2 dargestellt. Man sieht auf den ersten Blick, daß hier die hochaktiven Spaltproduktlösungen mit weitem Abstand die Spitze einnehmen. Selbst Abfallarten wie die mittelaktiven Abwässer oder die Struktur- und Hülsmaterialien, die immerhin noch rund 2 Mio Ci pro Jahr bringen, treten hier bei der Addition der Aktivität gar nicht mehr in Erscheinung. Auch hinsichtlich der Gesamtktivität an Aktiniden stehen die hochaktiven Spaltproduktlösungen deutlich an der Spitze, gefolgt von den mittelaktiven Abwässern sowie den Hüll- und Strukturmaterialien.

Dies bedeutet, daß unter den Gesichtspunkten der Radioaktivität und damit der Langzeitsicherheit den hochaktiven Spaltproduktlösungen bei weitem die größte Bedeutung zukommt, gefolgt von den mittelaktiven Abwässern und den Hüllmaterialien. Deren β/γ -Aktivität klingt allerdings sehr rasch ab.

III. Verfahrensvergleich

Die in anderen Bereichen der Kerntechnik angewandten Verfahren zur Behandlung radioaktiver Abfälle lassen sich nur zum Teil in Wiederaufarbeitungsanlagen anwenden, weil Arten, Aktivitäten und Mengen vielfach unterschiedlich sind. Auch aus den schon bestehenden Wiederaufarbeitungsanlagen ist eine zufriedenstellende Abfalltechnologie kaum zu be-

ziehen, da sie dort in aller Regel sehr wenig entwickelt wurde. Dies hat seine Ursache darin, daß es sich meist um militärische Anlagen handelte, die in abgelegenen Gegenden errichtet und keinen sehr weitgehenden Sicherheitsanforderungen unterworfen waren. Die niedrigen Abbrände der Brennelemente führten zudem auch nur zu relativ geringen Aktivitätsgehalten in den Abfällen. Von diesen Voraussetzungen ist in unserem Fall keine einzige erfüllt, so daß die Behandlung und Beseitigung der radioaktiven Abfälle aus Wiederaufarbeitungsanlagen viele neue Entwicklungen erfordert.

1. Hochaktive Spaltproduktlösungen

Der überwiegende Teil der hochaktiven Spaltproduktlösungen wird heute auf der ganzen Welt in flüssiger Form in Tanks gelagert, insgesamt über 320.000 m³ (Abb. 3). Die größten Tanks haben Volumen von 5.000 m³. In den USA sind zwar bisher mehrere Leckagen aufgetreten, doch handelt es sich hierbei ausschließlich um Tanks aus Normalstahl, die einfach in Betonwannen eingelassen und z.T. über 30 Jahre alt sind. Alle Tanks in Westeuropa und alle neueren Tanks in den USA sind Doppeltanks aus Edelstahl, vielfach geprüft und zusätzlich durch eine Edelstahlwanne in einem Betoncontainment gesichert. An keinem einzigen dieser Tanks ist bisher eine Leckage aufgetreten.

Trotz dieser guten Erfahrungen mit der Tanklagerung ist es auf längere Sicht erforderlich, die hochaktiven Spaltproduktlösungen in chemisch, mechanisch und thermisch beständige, feste Produkte umzuwandeln, um die potentielle Gefahr eines Entweichens in die Umwelt weiter zu vermindern. Zu diesem Zweck wurden bisher folgende Verfestigungsprodukte entwickelt.

1.1 Verfestigungsprodukte

- Kalzinate: Durch Verdampfen der Spaltproduktlösungen und anschließendes Erhitzen auf 400-800°C entstehen Kalzinate in Form von Pulvern, Granulaten oder Salzkuchen.

Die meisten Kalzinate werden bereits in einem Tag zu 20-40 % in Wasser gelöst, haben eine schlechte Wärmeleitfähigkeit und können leicht verstreut werden.

In vielen Kalzinaten werden noch Radiolysegase gebildet. In der Bundesrepublik betrachten wir sie daher nur als Zwischenprodukte auf dem Weg zu Produkten mit wesentlich höherer inhärenter Sicherheit.

Wenn man die Kalzinate mit Zusätzen anreichert und längere Zeit auf Temperaturen $> 1300^{\circ}\text{C}$ erhitzt, bildet ein Teil der Spaltprodukte schwer lösliche kristalline Verbindungen, doch bleiben mit der heutigen Technik auch in diesen "Super-Calcine" genannten Substanzen noch immer eine Reihe von Spaltprodukten, etwa Caesium relativ leicht löslich.

- Gläser: Wesentlich bessere Eigenschaften haben die bisher entwickelten Gläser, Glaskeramiken und Keramiken. Sie bilden feste, chemisch, mechanisch und thermisch beständige Blöcke, aus denen die Aktivität praktisch nicht mehr entweichen kann. Radiolysegase werden in Gläsern nicht mehr entwickelt.

Die Löslichkeit in Wasser, Meerwasser oder Salzlauge ist so gering, daß selbst in 500 Jahren $< 1\%$ ausgelaugt werden. Dabei ist zu bedenken, daß die Versuche, die diesen Werten zugrunde liegen, unter extremen Bedingungen durchgeführt wurden, in der Regel in siedender Lösung, sodaß die angegebenen Werte in der Praxis wesentlich niedriger liegen müßten. Alle bisherigen

Untersuchungen an spaltproduktthaltigen oder äußerlich bestrahlten Gläsern zeigten keine oder keine wesentliche Verschlechterung der Auslaugbeständigkeit. Lediglich bei den Phosphatgläsern wurde in Hanford nach etwa 1,2 Jahren Lagerzeit eine Abnahme der Auslaugbeständigkeit um den Faktor 1000 beobachtet. Phosphatgläser verlangen Lager-temperaturen unter 400°C .

In einem Zeitrafferexperiment ist es uns bereits gelungen, die α -Dosis einer fast 3000-jährigen Lagerung zu simulieren. Obzwar die α -Strahler im Prinzip die größten Strahlenschäden verursachen, konnten bei diesem Versuch bisher noch keine negativen Erscheinungen beobachtet werden. In dem Beitrag von Herrn Scheffler wird hierauf näher eingegangen. Trotz dieser sicherlich erfreulichen Ergebnisse müssen wir eine kritische Interpretation vornehmen.

Während der sehr langen Lagerzeiten unterliegen die hochaktiven Gläser neben der Strahleneinwirkung auch erhöhter Temperatur und ggf. thermischen Spannungen. Darüber hinaus führt der α -Zerfall zum Aufbau von Helium im Glas (ca. 0,05 ml/g nach 1000 a).

Die Abbildung 4 zeigt eine nicht ganz vollständige Zusammenstellung von Art, Menge, Aktivität und Alter der bisher hergestellten Gläser. Zum Vergleich sind in der letzten Zeile Aktivitäten und Strahlendosen aufgetragen, die aus den Spaltprodukten hochabgebrannter Leichtwasserreaktoren zu erwarten sind.

Man sieht, daß bereits beachtliche Mengen an hochaktiven Gläsern hergestellt wurden, daß ihr Aktivitätsgehalt und die absorbierten Strahlendosen aber noch weit unter den zu erwartenden Maximalwerten liegen. Aus diesen Gründen ist eine intensive Fortsetzung der bisherigen Versuche und Untersuchungen unbedingt erforderlich.

Aber auch einer weiteren Verbesserung der Produktqualität sollte unsere Aufmerksamkeit geschenkt werden. Besonders bezüglich der Auslaugbeständigkeit sind noch nicht alle Wünsche erfüllt. Zwar erscheinen die bisher erzielten Werte äußerst gut, doch machen sie Lagerbedingungen mit einem absoluten Wasserausschluß erforderlich. Dies sollte durch die Lagerung im Salz gewährleistet sein. Der Einschluß der Gläser in Zylindern aus Metall oder keramischem Material erhöht die Sicherheit noch weiter. Allerdings sind die bis heute verwandten Metalle nicht unbegrenzt korrosionsbeständig, die keramischen Materialien nicht allen mechanischen und thermischen Belastungen gewachsen, so daß eine noch weitere Erhöhung der Beständigkeit von Produkt und Umhüllung zwar nicht zwingend erforderlich, im Hinblick auf das große Aktivitätsinventar und die Langlebigkeit der Abfälle aber wünschenswert erscheint.

Ansätze für eine gewisse Produktverbesserung sind vorhanden und relativ leicht realisierbar. Durch gezielte Kristallisation von Borosilikatgläsern zu Glaskeramiken erhält man thermodynamisch stabilere Produkte. Die Technik hierzu ist einfach und erfordert neben geringen Zusätzen zu den Borosilikatgläsern lediglich ein gezieltes Abkühlprogramm. Eine aktive Erprobung steht allerdings noch aus. Eine Vermeidung der thermischen Spannungen und eine zusätzliche Umhüllung kann durch Granulieren des Glases und Einbetten in eine Metallmatrix erreicht werden. Dies erfordert einen zusätzlichen Arbeitsschritt, doch ist die entsprechende Technik relativ einfach, wenn auch noch nicht aktiv erprobt. Alle Vorschläge für grundsätzlich neue und um Größenordnungen bessere Produkte sind dagegen noch weit von der Realisierung entfernt.

1.2 Verfestigungsverfahren

Wie aus der Abbildung 5 zu ersehen ist, sind zur Verfestigung von HAW bereits mehrere Verfahren und Verfahrenskombinationen entwickelt worden. Sie alle bestehen zumindest im Prinzip aus den Schritten Eindampfen, Denitrieren, Trocknen, Kalzinieren und Schmelzen, von denen bei manchen Verfahren einige Schritte gleichzeitig ablaufen.

Es würde zu weit führen, im Rahmen dieses Beitrages die einzelnen Verfahren näher zu erklären. Vielmehr soll auf den Stand der Entwicklung und auf das Potential der einzelnen Verfahren kurz eingegangen werden.

Man sieht aus der Tabelle 6, welche Mengen an hochaktiven Gläsern bisher an verschiedenen Stellen hergestellt wurden. Aus diesen Zahlen läßt sich der Erprobungsgrad deutlich ablesen. Über lange Zeiträume im echten technischen Maßstab wurde bisher nur der Fließbettkalzinator in Idaho betrieben, allerdings mit einem sehr speziellen und nicht allzu hochaktiven Abfall und ohne Schmelzstufe, d.h. ohne ein echt endlagerfähiges Produkt herzustellen.

Bezüglich des Potentials der Verfahren läßt sich feststellen, daß alle kontinuierlichen Verfahren zumindest im Prinzip auf die in einer Großanlage erforderlichen Durchsätze gebracht werden können, während ein diskontinuierliches Verfahren wie PIVER in einer Großanlage ca. 20 Paralleleinheiten erfordern würde.

Das Phosphatglasverfahren erfordert wegen der Korrosivität von Lösung, Schmelze und Abgas äußerst aufwendige Konstruktionsmaterialien und wurde an den meisten Stellen aufgegeben, u.a. wegen dieses Nachteils. Ein Vorteil des Phosphatglasverfahrens ist das Fehlen der Trocknungsstufe mit einer entsprechenden Vereinfachung der Abgasbehandlung.

Sprüh- und Fließbettkalzinatoren können aus weniger aufwendigen Materialien gefertigt werden, erfordern aber einen größeren Aufwand für die Abgasbehandlung und Regelung. Fließbettkalzinatoren sind nur für Abfälle geeignet, die harte, abriebfeste Granulate bilden. Spaltproduktlösungen aus der Aufarbeitung oxidischer Brennstoffe nach dem Purex-Verfahren bilden dagegen nicht ohne weiteres feste Granulate.

Die Materialanforderungen von Walzentrocknern und Drehrohröfen entsprechen etwa denen der Kalzinatoren, bezüglich der Abgasbehandlung sind sie einfacher. Ein wesentlicher Nachteil sind dagegen die rotierenden Teile, deren Wartung und Auswechslung in großen, hochaktiven Anlagen besondere Probleme mit sich bringen.

So läßt sich feststellen, daß mehrere Verfahren entwickelt wurden, die trotz einiger Nachteile im Prinzip alle zur Verfestigung von Spaltproduktlösungen geeignet sind. Keines davon wurde aber bisher im ausreichenden Maßstab und über ausreichende Zeiten bzw. mit voll repräsentativen Lösungen erprobt.

2. Mittelaktive Abwässer

Wie wir bereits gesehen haben, besitzen die mittelaktiven Abwässer sowohl bezüglich ihrer Volumina als auch bezüglich ihres Gehaltes an Spaltprodukten und Aktiniden große Bedeutung.

Mittelaktive Abwässer wurden in den USA in den älteren Wiederaufarbeitungsanlagen größtenteils einfach in Sickerbrunnen eingeleitet (Abb. 7). In Windscale werden mit den mittelaktiven Abwässern recht große Aktivitätsmengen in das Meer abgeleitet. Ähnliches gilt, wenn auch in kleinerem Umfang, für Cap La Hague. In Marcoule werden die Abwässer einer chemischen

Fällung unterzogen. Trotzdem gelangen noch beachtliche Aktivitäten in die Rhône. Die mittelaktiven Abwässer der Eurochemic wurden durch Verdampfen eingeengt, die Konzentrate werden bis jetzt lediglich gelagert.

Eine sehr weitgehende Reinigung erfahren die radioaktiven Abwässer in Karlsruhe. Dort werden die schwach- und mittelaktiven Abwässer aus der WAK zusammen mit den Abwässern des Kernforschungszentrums eingedampft und die Konzentrate in Bitumen fixiert. Bisher wurden rd. 2.000 m³ mittelaktiver Abwässer verarbeitet, von denen der größte Teil aus der WAK stammte. Dabei konnte die Ableitung auf 100 - 600 mCi/Jahr gehalten werden. Dies ergibt eine Belastung des Rheins mit ca. 10^{-11} Ci/m³, das ist etwa 1/1000 der zulässigen Aktivitätskonzentration großer Vorfluter.

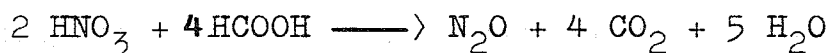
Trotz dieser positiven Bilanz können wir mit dem bisher angewandten System für eine große Wiederaufarbeitungsanlage noch nicht voll zufrieden sein. Die mit der bei uns angewandten zweifachen Verdampfung erzielten Dekontaminationsergebnisse waren, wie die genannten Werte zeigen, sehr gut. Auch noch höhere Dekontaminationsfaktoren können im Prinzip erbracht werden, erfordern allerdings noch gewisse Entwicklungsarbeiten und einen zusätzlichen Aufwand.

Wartung und Reparaturen an den bisher eingesetzten Brüdenkompressionsverdampfern führten zu relativ hohen Strahlenbelastungen für das Personal. Deshalb wurde für die mittelaktiven Abwässer ein neuer Verdampfer installiert, der zur Vermeidung wartungs- und reparaturbedürftiger Anlagenteile mit Naturumlauf und Dampfstrahlförderung arbeitet und in der gesamten Konzeption auf den Betrieb im höher aktiven Bereich ausgelegt ist. An dieser Stelle möchte ich darauf hinweisen, daß es im höher aktiven Bereich nicht damit getan ist, geeignete Verfahren zu entwickeln, sondern daß auch die Apparaturen so ausgelegt bzw. entwickelt werden müssen, daß sie den durch hohe Strahlenfelder erschwerten Bedingungen

hinsichtlich Betrieb, Wartung und Austausch gerecht werden. In dieser Hinsicht ist eine regelrechte "Anlagenphilosophie" zu entwickeln.

Die Erfahrungen mit der Fixierung der Konzentrate in Bitumen waren überwiegend sehr gut. Der Prozeß ist verfahrenstechnisch recht einfach, das Endprodukt hat ein sehr geringes Volumen und ist gut auslaugbeständig. Bisher wurden rd. 30.000 m³ Verdampferkonzentrat zu 1600 Fässern Endprodukt verarbeitet. Es zeigte sich allerdings, daß thermisch instabile Verbindungen, wie sie aus dem Wiederaufarbeitungsprozeß, der Dekontamination, dem Labor und aus Antischaummitteln in den Abfall gelangen, in den rd. 180° heißen und nur langsam abkühlenden Endprodukten zu exothermen Reaktionen führen können. Hierzu läuft bei uns ein umfangreiches Versuchsprogramm. Weiterhin zeigten unsere Experimente und Rechnungen, daß aus der Sicht der Langzeitlagerung hinsichtlich der maximal zulässigen Aktivitätsgehalte echte Grenzen gegeben sind, die z.T. auch von den Lagerbedingungen abhängen.

Bisher wird die gesamte Salpetersäure vor der Verdampfung und Bituminierung neutralisiert, was den Salzgehalt der Abwässer entsprechend erhöht. Wir arbeiten deshalb zur Zeit an der Übertragung des von uns für HAW entwickelten Verfahrens zur Zerstörung von Salpetersäure, das nach der Bruttoformel



abläuft, auf MAW. Dabei entstehen nur gasförmige Endprodukte und Wasser.

Da die mittelaktiven Abwässer zum überwiegenden Teil aus inaktiven Na-Salzen und nur zu einem sehr kleinen aus sonstigen Salzen und Radionukliden bestehen, haben wir Versuche gestartet, die letzteren durch chemische Verfahren von der Hauptmenge der inaktiven Salze abzutrennen. Die aktive

Fraktion könnte dann dem hochaktiven Abfall zugeschlagen, der Rückstand als schwachaktiver Abfall relativ einfach weiterverarbeitet werden. Die bisher erzielten Dekontaminationsfaktoren liegen bei 100 und darüber, was für diesen Zweck ausreichen würde.

Eine interessante Alternative für die MAW-Behandlung bietet sich an, wenn es möglich wird, in unmittelbarer Nähe der Wiederaufarbeitungsanlage eine Salzkaverne herzustellen. Dann könnten im Prinzip die Abwasserkonzentrate nach Zusatz anorganischer Stoffe, z.B. hydraulischer Bindemittel, direkt in die Salzkaverne eingeleitet werden und darin erhärten.

Ein derartiges Verfahren könnte bei positivem Ausgang die Behandlung der mittelaktiven Abwässer wesentlich vereinfachen und verbilligen. Wenn es gelingt, einen auslaugbeständigen, stabilen, monolytischen Block zu erzeugen, sollte auch ein hohes Maß an Sicherheit erzielt werden. Allerdings muß das Verfahren erst noch entwickelt und kritisch geprüft werden. Arbeiten in dieser Richtung werden wir in Kürze beginnen.

3. Schwachaktive Abwässer

Die Dekontamination schwachaktiver Abwässer durch Brüdenkompressionsverdampfung hat sich gut bewährt. Brüdenkompressionsverdampfer brauchen wegen der Verwendung ihres eigenen, durch Kompression verdichteten Dampfes als Heizmedium weder Frischdampf für die Verdampfung noch Kühlwasser für die Kondensation. Die beim MAW genannten Strahlenschutzprobleme treten bei optimaler Auslegung nicht auf.

In den Anlagen der Abteilung Dekontaminationsbetriebe des KFZ wurden bisher > 70.000 m³ schwachaktiver Abwässer verdampft.

4. Organische Lösungsmittel

Zur Behandlung der TBP-haltigen organischen Lösungsmittelabfälle haben wir ein Verfahren entwickelt (Abb. 8), bei dem nach einer Sodawäsche das TBP durch Zugabe von konzentrierter Phosphorsäure als H_3PO_4 -Addukt (schwere Phase) vom leichteren Kerosin getrennt wird. Das Addukt wird durch Wasser wieder aufgespalten; die verdünnte Phosphorsäure wird als MAW behandelt, das TBP verfestigt und als Abfall beseitigt. Das Kerosin ist nach Reinigung über Absorbiermaterial wieder verwendbar. Der Hauptteil der Radionuklide geht in die Sodalösungen und die Phosphorsäure.

Nach dem beschriebenen Verfahren wurden in Karlsruhe bisher rd. 100 m^3 TBP-haltiges Kerosin verarbeitet, davon die letzten 15 m^3 in einer neuen, verbesserten Apparatur. Arbeiten zur Reinigung des TBP mit dem Ziel der Wiederverwendung sind angelaufen.

5. Brennelementhülsen

Die in der WAK anfallenden Brennelementhülsen werden in Fässer gefüllt, mit Zementbrei übergossen und in die Asse zur Endlagerung gebracht. In manchen Ländern werden sie im Boden vergraben, in anderen bisher nur in Wasserbecken gelagert. Große Probleme bietet die Behandlung und Beseitigung der Hülsen nicht. Es wird allerdings zu prüfen sein, ob im Hinblick auf ihren relativ hohen absoluten Gehalt an Plutonium auf längere Sicht dessen Abtrennung notwendig werden könnte. Wegen des relativ unkomplexen Systems wäre hier eine Pu-Abtrennung einfacher als bei vielen anderen Abfällen. In den USA laufen Versuche zur Dekontamination der Hülsen von Pu und zum induktiven Schmelzen von Struktur- und Hülsenmaterial.

6. Brennbare feste Abfälle

Brennbare radioaktive Abfälle werden in Karlsruhe von der ADB seit 10 Jahren durch Veraschung in ihrem Volumen eingengt und die Asche durch Vermischen mit Beton in ein endlagerfähiges Produkt überführt. Bisher wurden $> 5.800 \text{ m}^3$ feste und flüssige Abfälle verascht. Einen Überblick über die Betriebsergebnisse gibt die Tabelle 9. Durch einen versuchsweise in Betrieb genommenen, den Filterkerzen nachgeschalteten Naßwäscher, konnten die Abscheidegrade der Abluftreinigung noch um den Faktor 10 erhöht werden.

Nicht verbrannt wurden bisher Abfälle mit einer Dosisleistung $> 500 \text{ mr/h}$ und mit Pu-Gehalten $> 10 \text{ mg/200 l}$. Die erstgenannten machen in der GfK $< 1 \text{ ‰}$ des Gesamtanfalls aus und rechtfertigten bisher den Bau einer abgeschirmten Anlage nicht. In einer großen Wiederaufarbeitungsanlage werden die Verhältnisse ähnlich sein.

Da in einer großen Wiederaufarbeitungsanlage der Pu-Gehalt der Abfälle deutlich höher liegen wird als im Kernforschungszentrum Karlsruhe, wird ein konsequenter Ausbau der jetzigen Schleusen und der Dichtheit der Anlage erforderlich. Weiterhin ist die jetzige Abgasanlage um Einrichtungen zur Abscheidung von Ru und Cs zu ergänzen.

Schließlich ist auch noch zu prüfen, ob der in Karlsruhe laufende und gut bewährte Veraschungsofen eine Maßstabsvergrößerung von 1:3 erlaubt, die erforderlich wäre, um mit 2 parallelen Einheiten die große Wiederaufarbeitungsanlage zu entsorgen. Daneben ist eine spezielle Veraschungsanlage für stark Pu-haltige Abfälle erforderlich.

7. α -Abfälle

In einer Wiederaufarbeitungsanlage, ganz besonders wenn sie zusammen mit der Fertigung Pu-haltiger Brennelemente betrieben wird, fallen mit Abstand die meisten Aktiniden-haltigen Abfälle der gesamten Kerntechnik an. Alle Abfälle aus diesen Anlagen enthalten zumindest Spuren von α -Strahlern. Wegen ihrer hohen Radiotoxizität und langen Halbwertszeiten stellen die α -Abfälle besonders hohe Anforderungen an Verarbeitung und Endlagerung. Deshalb sollen an dieser Stelle einige grundsätzliche Bemerkungen zu ihrer Problematik gemacht werden.

Da der gefährlichste α -Strahler, nämlich das Radium, relativ weitverbreitet in der Natur vorkommt, liegt es nahe, sich bei der Beurteilung und Klassifizierung der α -Abfälle an der Natur zu orientieren (Abb. 10).

Ein Uranerz mit einem Urangehalt von 3 % hat eine Ra-226-Aktivität von 10 nCi/g. Die relative Radiotoxizität der in den Abfällen vorliegenden Aktiniden ist aber - auf Wasser bezogen - um rund den Faktor 500 niedriger als die des Radiums. Deshalb haben radioaktive Abfälle mit einem Aktinidengehalt von 5 μ Ci/g theoretisch das gleiche Radiotoxizitätspotential wie ein 3 %-iges Uranerz.

In der Praxis müßte es noch viel niedriger liegen, da die radioaktiven Abfälle in stabilen, wasserunlöslichen Matrixmaterialien eingebunden sind, aus denen besonders die Radionuklide auch über lange Zeiträume nur äußerst langsam ausgelaugt werden können. Darüber hinaus werden sie in gut vom Biozyklus isolierten tiefen geologischen Schichten gelagert, während sich Uranerzlagerstätten häufig in oberflächennahen Formationen finden, wo sie der Auslaugung durch Grund- oder Oberflächenwasser ausgesetzt sind.

Sollten trotzdem im Laufe sehr langer Lagerzeiten Aktiniden in den Boden gelangen und mit Wasser in Berührung kom-

men, werden sie durch Adsorptionsvorgänge im Boden weitgehend zurückgehalten. Arbeiten über die Pu-Wanderung im Boden, die bei uns und an anderen Stellen durchgeführt wurden, haben gezeigt, daß dieses Nuklid, wenn es in Form kleinster PuO_2 -Partikelchen vorliegt, im Laufe von 100 Jahren nur in der Größenordnung von wenigen Zentimetern bis Metern wandert. Diese Wanderungsgeschwindigkeit ist noch um den Faktor 100 geringer, wenn das Plutonium in Form von $\text{Pu}(\text{NO}_3)_4$ in den Boden gelangt. Außerdem werden die Aktiniden bei der Wanderung im Boden sehr stark verdünnt; auf einer Strecke von 100 Metern um mindestens den Faktor 10^4 .

Auf eindrucksvolle Weise zeigt ein vor kurzem entdecktes und bisher nur wenig bekanntes Naturereignis, daß die bisher aufgrund von Messungen im Labor, an fall-out-Proben und an Sickerbrunnen für radioaktive Abwässer errechneten Werte für die Wanderung von Radionukliden im Boden sehr konservativ sind. Vor rd. $1,7 \cdot 10^9$ Jahren lief in Oklo (Gabun, Afrika) in einem relativ hochprozentigen Uranerz eine Kettenreaktion ab, bei der in einem Zeitraum von etwa 100.000 Jahren ca. 200 kg U-235 gespalten und eine Energie von rd. 10^9 MWh freigesetzt wurde. Die bisherigen Untersuchungen zeigten, daß selbst unter den dort vorliegenden tropischen Verhältnissen die schweren α -aktiven Nuklide über das halbe Erdalter praktisch an Ort und Stelle fixiert geblieben sind.

Aufgrund dieser Betrachtungen erscheint es gerechtfertigt, als spezielle α -Abfälle nur solche anzusehen, deren α -Gehalt $> 5 \mu\text{Ci/g}$ liegt. Betrachten wir die Tabelle 10, insbesondere die letzte Spalte, unter diesen Gesichtspunkten, so sehen wir, daß nur noch die hochaktiven Gläser, sowie die geringen Mengen an Abwässern und brennbaren Abfällen aus dem tail-end der Wiederaufarbeitung und aus der Brennelementfertigung als spezielle α -Abfälle anzusehen sind, wenngleich vom Standpunkt des Gesamt- α -Gehaltes auch einige weitere Abfallströme Beachtung verdienen.

Wenn es sich endgültig bestätigt, daß die Gläser durch die α -Strahler keinen ernsthaften Schaden erleiden, spricht im Prinzip nichts dagegen, auch die flüssigen α -Abfälle aus dem tail-end und der Brennelementfabrikation in entsprechender Weise zu verfestigen. So bleibt als akutestes α -Problem das der brennbaren α -Abfälle. Sie enthalten mehr als 30 % der gesamten Pu-Verluste.

An vielen Stellen der Welt werden Versuche zur Verbrennung von α -Abfällen durchgeführt. Auf die einzelnen z.T. recht unterschiedlichen Verfahren einzugehen, erlaubt die Zeit nicht. Wir selbst bevorzugen das Verfahren der Naßverbrennung, d.h. der Oxidation in einem Gemisch Schwefelsäure/Salpetersäure. Es ist nicht sehr kompliziert und erlaubt eine prinzipiell einfache und fast vollständige Rückgewinnung des Plutoniums. Diese Arbeiten sollen künftig in direkter Zusammenarbeit mit den Hanford Engineering and Development Laboratories durchgeführt werden. Weiterhin sind wir an der Entwicklung einer aktiven Prototypanlage für die Eurochemic beteiligt.

8. Endlagerung und Dekontamination

Die Zeit erlaubt es ebenfalls nicht, über unsere Arbeiten zu den kerntechnischen Fragen der Endlagerung radioaktiver Abfälle zu berichten. Obzwar sie bisher ausschließlich auf das Salzbergwerk Asse ausgerichtet waren, bringen sie für die große Wiederaufarbeitungsanlage wertvolle Ergebnisse.

Weiterhin möchte ich erwähnen, daß wir im Rahmen des Projektes Nukleare Sicherheit Fragen der Gerätedekontamination bearbeiten, die deshalb auch für Wiederaufarbeitungsanlagen von großer Bedeutung sind, weil bisher ein großer Teil der hier anfallenden schwach- und mittelaktiven Abwässer aus der Dekontamination stammt.

IV. Zusammenfassung

Abschließend kann festgestellt werden, daß mit dem Eintritt in die großtechnische Wiederaufarbeitung auch die Abfallbehandlung in eine neue Größenordnung tritt. Wie aus dem Vortrag zu ersehen war, sind für alle Abfallarten grundsätzlich Lösungen vorhanden. Sehr viele Verfahren befinden sich aber erst im inaktiven oder aktiven Labor- bzw. Technikumsmaßstab, so daß noch sehr viel zu tun bleibt, um sie in der erforderlichen kurzen Zeit zur großtechnischen Reife zu bringen.

Daneben ist auch noch viel zu tun, um Verfahren, die zwar ausreichend aber nicht voll befriedigend sind, noch weiter zu verbessern, um auf längere Sicht zu einem wirklich optimalen Abfallsystem zu gelangen.

Anfall an radioaktiven Abfällen in einer 1500 jato-Wiederaufarbeitungsanlage

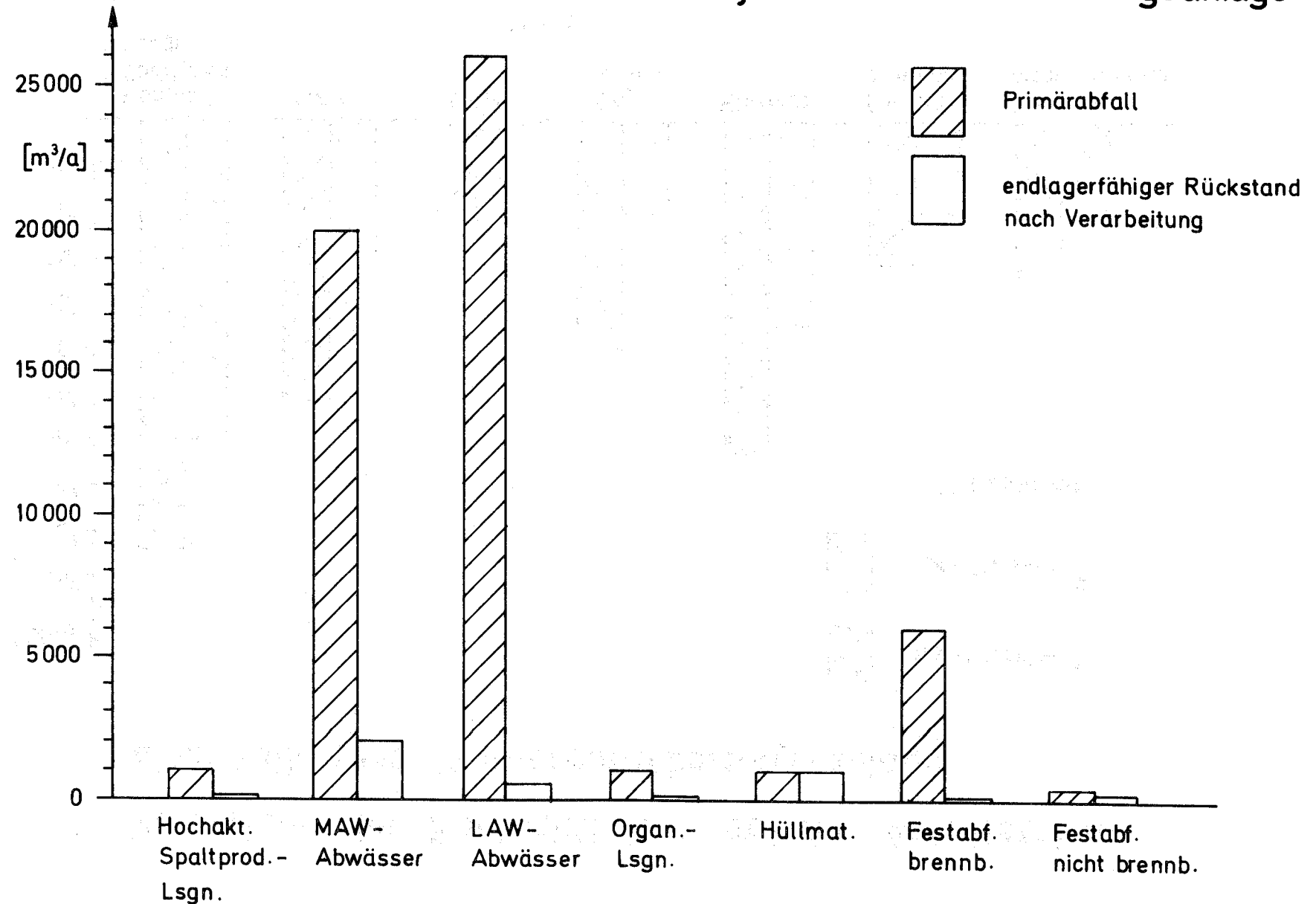


Abb. 1

Verteilung der Radioaktivität auf die Abfallströme einer 1.500 jato -Wiederaufarbeitungsanlage

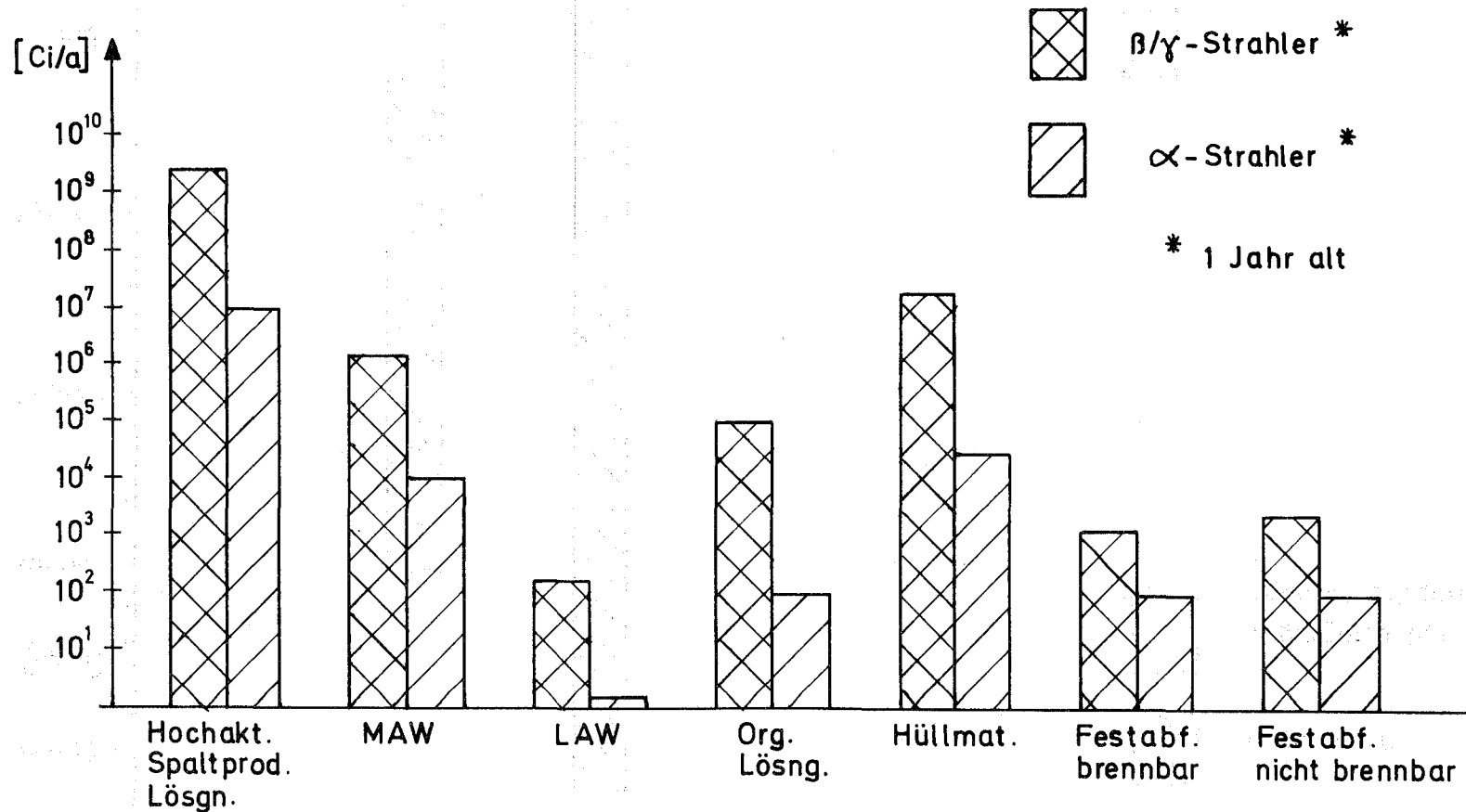


Abb.2

HAW - Tanklagerung

Ort	Behälter	Volumen [m ³]	Anzahl	max. Alter [a]	Leckagen
Hanford	norm.-Stahl in Betonwanne	3800	20	15 - 20	500 m ³
		2000	120	25 - 30	1750 m ³
Sav. River	norm.-Stahl in Betonwanne	4000	14	15 - 20	250 m ³
Idaho Falls	VA-Stahl	1100	10	13 - 20	keine
		5000	7	20	
Marcoule	VA-Stahl, dopp.wdig	60	9	} 5 - 7	keine
La Hague	VA-Stahl, dopp.wdig	90	2		
	VA-Stahl, dopp.wdig	120	2		
Windscale	VA-Stahl, dopp.wdig	150	1	} 10 - 12	keine
Dounreay	VA-Stahl, dopp.wdig	70	8		
	VA-Stahl, dopp.wdig	400	1		
Mol	VA-Stahl, dopp.wdig in Stahlwanne	40	2	} 10	keine
		200	2		
Karlsruhe	VA-Stahl, dopp.wdig in Stahlwanne	70	2	5	keine

Abb. 3

Übersicht über bisher hergestellte aktive Gläser

Land u. Ort	Glasart	Menge [kg]	Herst- jahr	Spez. Aktivität		Akku­mulierte Dosis	
				β/γ [Ci/g]	α	β/γ [rad/g]	α
Frankreich Marcoule	Borosilikatglas	10^4	ab 1969	0,4	$(2 \cdot 10^{-3})$	10^{10}	10^7
G.B. Harwell	Borosilikatglas aus FINGAL	$4,2 \cdot 10^1$	1966	0,35	$(2 \cdot 10^{-3})$	$2 \cdot 10^{10}$	10^{10}
USA Hanford	Phosphatglas	$1,8 \cdot 10^3$	1970	10,3	$1,1 \cdot 10^{-2}$	10^{11}	10^9
	Borosilikatglas	$2,2 \cdot 10^3$	1970	9,3	$1,0 \cdot 10^{-2}$	10^{11}	10^9
BRD KFA Gelsenberg GfK	Borosilikatglas	4	1975	1 - 5	$(1,6 \cdot 10^{-2})$		
	Phosphatglas	4,5	1975	1 - 5	$(1,6 \cdot 10^{-2})$		
	α -Borosilik.glas $^{242}\text{Cm}/^{241}\text{Am}$	kl. Proben	1975	-	2,7	-	$1,5 \cdot 10^{11}$
Hochaktives Borosilikatglas aus LWR - WA (33000 MW d/t 20 Gew. % Sp. Pr., 5a)				3,45	$1,1 \cdot 10^{-2}$	$\geq 3 \cdot 10^{13}$	$> 2 \cdot 10^{11}$

Abb. 4

Überblick über Verfahrenskombinationen zur Verfestigung von Spaltproduktlösungen

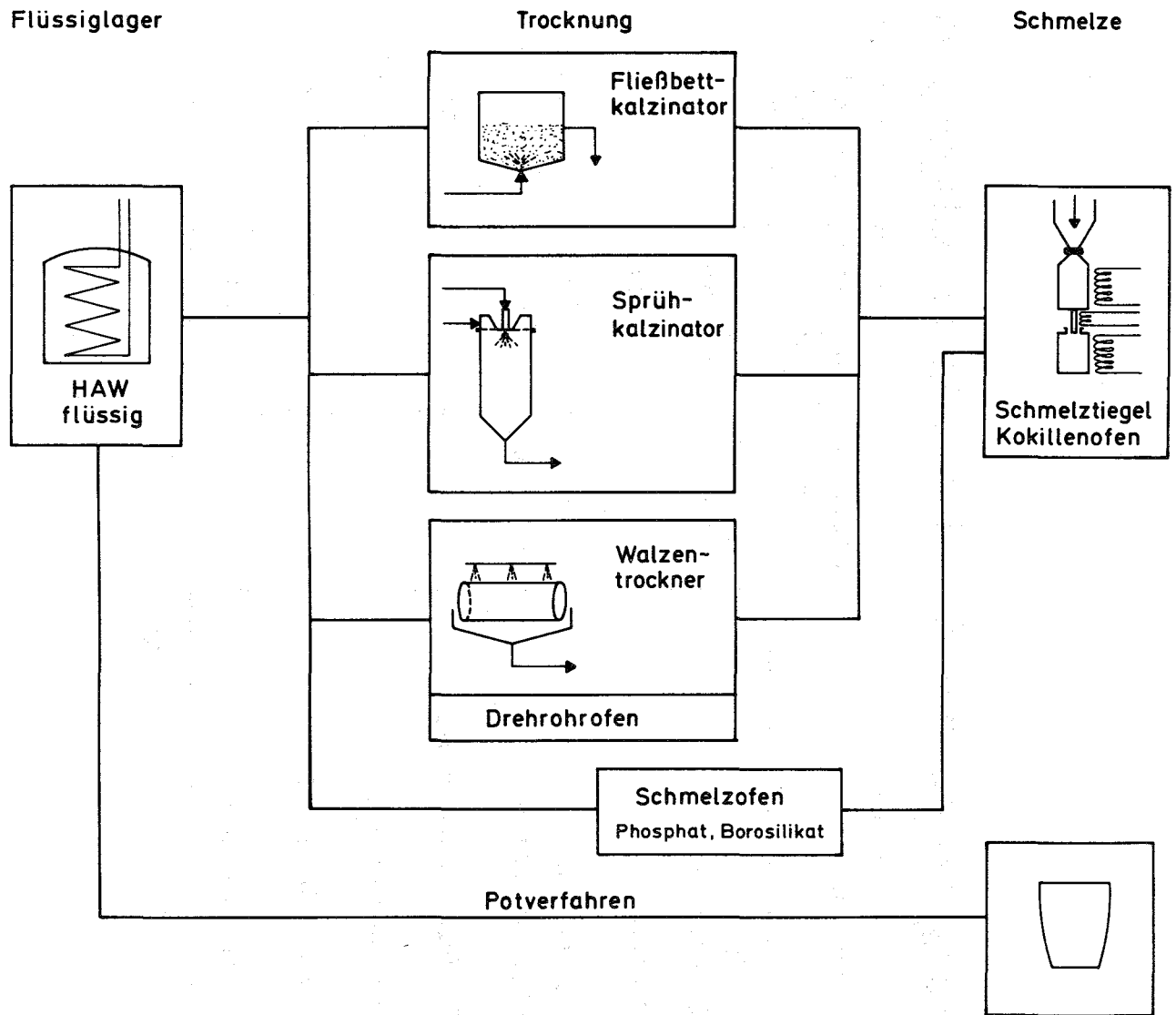


Abb.5

Entwicklungsstand der Spaltproduktverfestigungsverfahren

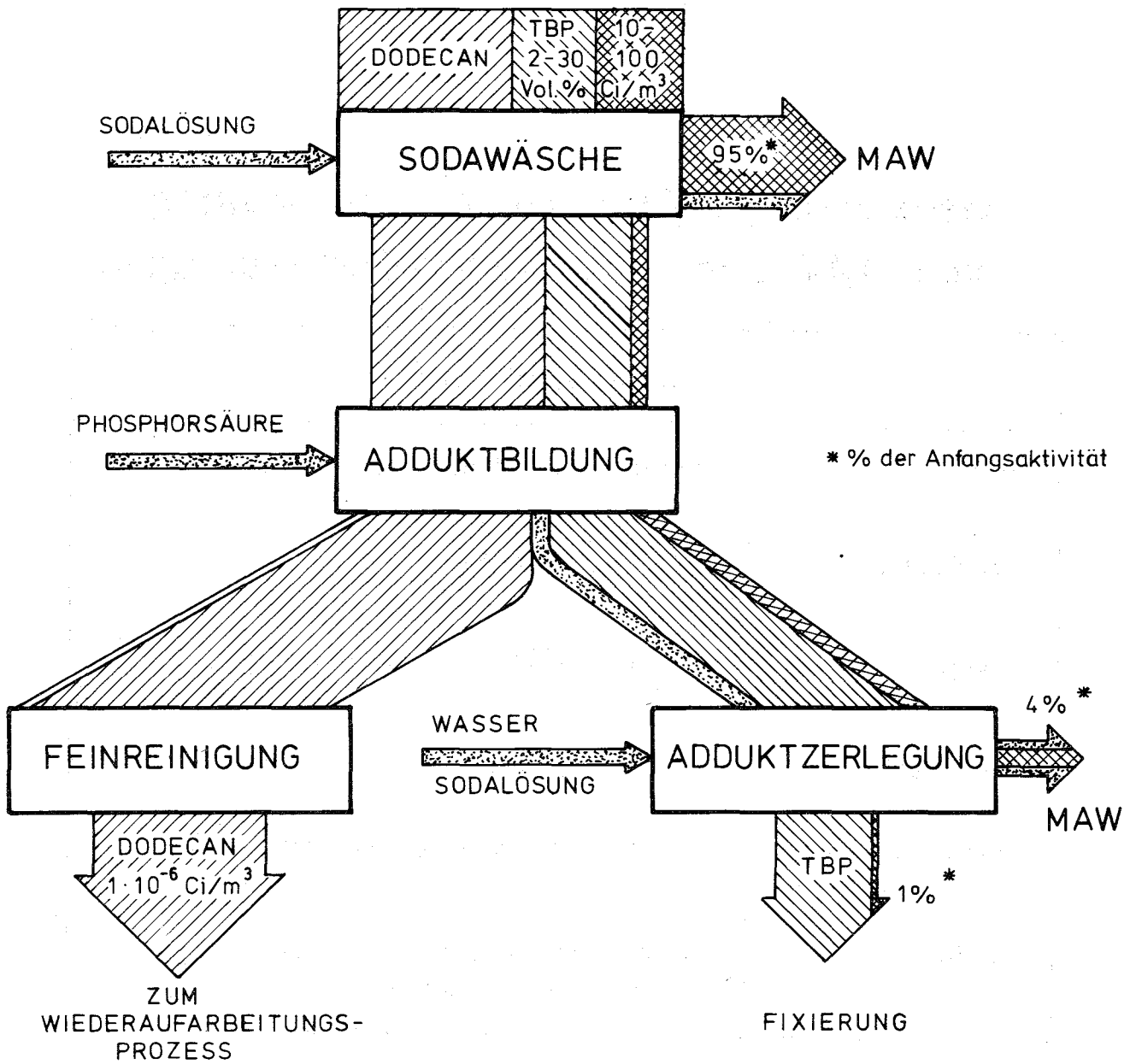
Ort	Verfahren	Kapazität [l/h]	Durchsatz Σ [l]	Ges. Aktivität [MCi]	Spez. Aktivität Endprodukt [Ci/l]
Marcoule	PIVER	15 - 20	25000	4	1100
	Drehrohrofen	50	200000	-	-
Harwell	FINGAL	10	500	0,03	≤ 980
Hanford	Sprühkalzinator	10	7300	24,7	≤ 52000
	Phosphatglasverfahren	10 - 15	9100	19,1	≤ 40000
Idaho	Fließbettkalzinierung	300	$1,2 \cdot 10^7$	80	24
KFA	Walzentrockner	1	10	0,001	3000 - 10000
Gelsenberg	Phosphatglasverfahren	2	65	0,03	3000 - 15000
GfK	Sprühkalzinator	30	5000	-	-

Abb. 6

Gegenwärtige Verfahren zur Behandlung von MAW aus Wiederaufarbeitungsanlagen

Ort	Angewandte Verfahren
Hanford	Versickern im Boden
Windscale	Ableitung in das Meer
Marcoule	Dekont. Abwässer durch chem. Fällung
La Hague	" " " " "
Eurochemic	Verdampfung, Lagerung der Konzentrate
Karlsruhe	Verdampfung, Destillate als LAW, Konzentrate in Bitumen

Abb. 7



PRINZIP DER BEHANDLUNG TBP-HALTIGER LÖSUNGSMITTELABFÄLLE

Abb. 8

Betriebsdaten der Veraschungsanlage Gfk

Betriebszeit :	9,5 Jahre
Durchsatz :	> 5800 m ³
Volumenreduktion :	1 : 80
Max. Dosisleistung an der Oberfläche der Abfälle :	500 mr/h
Max. Pu-Gehalt der Abfälle :	10 mg/ 200 l
Mittl. Aktivitätskonzentration in der Abluft :	$\left\{ \begin{array}{l} 4 \cdot 10^{-10} \text{ Ci/m}^3 (\beta/\gamma) \\ 2 \cdot 10^{-12} \text{ Ci/m}^3 (\alpha) \end{array} \right.$

Abb. 9

α-Abfälle einer 1500 jato -Wiederaufarbeitungs- anlage mit Brennelementfertigung

Abfallart		Primär- volumen [m ³ /a]	Pu- Verlust [kg/a]	Gesamt - α-Aktivität [Ci/a]	α-Konzentration im Endprodukt [Ci/t]	V*
WA	Hochaktive Spaltproduktlösung	1000	50	4 000 000	$1,5 \cdot 10^4$	$3 \cdot 10^3$
	BE-Hülsen	1000	40	20 000	10	2
	MAW-flüssig	25 000	30	10 000	3	
	MAW/LAW Festabfälle	8 000	5	2 000	5	1
	α-Abfälle-flüssig	1 000	5	2 000	$5 \cdot 10^2$	$1 \cdot 10^2$
	α-Abfälle-flüssig	250	5	2 000	$5 \cdot 10^2$	$1 \cdot 10^2$
BE	α-Abfälle: nicht brennbar	100	5	2 000	10	2
	flüssig	500	40	50 000	$5 \cdot 10^2$	$1 \cdot 10^2$
	brennbar	2 000	120	200 000	$5 \cdot 10^2$	$1 \cdot 10^2$
Summe		38 850	300	4 300 000		

* Vielfaches der Radiotoxizität
von 3% U-Erz

Abb. 10

Die Head-End-Abgasreinigung

Die Forschungs- und Entwicklungsarbeiten der Gesellschaft für Kernforschung zur Reinigung der Abgase aus Wiederaufarbeitungsanlagen laufen, von Ausnahmen abgesehen, erst seit ein bis zwei Jahren, so daß man sich fast zwangsläufig auf grundsätzliche Überlegungen bzw. geplante Vorhaben beschränken muß. Ferner soll hier nur die Problematik der Reinigung der Abgase aus dem Head-End-Bereich behandelt werden.

Was ist das "Head-End"?

Das Head-End (Abb. 1) wörtlich übersetzt, Kopf-Ende, stellt denjenigen Anlagenteil einer Wiederaufarbeitungsanlage dar, in dem nach konventioneller Darstellung die abgebrannten Brennelemente ankommen, mechanisch geöffnet und der Brennstoff, das Urandioxid, in Säure gelöst wird. Bei diesen Vorgängen werden die in den Brennelementen gespeicherten gasförmigen sowie ein Teil der leichtflüchtigen Spaltprodukte in die Gasphase freigesetzt. Bezieht man in die Aufgabenstellung des Head-End die Rückhaltung eben dieser radioaktiven Schadstoffe mit ein, so ergibt sich als weitere Aufgabe des Head-End eine möglichst weitgehende Abgasreinigung, sowie zur Vermeidung zusätzlicher Gasreinigungsschritte in anderen Anlagenteilen die Bereitstellung einer jod- und tritiumfreien Brennstofflösung. An die Wastelagerung gibt das Head-End den das Tritium enthaltenden hochaktiven Waste, überschüssiges tritiumhaltiges Wasser sowie Jod und Krypton und die Brennelementhülsen ab.

Innerhalb des Head-End werden im wesentlichen beim Schneiden der Brennelemente und beim Lösen des Brennstoffs die in Tab. 1 zusammengestellten Schadstoffmengen freigesetzt.

Außer den aufgeführten radioaktiven Schadstoffen werden dabei in einer großen Wiederaufarbeitungsanlage mit einem Durchsatz von 1400 Tonnen Brennstoff pro Jahr noch etwa 600 Tonnen Stickoxid pro Jahr freigesetzt.

Aufgabenstellung und Verfahrensauswahl für die Abgasreinigung

Hauptaufgabe der Abgasbehandlung ist, die radioaktiven Schadstoffe im Abgas, aber auch die Stickoxide weitgehend zu entfernen. Führt man die entsprechenden Reinigungsschritte in der Reihenfolge große Mengen vor kleinen, höher toxische vor weniger toxischen durch (vgl. Tab. 1) und unterstellt zunächst, daß die Tritiumrückhaltung keine besonderen zusätzlichen Maßnahmen erfordert, so ergibt sich die in der Abb. 2 angegebene Reihenfolge der Prozeßschritte.

Im Unterteil von Abb. 2 sind Alternativen für die verschiedenen Rückhaltungsschritte angeführt, wobei nur solche ausgewählt wurden, die entweder bereits in kerntechnischen Anlagen eingesetzt bzw. für solche projektiert werden, oder solche, die in sonstigen technischen Anlagen in größerem Umfang verwendet werden, wobei folgende Festlegungen getroffen wurden.

Für die Stickoxidentfernung wurde die absorptive Wäsche ausgewählt	- ein üblicherweise verwendeter Verfahrensschritt in WA-Anlagen, dessen Technologie aus der Salpetersäureherstellung stammt
--	---

Für die Aerosolentfernung werden Trägheitsabscheider als Grobfilter und Faserfilter als Feinfilter eingesetzt.

Die Entfernung des Jods erfolgt durch Adsorption an silberimprägniertem Trägermaterial.

Für die Krypton-Abtrennung wird das Verfahren Tieftemperaturrektifikation benützt

- das entspricht etwa den üblichen Maßnahmen in Gasreinigungsanlagen.

- die bislang in kerntechnischen Anlagen eingesetzten Verfahren - vornehmlich Wäschen - liefern keine befriedigenden Dekontaminationsfaktoren; Die Dekontaminationsfaktoren betragen etwa 10, zudem muß noch eine Verarbeitung des Jods in eine endlagerfähige Form nachgeschaltet werden.

Im Unterschied zu anderen Methoden läßt die Adsorption an silberimprägnierten Materialien insbesondere auch für organische Jodverbindungen die höchsten Dekontaminationsfaktoren erwarten. (Über die Vorteile des vorgeschlagenen Verfahrens, Adsorption an dem Adsorbermaterial AC 6120, siehe Aufsatz von DCH J. Wilhelm)

- Hierfür bestehen außer theoretischen Überlegungen sowie den Betriebserfahrungen mit einer kleinen Krypton-Gewinnungsanlage in

Idaho-Falls keine Erfahrungen in Wiederaufarbeitungsanlagen. Die Festlegung auf die Tieftemperaturrektifikations-Technik erfolgte einerseits, da sie im Rahmen der Luftzerlegungstechnologie weit entwickelt ist, zum anderen, da sie die höchste Produktkonzentration und damit das kleinste zu lagernde Wastevolumen, sowie die geringsten Korrosionsprobleme bei der Lagerung erwarten läßt.

Das Apparateschema der Head-End Abgasbehandlung

Neben der grundsätzlichen Festlegung des Verfahrensablaufes beeinflussen noch die Erfordernisse bzw. Eigenschaften der einzelnen ausgewählten Prozeßschritte das Gesamtschema der Abgasreinigung. Dabei müssen die Betrachtungen wegen der hohen Anforderungen an die Gasqualität von den Erfordernissen der Endstufe der Abgasreinigung, der Kr-Abtrennung mit Hilfe der TTR ausgehen.

Die Kr-Abtrennung:

In der (den) Tieftemperaturrektifikationskolonne(n) stören zunächst alle jene Gasbestandteile, die unter den in der Kolonne herrschenden Temperaturen (90 - 160 K) ausfrieren und somit zu Verstopfungen in Leitungen und Kolonnen und damit zu Betriebsstörungen führen können.

Zusätzlich ist noch der Sauerstoff aus dem Rohgas zu entfernen, der im Falle seiner Anwesenheit in der Tieftemperaturrektifi-

kations-Kolonnen unter der Strahleneinwirkung des Krypton-85 Ozon bildet, das einerseits nach entsprechender Akkumulation in den Kolonnen zu Sicherheitsproblemen führen kann.

Die angesprochenen Reinigungsaufgaben werden mit zwei vor die Tieftemperaturrektifikation geschalteten Prozessschritten durchgeführt (Abb. 3).

- a) Die gleichzeitige Reduktion von Stickoxiden und Sauerstoff mit Wasserstoff in einem thermischen (oder katalytischen) Reaktor und
- b) durch Adsorption der übrigen störenden Komponenten an Molekularsieben.

Das so vorgereinigte Abgas wird dann in einer ersten Tieftemperaturrektifikations-Stufe in eine Edelgas-, Krypton-Xenon-, sowie in die Trägergasfraktion aufgeteilt. Die Edelgasfraktion kann bzw. wird in einer zweiten Kolonne weiter aufgetrennt, wobei es möglich ist, für Krypton Produktkonzentrationen $>80\%$ zu erreichen. Die zu erwartenden Dekontaminationsfaktoren des Rektifikationsschritts müßten aufgrund theoretischer Überlegungen >1000 sein.

Jod- und Aerosolfilterung:

Hinsichtlich der Jodrückhaltung und Aerosolfilterung sei nochmals bezüglich der Details auf den Aufsatz von DCH J. Wilhelm hingewiesen und hier nur der prinzipielle Aufbau der Aerosolfilterstrecke vorgestellt. Die aus den vorausgehenden Schritten kommenden Schwebstoffe umspannen im allgemeinen einen weiten Partikelgrößenbereich und können sowohl in Form von Flüssigkeitströpfchen als auch als Feststoffpartikel auftreten. In der Reini-

gungsstrecke (Abb. 4) haben die ersten beiden Schritte die Aufgabe, eine weitgehende Abscheidung von flüssigen Schwebstoffen und das nachgeschaltete HEPA-Filter, insbesondere die Feststoffaerosole abzuscheiden.

Die Stickoxidrekombination:

Die Entfernung der Stickoxide wird aus mehreren Gründen durchgeführt. Zunächst stellen sie konventionelle Schadstoffe dar, wobei allerdings die emittierten Mengen im Vergleich zu anderen Stickoxid-Emissionsquellen sehr gering sind. Wesentlichere Gesichtspunkte sind, daß sie einerseits bei einigen Reinigungsschritten, insbesondere bei der Krypton-Abtrennung stören und, daß, da insgesamt etwa 1/3 der im Brennstoffaufschluß benötigten Salpetersäure zu Stickoxiden zersetzt wird, eine Verringerung des Säureverbrauchs erreicht werden kann. Wesentlicher ist jedoch die damit verbundene Verringerung der insgesamt anfallenden und später zu lagernden Mengen an tritiiertem Wasser.

Da bei der Stickoxidrekombination (Abb. 5) unter den üblichen Betriebszuständen der Waschkolonnen eine Koabsorption des Jods erfolgt, ist zur Gewinnung einer jodfreien Säure eine zweite Kolonne für eine nachgeschaltete Joddesorption vorzusehen. Faßt man all diese jetzt einzeln dargestellten Verfahrensschritte in einem Gesamtschema zusammen, so erhält man das folgende Anlagenkonzept für die Abgasreinigung (Abb. 6).

Stand der Entwicklung:

In der GfK sind für die Untersuchung der damit zusammenhängenden Probleme mehrere Versuchseinrichtungen geplant bzw. bereits im Entstehen. Als erste Versuchseinrichtung wird bis zum 1. Quartal

1976 im IHCH ein Teststand aufgebaut, in dem insbesondere Detailfragen zur Jodfreisetzung aus dem Auflöser, sowie zum Jodverhalten in der Säurerekombination untersucht werden. Daneben werden dort die von LAF entwickelten bzw. vorgeschlagenen Filtersysteme für Jod und Aerosole miterprobt. Diese Anlage umfaßt alle Anlagenteile von Auflöser bis inklusive Jodfilter. Sie soll darüber hinaus später noch durch eine Stickoxid/Sauerstoff-Entfernungsstufe ergänzt werden.

Als zweite Einrichtung entsteht ein Teststand zur Krypton-Abtrennung. Dieser umfaßt die Molsieb-Absorber sowie die beiden Rektifizierkolonnen. Er wird voraussichtlich im 2. Halbjahr 1976 in Betrieb genommen werden. Zusätzlich wird vom LAF ein Teststand geplant, in dem die Prototyp-Aerosol- und Jodfilter einer großen WA kalt erprobt werden sollen.

Als letzter Schritt in der Erprobung dieser Abgasreinigungsstrecke ist ein integraler Test der Abgasstrecke unter aktiven Bedingungen an der WAK vorgesehen. Vorbereitende Arbeiten dafür laufen.

Welche Dekontaminationsfaktoren sind erreichbar?

Insgesamt läßt das vorgestellte Abgasreinigungskonzept für die Head-End-Abgase erwarten, daß im Normalbetrieb die Entfernung von Jod und Krypton mit Sicherheit mit einem Dekontaminationsfaktor $>10^2$ durchgeführt werden kann. Für Aerosole sollte ein Dekontaminationsfaktor $>10^5$ zu erreichen sein (bezogen auf die aus dem Auflöser ausgetragenen Aktivitätsmengen).

Das Schema enthält keine separate Tritiumentfernung. Tritiiertes Wasser (HTO) wird im vorgestellten Reinigungsschema im wesentlichen durch den letzten Kühler vor der Molsiebstrecke entfernt, wobei, bezogen auf die mit Brennelementen ankommende Menge etwa 5 % nach außen abgegeben werden.

Für elementares, gasförmiges Tritium (T_2 oder HT), dessen Freisetzungsgrad beim Schneiden der Brennelemente sowie im Löseprozeß nicht exakt bekannt ist, der jedoch nach amerikanischen Literaturangaben ungefähr 1 % der Gesamtmenge betragen sollte, ist im Rahmen der Stickoxid- und Sauerstoff-Entfernung ein Dekontaminationsfaktor von etwa 20 zu erwarten, so daß auf diesem Weg eine zu vernachlässigende Freisetzung in der Größenordnung von $5 \cdot 10^{-4}$ (DF ~ 2000) der ankommenden Menge erfolgen kann.

Ausblick

Die notwendige Reinigungsaufgabe für die Head-End-Abgase ist somit aller Voraussicht nach lösbar. Man muß jedoch gleichzeitig feststellen, daß die hier vorgestellte Abgasanlage verhältnismäßig aufwendig ist und daß in einer Reihe von Fällen aus Adaptionsschwierigkeiten zwischen einzelnen Verfahrensschritten Kompromisse getroffen werden müssen, die den optimalen Betrieb von einzelnen Reinigungsaufgaben beeinträchtigen.

Längerfristig muß daher der Versuch unternommen werden, die Zahl der Prozeßschritte durch Modifikation bzw. durch Kombination von Einzelschritten zu reduzieren.

Folgende Maßnahmen sind diesbezüglich vorgesehen oder müßten noch in Angriff genommen werden:

- a) Eine Kombination von Stickoxid-Rekombination und Joddesorption
- b) Eine Kombination von Stickoxid-Rekombination und gleichzeitiger Jodabsorption. Beide Möglichkeiten lassen sich durch andere apparative Auslegung der Kolonnen bzw. durch Änderung der Betriebsbedingungen erreichen.

- c) Weiterhin ist die Entwicklung eines Verfahrens zur Entfernung des Ozons aus dem Sumpf der Tieftemperaturrektifikations-Kolonne, als Alternative für eine vorherige Sauerstoff-Entfernung zu beginnen, sowie
- d) die Untersuchung von Alternativverfahren zur Gasfeinreinigung vor der Tieftemperaturrektifikation zu erwägen, wobei unter anderem an die Verwendung von Kühlfallen zu denken ist.

Unter der Annahme, daß die hier angeführten Verfahrensalternativen die entsprechend den theoretischen Voraussetzungen zu erwartenden Wirkungen besitzen, sind eine Reihe von wesentlichen Vereinfachungen in der Head-End-Abgasbehandlung denkbar.

Damit sei angedeutet, daß die Entwicklung der Abgasbehandlung noch ganz am Anfang steht und somit noch ein beachtliches Entwicklungspotential im Hinblick auf optimalere Lösungen dieses sehr wichtigen Problems der Wiederaufarbeitung besteht.

Abb. 1: Das Head-End als der tritium-kontaminierte Eingangsbereich der Kernbrennstoff-Wiederaufarbeitung nach dem Purex-Prozeß

Tab. 1: Die Schadstoff-Freisetzung aus dem Auflöser einer Wiederaufarbeitungsanlage

Abb. 2: Prinzipschema der Auflöser-Abgasreinigung und alternative Reinigungsverfahren (die zum Einsatz vorgeschlagenen Verfahren bzw. Apparate sind unterstrichen)

Abb. 3: Schema der Kr-Abtrennstufe

Abb. 4: Schema der Aerosolfilterstrecke

Abb. 5: Schema der Stickoxidrekombination unter Berücksichtigung der Jodbehandlung für die rekombinierte Säure

Abb. 6: Gesamtschema der für eine große Wiederaufarbeitungsanlage vorgeschlagenen Head-End-Abgasreinigungsstrecke

Schadstofffreisetzung im Head End

	Strahl.	freigesetzte Menge (Ci/a)	MZK Luft (Ci/m ³)	zu erwartende Belastung
a) Tritium	β	$5 \cdot 10^4$	$2 \cdot 10^{-6}$	Ganzkörperbelastung
Krypton	$\beta(\gamma)$	$1,5 \cdot 10^7$	$3 \cdot 10^{-6}$	Hautbestrahlung
Jod (129)	β, γ	60	$3 \cdot 10^{-10}$	Belastung der Schilddrüse
b) Aerosole	β, γ α	$3,4 \cdot 10^4$ $2,2 \cdot 10^2$	$\sim 10^{-9}$ $6 \cdot 10^{-13}$	innere Organe und Knochen

Abbrand: $\sim 35\,000\text{ MWd/t}$, Lagerzeit 300d, Durchsatz 1400 t/a

a) Freisetzung von 5% des Inventars (nach Kühler, $T \sim 30^\circ\text{C}$)

b) Angenommener Wert für Austrag aus dem Auflöser 10^{-5}

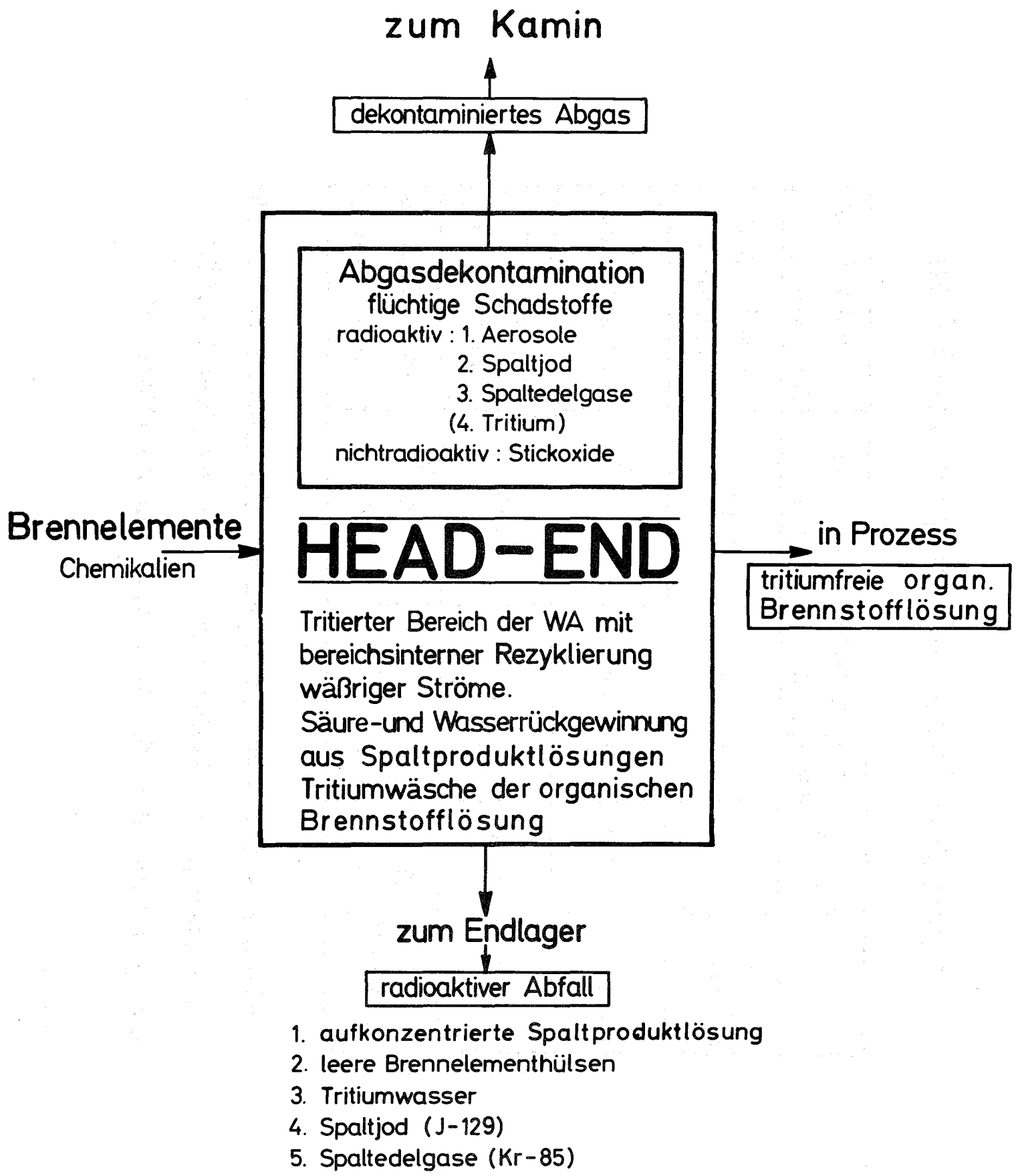
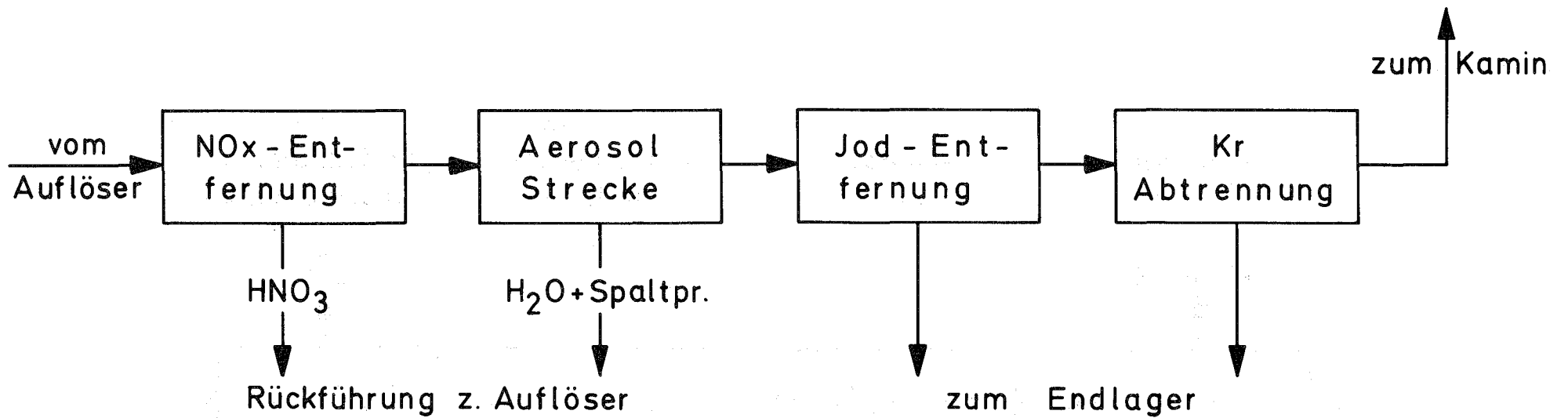


Abb. 1



Alternative für die Abtrennung von:

NOx	Aerosole	Jod	Kr
<u>Wäsche</u>	<u>Faserfilter</u> (Nebel, HEPA)	absorpt. Wäsche (sauer, alkal.)	<u>Tieftemp.-Prozesse</u> (Rektifikation)
Ozonierung + Wäsche	Elektrofilter	reaktive Wäsche (Hg(HNO ₃) ₂ , Jodox)	absorpt. Wäsche (CO ₂ , Freon)
Adsorption Zersetzung	<u>Trägheitsabscheid.</u>	<u>Adsorption</u>	Adsorption mech. Trennung

Abb. 2

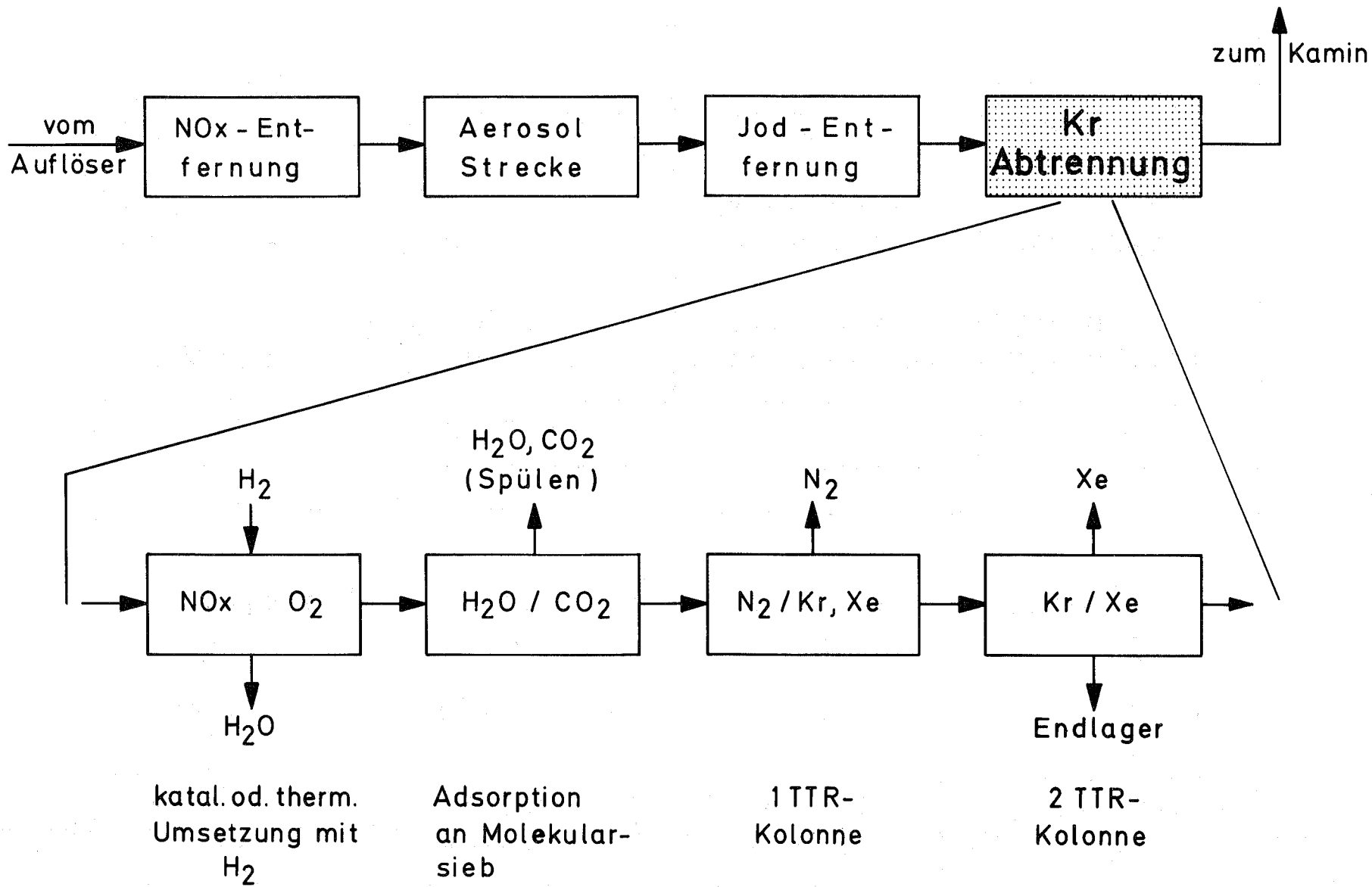


Abb. 3

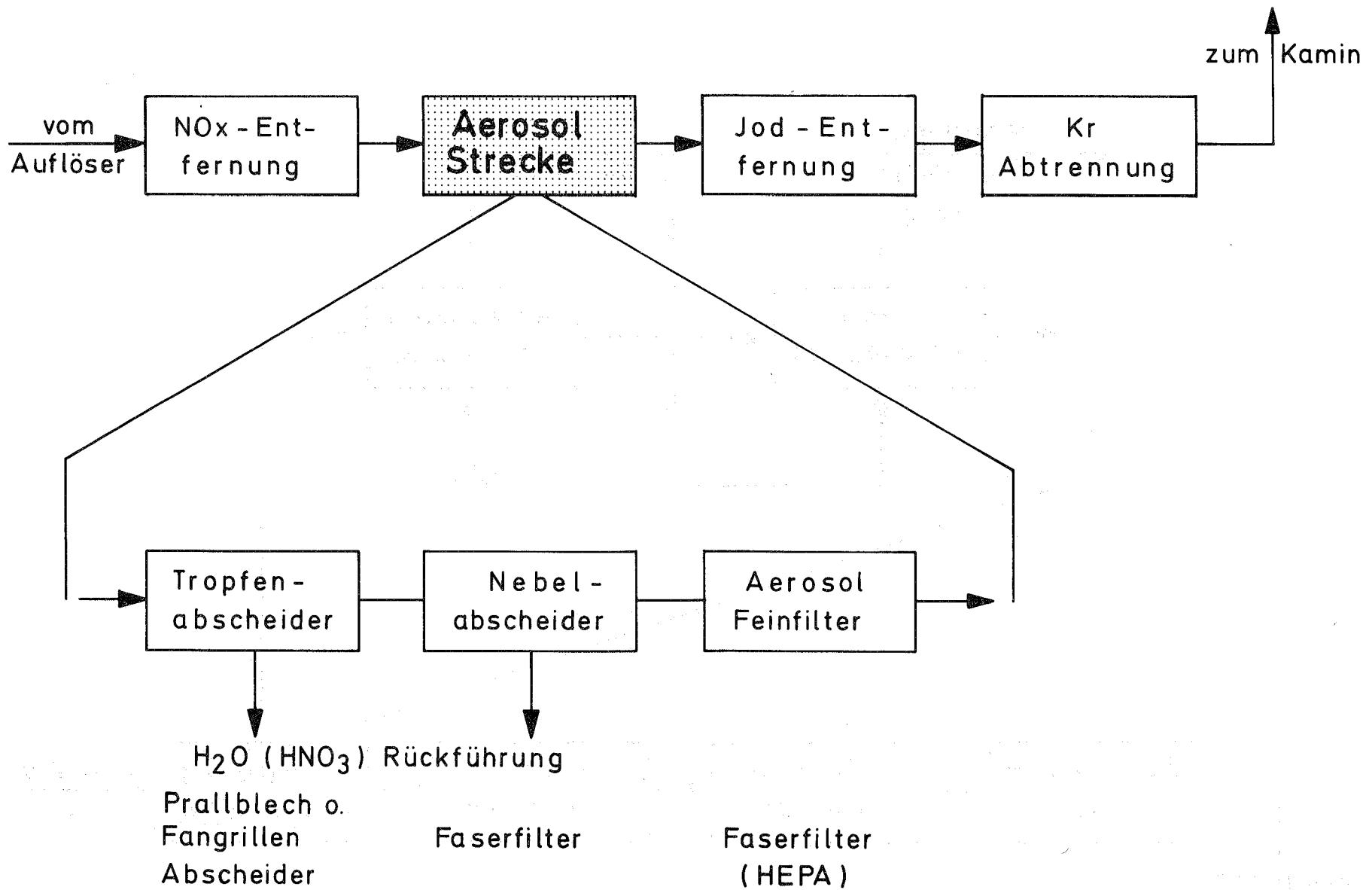


Abb. 4

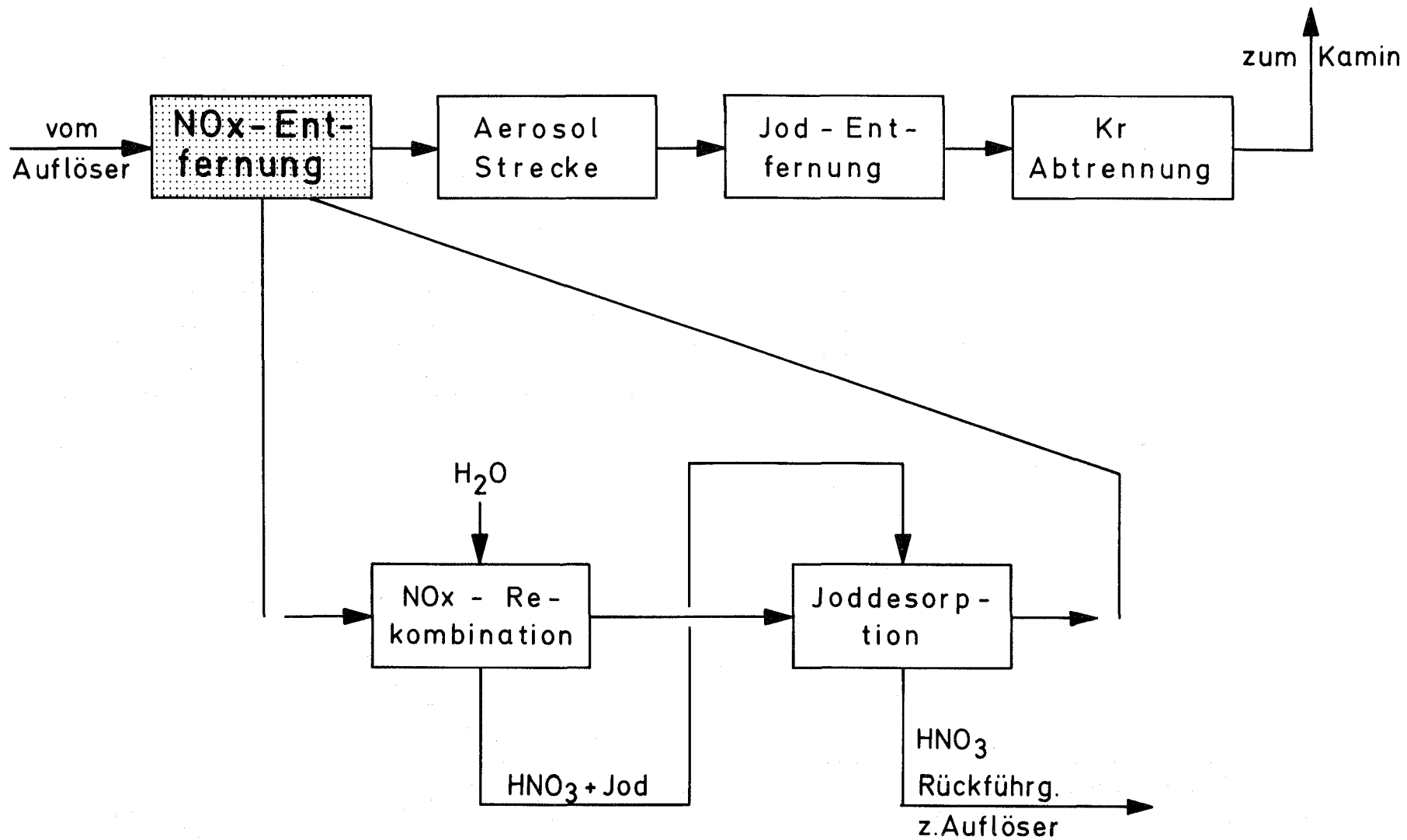


Abb. 5

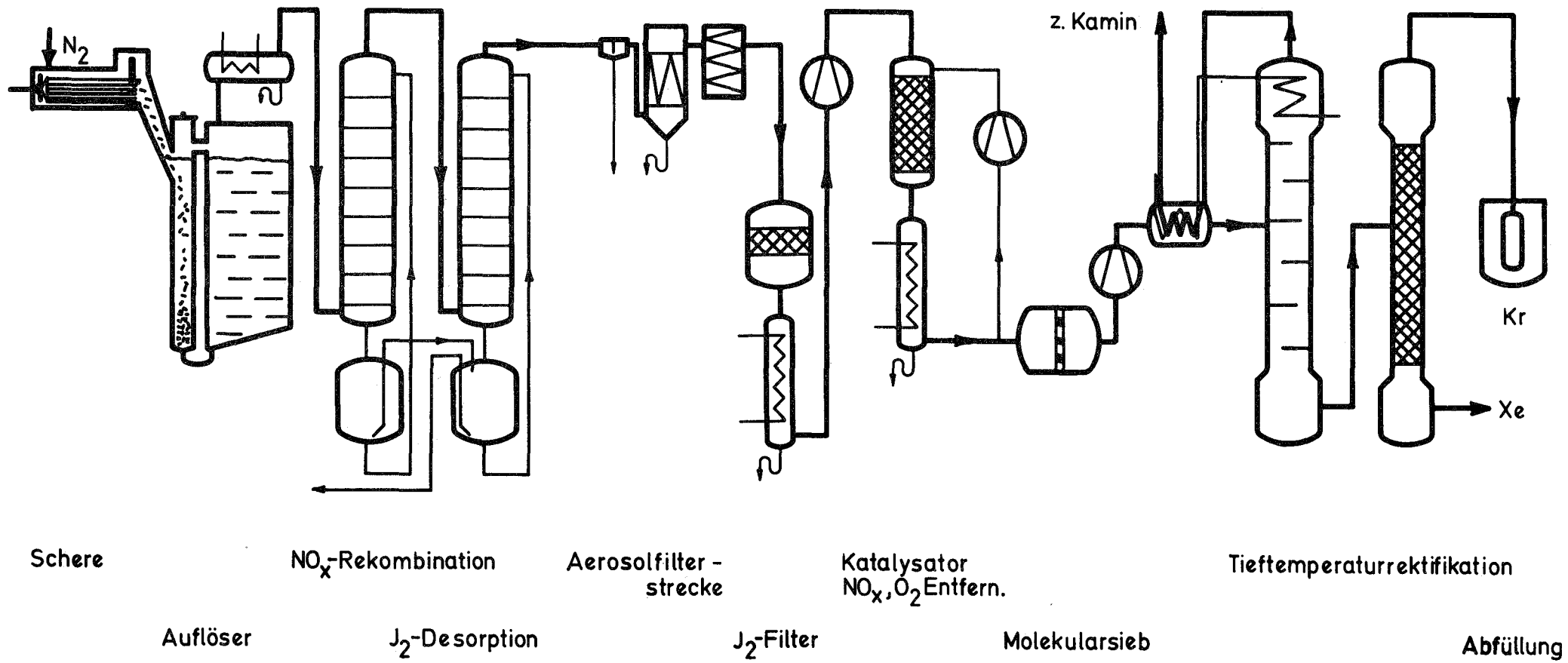


Abb. 6

V O R T R A G

FÜR DEN STATUSBERICHT 1975 DES PROJEKTES FÜR WIEDERAUFARBEITUNG UND ABFALLBEHANDLUNG

Aerosol- und Jodentfernung aus dem head end-Abgas einer Wiederaufarbeitungsanlage

J.G. Wilhelm, J. Furrer

Laboratorium für Aerosolphysik und Filtertechnik

Die Abgase einer Wiederaufarbeitungsanlage sind von flüssigen und festen Schwebstoffen, gasförmig auftretendem Jod und Ruthen (in Form von RuO_4), den Edelgasen und ggf. Tritium zu reinigen. Strahlenschutztechnisch wichtige Radioisotope, die in Form von Schwebstoffen auftreten, sind vor allem die Isotope der Aktiniden Pu, Am und Cm. Demgegenüber ist anderen Radioisotopen wie z. B. ^{134}Cs , ^{137}Cs , ^{89}Sr , ^{90}Sr und ^{144}Ce nur eine untergeordnete Bedeutung zuzuordnen. Im PWA und PNS wird vom LAF II innerhalb der Projektverträge PWA 5152 und PNS 4112 die Filtration des Auflöserabgases zur Abscheidung von Schwebstoffen und Spaltjod bearbeitet.

In Abb. 1 und 2 sind Fließbilder der head end-Abgasreinigung einer großen Wiederaufarbeitungsanlage wiedergegeben. Es wurden die Apparate angedeutet, die zur Entstehung und Abscheidung der Abgaskontamination des Auflöserabgases beitragen.

1. Abscheidung von Schwebstoffen

1.1. Verfahrenskonzept

Die Hauptmenge der schwebstoffförmig auftretenden Aktivität stammt aus der Schere und dem Auflöser. Durch geeignete Gestaltung des Brüdenraumes des Auflöser und durch die Spülgasführung soll erreicht werden, daß der beim Schneiden entstehende Staub durch Sedimentation noch im Brüdenraum abgeschieden und ebenfalls durch die Salpetersäure gelöst wird.

Durch Kochen und Rühren der Brennstofflösung im Auflöser werden Tropfenaerosole erzeugt, deren Partikeldurchmesser vorwiegend im Bereich oberhalb von $10\ \mu\text{m}$ liegen dürfte.

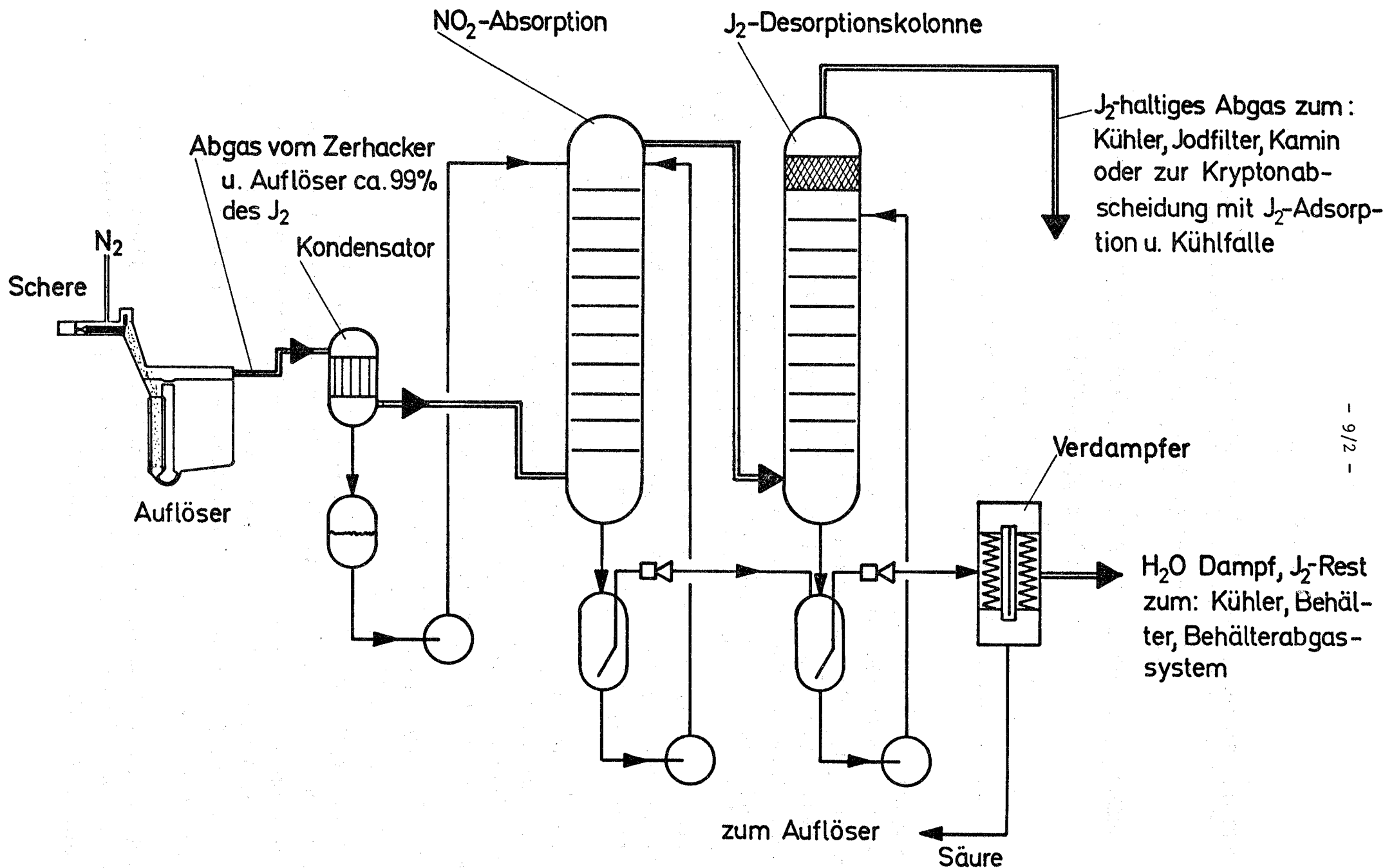


Abb.: 1 Fließbild, Weg des Spaltjodes im Abgas des Head-end.

Infolge der Kondensationsprozesse und Auswaschvorgänge in Kondensator, Adsorptions- und Desorptionskolonne ist eine fortlaufende Herabsetzung des Brennstoffanteiles in den jeweils im Abgas einzelner Prozeßschritte auftretenden Tropfenaerosolen zu erwarten.

Die Auswahl der auf die Desorptionskolonne folgenden Abscheideeinrichtungen für Schwebstoffe wurde unter folgenden Gesichtspunkten durchgeführt:

1. Tropfenaerosole sind möglichst quantitativ so abzuscheiden, daß die Flüssigkeit in den Prozeß zurückgeführt werden kann. Der Anteil an Aerosolen, der durch die Schwebstofffilter abgeschieden und daher nicht zurückgeführt werden kann, soll so gering wie möglich sein.
2. An den Schwebstofffiltern sollen zur Einhaltung von hohen Abscheidegraden über möglichst lange Betriebszeiten nur Feststoffaerosole abgeschieden werden; Tropfenaerosole sind durch geeignete Einrichtungen vorher zu entfernen. Tropfenaerosole, die den Tropfen- und Feuchteabscheider passieren, dürfen einen nur geringen Durchmesser haben, um leicht durch Erhitzung und Verdampfung in Feststoffaerosole überführt werden zu können.
3. Das Jodfilter sollte möglichst nicht mit radioaktiven Schwebstoffen beaufschlagt werden, um einfachste Handhabung des Filters nach Beladung ohne zusätzliche Abschirmungsmaßnahmen zu erlauben.

Zur Tropfenabscheidung können Prallblechabscheider, Drahtgestrickpakete, Filterkerzen aus verschiedenen Materialien, Fasermatten bzw. Faserpacks in flacher oder Ringform, Elektrofilter oder Venturiwäscher eingesetzt werden. Aufgrund der Daten für Grenztropfengröße, Fraktionsabscheidegrade, Druckverlust, zulässige Variationen der Anströmgeschwindigkeit, Temperatur- Strahlungs- und Korrosionsbeständigkeit und der Möglichkeiten zur Abreinigung und zum Auswechseln sowie aufgrund des Platzbedarfes wurde eine Vorauswahl getroffen. Einrichtungen, die auf aktive Komponenten wie zusätzliche Pumpen angewiesen sind, wurden von vornherein ausgeschlossen. Zur Abscheidung von Tropfenaerosolen größeren Partikeldurchmessers aus dem Abgas der in Strömungsrichtung letzten Kolonne ist ein Prallblechabscheider mit einem Abscheidegrad von $\geq 99,9$ % für Tropfen

mit einem Durchmesser $> 16 \mu\text{m}$ vorgesehen. Als Alternative kommt ein Drahtgestrickpaket in Frage, das allerdings einen wesentlich größeren Platzbedarf hat. Der Vorteil beider Konstruktionen liegt in der Selbstreinigung durch die ablaufende Flüssigkeit. Zur Tropfenfeinabscheidung ist ein Filter vorgesehen, das eine Abscheideleistung gegenüber Partikeln $< 1 \mu\text{m}$ hat, die einem Schwebstofffilter der Klasse S entspricht und das möglichst keine zusätzliche Abreinigung benötigt. Es wird ein speziell angefertigtes Brinkfilter, das im Prinzip aus einem dicken Glasfaserpack besteht, erprobt werden. Falls eine Abreinigung dieses Filters infolge eines höheren Anteiles an Feststoffpartikeln notwendig werden sollte, muß die zur Abreinigung benötigte Wassermenge der rekombinierten Säure bzw. dem Auflöser zugeführt werden.

Durch die Grob- und Feinabscheidung von Tropfenaerosolen wird der Hauptanteil der aerosolförmig transportierten Abgasaktivität entfernt. Eventuell noch vorhandene Tropfenaerosole werden durch die nachfolgende Abgaserhitzung auf 150°C zerstört. Die Schwebstofffilter werden daher nur durch Feststoff-Aerosole von relativ geringer Aktivität belastet und dürften entsprechend hohe Standzeiten erreichen. Aus Sicherheitsgründen (Leckagen) sind vorerst zwei hintereinandergeschaltete Schwebstofffilter der Klasse S vorgesehen, deren Durchlaßgrad für Partikel im Submikronbereich mit $\leq 0,03 \%$ anzusetzen ist. Schwierigkeiten durch mangelnde Abscheideleistung der Fasermatten der Schwebstofffilter sind auch unter den im Auflöserabgas auftretenden Betriebsbedingungen kaum zu erwarten. Problematischer erscheinen mögliche Leckagen über den Dichtsitz und eventuelle andere Leckstellen des Filterelementes, z. B. in der Abdichtung der Fasermatte gegen den Rahmen.

1.2. Laufende Arbeiten zur Schwebstoffabscheidung aus dem Abgas einer großen Wiederaufarbeitungsanlage

Die Messung der Leistung einzelner Komponenten zur Tropfenabscheidung in Abhängigkeit von dem Partikelgrößenspektrum und den Betriebsbedingungen sowie die Ermittlung der im Auflöserabgas unter KEWA-Bedingungen zu erwartenden Aerosolkonzentrationen ist Gegenstand des PWA-Programmpunktes 5152. Die verschiedenen Einzelkomponenten werden in entsprechenden Prüfständen unter simulierten Abgasbedingungen geprüft, ggf. sind einzelne Komponenten neu auszulegen bzw. für die Fernbedienung zu ertüchtigen.

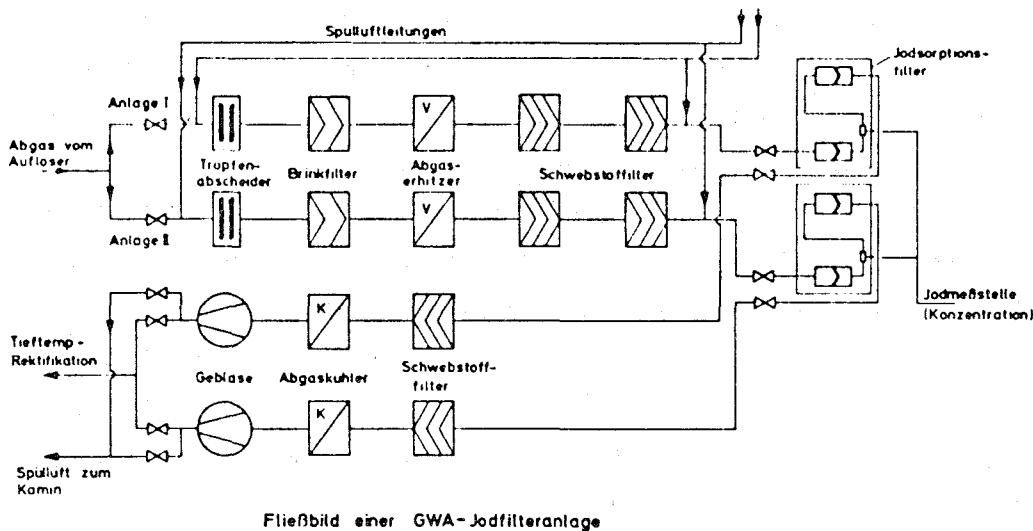
Weiter ist die Bereitstellung und Erprobung eines Verfahrens zur quantitativen Vor-Ort-Leckprüfung der durch Fernbedienung eingebauten Schwebstofffilter der Klasse S vorgesehen. Zur Zeit werden die verschiedenen Prüfstände ausgelegt und Meßverfahren erprobt; in der SAP Marcoule laufen Untersuchungen zur Zusammensetzung und Aktivität der Schwebstoffe im Auflöserabgas. Ergeben die Messungen, daß die Aerosolkonzentration im Abgas des Auflösers sehr niedrig gehalten werden kann und durch die Naßabscheidung eine ausreichende Absenkung der Schwebstoff-Abgasaktivität erreicht wird, ist der Einsatz des Jod-Sorptionsfilters vor der Absorptionskolonne zur Säurerückgewinnung (Abb. 1) zu diskutieren. Durch die Abscheidung des Jodes unmittelbar aus dem Abgasstrom des Auflösers noch vor der Abgaswäsche könnte eine wesentliche Vereinfachung der Abgasbehandlung erreicht werden, da:

1. Das Jod aus der rückgewonnenen Säure nicht mehr ausgetrieben werden muß, der aufwendige Desorptionsschritt also entfallen kann,
2. die rückgewonnene Säure durch Verdampfung aufkonzentriert werden kann, ohne daß dadurch Restjodmengen freigesetzt werden,
3. alternative Verfahren zur Aufkonzentration der rückgewonnenen Säure, die einen Verdampfungsschritt ausschließen, nicht entwickelt werden müssen.

Die Leistung der Naßabscheidung ist entscheidend für den Aufwand, der in den folgenden Stufen der Abgasbehandlung getrieben werden muß und deshalb Gegenstand eingehender Untersuchungen.

1.3. Gesamtdekontaminationsfaktor für Schwebstoffe

Der Gesamtdekontaminationsfaktor einer großen Wiederaufarbeitungsanlage für die Radionuklide, die in Form von Schwebstoffen auftreten, kann mit 10^9 angenommen werden. Bei dieser Zahl wurde ein Dekontaminationsfaktor für die Schwebstofffilterung von 10^3 berücksichtigt. Aus den Daten für die Abgabewerte der WAK in den Jahren 1971 und 1972 lassen sich Gesamtdekontaminationsfaktoren für die aerosolförmig anfallenden Betastrahler von $3 \cdot 10^{-11}$ bzw. $5 \cdot 10^{-9}$ berechnen.



Fließbild einer GWA-Jodfilteranlage

Abb. 2

Ein Gesamtdekontaminationsfaktor von 10^9 für die Aktiniden würde zu einer Inhalationsdosis von ca. 1,0 mrem/Jahr am ungünstigsten Aufpunkt führen, wenn mit einem Langzeitausbreitungsfaktor von $1 \cdot 10^{-7}$ s/m³ gerechnet wird. Dieser Wert bezieht sich nur auf die Einjahresabgabe; eine eventuelle Aufkonzentration von Aktiniden in der Umgebung von Wiederaufarbeitungsanlagen und die Resuspension wurde nicht berücksichtigt. Der Dekontaminationsfaktor, der durch Schwebstofffilterung der Abgase nach dem angegebenen Schema zu erreichen sein dürfte, wird auf 10^4 bis 10^5 geschätzt. Damit dürfte ein höherer Gesamtabscheidegrad als 10^9 gegenüber schwebstoffförmig auftretenden Radionukliden erreicht werden.

2. Abscheidung von gasförmigem Jod

2.1. Jodanfall in Wiederaufarbeitungsanlagen

Die erste deutsche große Wiederaufarbeitungsanlage (GWA) wird für einen Durchsatz von 1500 t/a ausgelegt. Der aufzuarbeitende Brennstoff stammt aus Leichtwasserreaktoren.

Bei einem (maximalen) Abbrand von 45.000 MWd/t Uran fällt in der Wiederaufarbeitungsanlage pro Jahr eine Gesamtmenge von 536 kg Jod, bestehend aus ^{129}J (Gesamtaktivität: 75 Ci, $T_{1/2} = 1,7 \cdot 10^7$ a) und ^{127}J an. Die nach einer Lagerzeit von 210 d im Brennstoff noch vorhandene Menge an ^{131}J ($T_{1/2} = 8,05$ d) spielt nur in Hinsicht auf ihre Aktivität eine Rolle; insgesamt fallen pro Jahr 21 Ci ^{131}J an, dies entspricht einer Menge von 0,17 mg.

2.2. Erforderliche Abscheidegrade

Anforderungen an den Abscheidegrad eines Jodfilters durch ^{131}J

Setzt man 50 % der zulässigen Schilddrüsendosis als Richtwert für die Berechnung des Abscheidegrades für ^{131}J an, wird bei Anwendung des sehr konservativen Ingestionsfaktors für Kleinkinder von $8,8 \cdot 10^5$ rem \cdot m³/Ci \cdot s und eines Langzeitausbreitungsfaktors für den ungünstigsten Ort in der Nähe der GWA von $1 \cdot 10^{-7}$ s/m³ unter der Voraussetzung einer Freisetzung von 21 Ci ^{131}J /a in das Abgas-system sowie einer Weideperiode von einem halben Jahr ein Dekontaminationsfaktor von 19 benötigt. Der niedrigste zulässige Abscheidegrad beträgt also 95 %. Der Auslegungswert für das Jod-Sorptionsfilter sollte aus Sicherheitsgründen um den Faktor 10 höher gewählt werden. Das bedeutet:

$$DF_{\text{Auslegung}, ^{131}\text{J}} = 190; \quad \eta_{\text{Auslegung}, ^{131}\text{J}} = 99,5 \%$$

Da anzunehmen ist, daß die Lagerzeit des Brennstoffes 210 d übersteigt, wird, wie die folgenden Zahlen zeigen, ^{131}J für die Umgebungsbelastung zu vernachlässigen sein.

Anforderungen an den Abscheidegrad eines Jodfilters durch ^{129}J

Bei einem Richtwert von ebenfalls 50 % der zulässigen Schilddrüsendosis für ^{129}J , einem ^{129}J -Ingestionsdosisfaktor für Kleinkinder in Höhe von $2,0 \cdot 10^6$ rem \cdot m³/Ci \cdot s, einer ganzjährigen Gültigkeit des Weide-Kuh-Milchpfades und dem oben angegebenen Langzeitausbreitungsfaktor wird ein Dekontaminationsfaktor von 300 benötigt. Der niedrigste zulässige Abscheidegrad beträgt also 99,7 %. Wird der Auslegungswert des Jod-Sorptionsfilters aus Sicherheitsgründen um den Faktor 10 höher gewählt, ergeben sich folgende Daten:

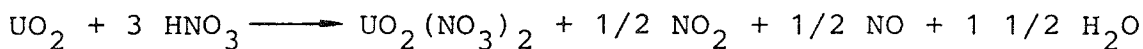
$DF_{\text{Auslegung, }^{129}\text{J}} = 3000$; $\eta_{\text{Auslegung, }^{129}\text{J}} = 99,97 \%$.

Durch die Abscheidung von ^{129}J werden also wesentlich höhere Anforderungen an die Jodfilterung gestellt als durch das ^{131}J . Es ist allerdings zu erwarten, daß der größte Teil des Jodes in der Kaminfortluft in organischer Form vorliegt und die angegebenen hohen Ingestionsdosisfaktoren nur für einen kleinen Anteil der freigesetzten Jodaktivität anzuwenden sind.

2.3. Austreibungsverfahren von Spaltjod zur Abscheidung aus der Brennstofflösung

Um eine Verteilung des aus dem Brennstoff freigesetzten Jodes auf die Prozeßlösungen der Wiederaufarbeitungsanlage zu vermeiden, sollte das Gesamtjod möglichst vollständig bereits im Auflöser aus der Brennstofflösung ausgetrieben werden. Dadurch wird die Freisetzung von Jod bei den einzelnen Verfahrensschritten bis hin zu der für die Endlagerung vorgesehenen Verglasung der hochaktiven Abfälle vermieden bzw. auf ein Minimum beschränkt.

Für die Austreibung von Spaltjod aus der Brennstofflösung kann ein Wert von $> 99 \%$ angenommen werden. Jod, in Form von Jodat, kann nicht ausgetrieben werden. Durch die Auflösung des UO_2 in der Salpetersäure nach



entstehen ausreichende Mengen an NO , durch die das Jodat zum elementaren Jod reduziert wird, ggf. kann zusätzlich Nitrit eingespeist werden

Entscheidend für die Austreibung des elementaren Jodes ist die Destillationsrate der Säure aus dem Auflöser während des Lösungsvorganges. Aufgrund der in Fontenay aux Roses durchgeführten Arbeiten wird eine nahezu vollständige Austreibung des Spaltjodes aus der Brennstofflösung erwartet. Das Restjod in der Brennstofflösung wird z. T. im Behälterabgassystem auftreten. Da strahlenchemische Reaktionen des Tributylphosphat, seiner Zersetzungsprodukte und des Dodekans zu einer Reihe organischer Verbindungen führen, die mit dem Jod reagieren können, ist im Behälterabgas mit einem hohen Anteil organischer Jodverbindungen am insgesamt freigesetzten Jod zu rechnen.

2.4. Abscheidung von Spaltjod, Naßwaschverfahren

Zur Abscheidung von Spaltjod aus dem Abgas können Naßwaschverfahren und die Adsorption an festen Jod-Sorptionsmaterialien angewandt werden. Es kommt eine Wäsche mit Natronlauge, quecksilberhaltiger verdünnter HNO_3 oder mit überazeotroper 20 M Salpetersäure in Frage.

Bei Verwendung von Natronlauge zum Waschen der stark sauren Abgase entstehen derartig hohe Mengen an Na-haltigem Neutralsalz (NaNO_3), daß dieses Verfahren schon in Hinsicht auf die Weiterverarbeitung der Waschlösung ungeeignet erscheint. Außerdem können Alkylhalogenide mit der Waschlösung nicht ausreichend aus dem Gasstrom entfernt werden. In der Nuclear-Fuel-Service-Wiederaufarbeitungsanlage wurden mit der NaOH-Wäsche Dekontaminationsfaktoren zwischen 10 und 20 erreicht.

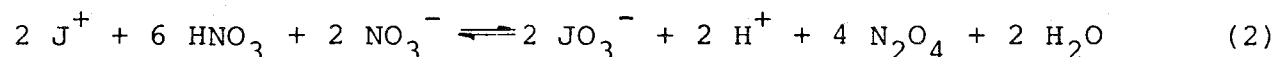
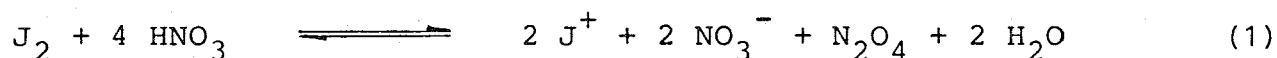
Ein attraktiveres Verfahren ist die Quecksilbernitrat-Salpetersäurewäsche ($\text{Hg}(\text{NO}_3)_2\text{-HNO}_3$) zur Jodabscheidung [2]. Das Jod wird z. T. unter Bildung von HgJ_2 abgeschieden, zum Teil wird es als komplexes HgJ^+ , HgJ_3^- und HgJ_4^{2-} -Ion in Lösung gehalten. Das HgJ_2 kann direkt abfiltriert werden; zur Abtrennung des komplex gebundenen Jodes ist ein Eindampfen der Lösung erforderlich. Jod fällt im Verdampfer als $\text{Hg}(\text{JO}_3)_2$ -Niederschlag aus.

Die Dekontaminationsfaktoren für organisch gebundenes Jod sind nicht befriedigend. Über die Verflüchtigung von Jod aus der Verdampferlösung liegen keine Angaben vor.

Ein weiteres Naßwaschverfahren ist mit dem Jodox-Prozeß gegeben. Jod und organische Jodverbindungen wie Methyljodid werden mit überazeotroper Salpetersäure (~ 20 M) zu HJO_3 aufoxidiert und weiter zum HJ_3O_8 überführt. Aus Korrosionsgründen muß die gesamte Apparatur aus Titan, Zirkon oder Tantalgefäßen hergestellt werden [3, 4].

Das Fließbild des Jodox-Verfahrens ist in Abb. 3 wiedergegeben.

Der Auswaschprozeß läuft nach den Reaktionsgleichungen



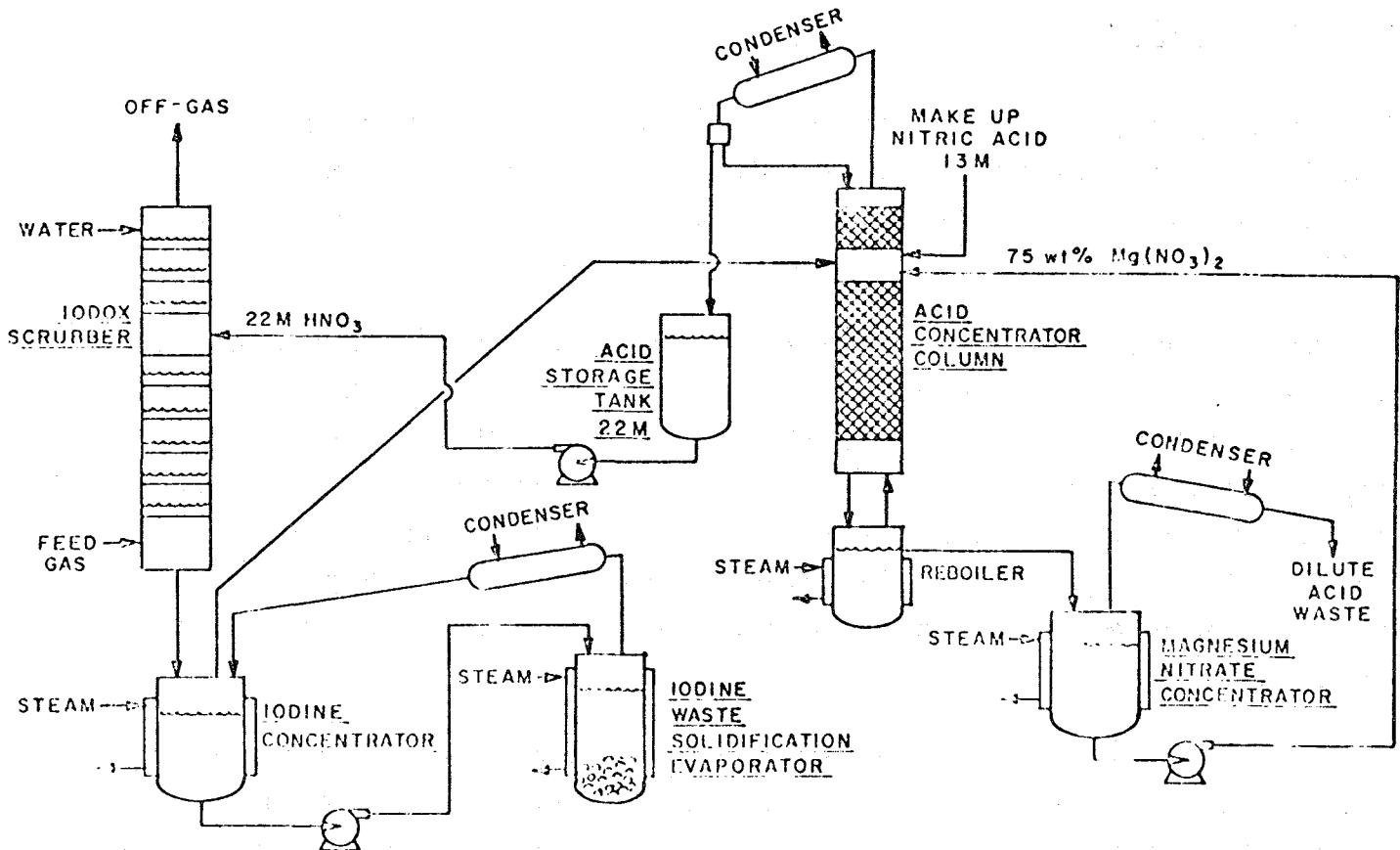
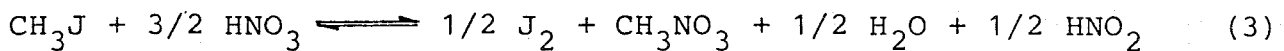


Abb. 3: Fließbild einer Jodox-Demonstrationsanlage

Alkylhalogenide werden wie folgt oxidiert:



Für diese (langsam verlaufende) Reaktion ist eine HNO_3 -Konzentration von $\geq 19 \text{ M}$ und relativ hohe Kontaktzeit erforderlich.

In der 20 molaren HNO_3 läuft weiter die Reaktion ab:



Bei der Benutzung einer 7bödigen Glockenbodenkolonne wurde im Mittel ein Dekontaminationsfaktor von $3 \cdot 10^4$ erreicht. Die Zufügung von aromatischen Verbindungen (Benzol, Jodbenzol) zur Auflöserlösung hat keine wesentliche Reduktion des Abscheidegrades zur Folge.

(Anmerkung des Verfassers: Da durchbrechendes Jod mit Kontrollfiltern aus Molekularsieben LMS 13 X Ag abgeschieden wird, wäre erst nachzuweisen, daß dieses Material eventuell entstehende aromatische Jodverbindungen tatsächlich abscheidet). Aliphaten wie Hexan reduzierten im Versuchsbetrieb den Dekontaminationsfaktor merklich.

Durch N_2O_4 oder NO_2 wird die Wirkung von Reaktion (2) und (3) zurückgedrängt und der Abscheidegrad des Wäschers herabgesetzt. Die Eingangskonzentration des Abgases an Stickoxiden muß daher auf wenige % beschränkt werden. Das Verhalten von Jod im Entwässerungskreislauf ist unbekannt. Das beim Eindampfen in Form von HJ_3O_8 aus der HNO_3 sich abscheidende Jod soll als "slurry" zumindestens so lange gelagert werden, bis die Wärmeentwicklung durch den Zerfall des ^{131}J abgeklungen ist. Über die Endlagerform und das Verfahren zur Überführung ist noch nicht entschieden. HJ_3O_8 in HNO_3 muß in Titan oder Zirkongefäßen gelagert werden; eine Überführung des Jodes in NaJ wird erwogen. Der Verfasser äußert Bedenken wegen der hohen Wasserlöslichkeit dieses Jodsalzes, insbesondere in Hinsicht auf die durch eine Halbwertszeit von $1,7 \cdot 10^7$ a bedingte lange Lagerzeit.

Für eine technische Anwendung des Jodox-Verfahrens ist es zu früh. Im ORNL ist eine Technikums-Apparatur aufgebaut (Glockenboden-Waschkolonie mit jeweils einer Glocke pro Boden), mit der z. Z. noch parametrische Versuche gefahren werden.

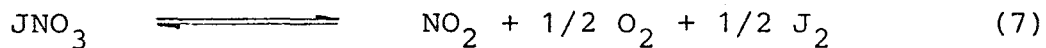
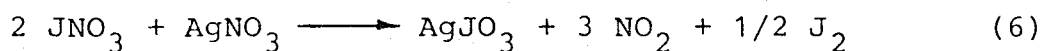
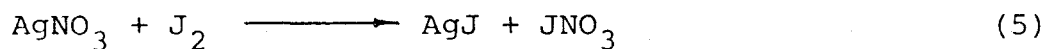
2.5. Abscheidung von Spaltjod an festen Sorptionsmaterialien

Alternativ zur Naßwäsche besteht die Möglichkeit, das Spaltjod aus dem Auflöserabgas direkt an einem festen Sorptionsmaterial abzuscheiden. Da es sich um stickoxidhaltige Abgase handelt, können nur anorganische Jod-Sorptionsmaterialien wie Molekularsiebe und imprägnierte anorganische Trägermaterialien eingesetzt werden. Aktivkohlen scheiden wegen Vergiftungs- und Entzündungsgefahr aus. Die Abscheidung des Spaltjodes an festen Sorptionsmaterialien bietet dann wesentliche Vorteile, wenn:

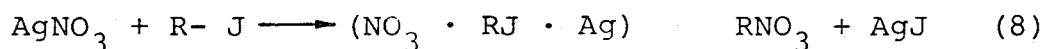
1. mit dem Sorptionsmaterial hohe Abscheidegrade erreicht werden können,
2. das Spaltjod in einer unmittelbar zur Lagerung geeigneten Form abgeschieden wird und damit weitere Behandlungsschritte entfallen,
3. die Konstruktion der Filter einfach und zuverlässig ausgeführt werden kann und der Filterwechsel auch fernbedient durchführbar ist,

4. das Sorptionsmaterial zu einem Preis verfügbar ist, der mit den Naßwaschverfahren vergleichbare Gesamtkosten für die Abscheidung und Überführung des Spaltjodes in einen lagerungsfähigen Zustand zuläßt.

Das Jod-Sorptionsmaterial AC 6120 in Form einer neuen, hochimprägnierten Variante, dem AC 6120/H₁ mit 12 % Ag, erfüllt die vorstehend genannten Bedingungen weitgehend. Dieses Material wird jetzt im Rahmen eines Lizenzvertrages zwischen der GfK, Bayer/Leverkusen und der Süd-Chemie von der zuletzt genannten Firma in industriellem Maßstab hergestellt und vertrieben. Die Abscheidung des Spaltjodes beruht auf der Umsetzung der AgNO₃-Imprägnierung zu dem sehr schwer löslichen Silberjodid bzw. Silberjodat.



Methyljodid und andere Alkylhalogenide reagieren mit der Silbernitratimprägnierung nach [5, 6]



ebenfalls zu Silberjodid.

Der Silberverbrauch ist ein entscheidender Kostenfaktor dieser Abscheidungsverfahren. Ein möglichst quantitativer Umsatz des Silbers ist anzustreben. Laboruntersuchungen zeigten, daß 75 - 94 % des Silbers der Imprägnierung durch Jod umgesetzt werden können. Weitere Versuche werden in den Originalabgasen der Wiederaufarbeitungsanlage Karlsruhe durchgeführt. Ein Preisvergleich zwischen den Kosten für die Jodabscheidung mit AC 6120/H₁ und mittels Naßwaschverfahren ist z. Z. nicht möglich, da vor allem Angaben zur Überführung des durch Naßwaschverfahren abgeschiedenen Jodes in einen zur Lagerung geeigneten Zustand fehlen.

2.6. Abscheidung von elementarem Jod und von Jodverbindungen mit dem Jod-Sorptionsmaterial AC 6120

Abscheidung von J_2 und CH_3J

In Laborversuchen wurden mit AC 6120/H₁ unter den simulierten Bedingungen des Abgases einer Wiederaufarbeitungsanlage Abscheidegrade von > 99,999 % gegenüber J_2 bei einer Bett-Tiefe erreicht, die für eine einzelne Filtertrommel eines 2stufigen Jodfilters vorgesehen ist [7]. Die Abscheidegrade für Methyljodid liegen in gleicher Höhe.

Abb. 4 zeigt ein Abscheidungsprofil während der Beladung eines Filterbettes; außerdem sind die in den einzelnen Teilbetten abgeschiedenen Jodmengen angegeben.

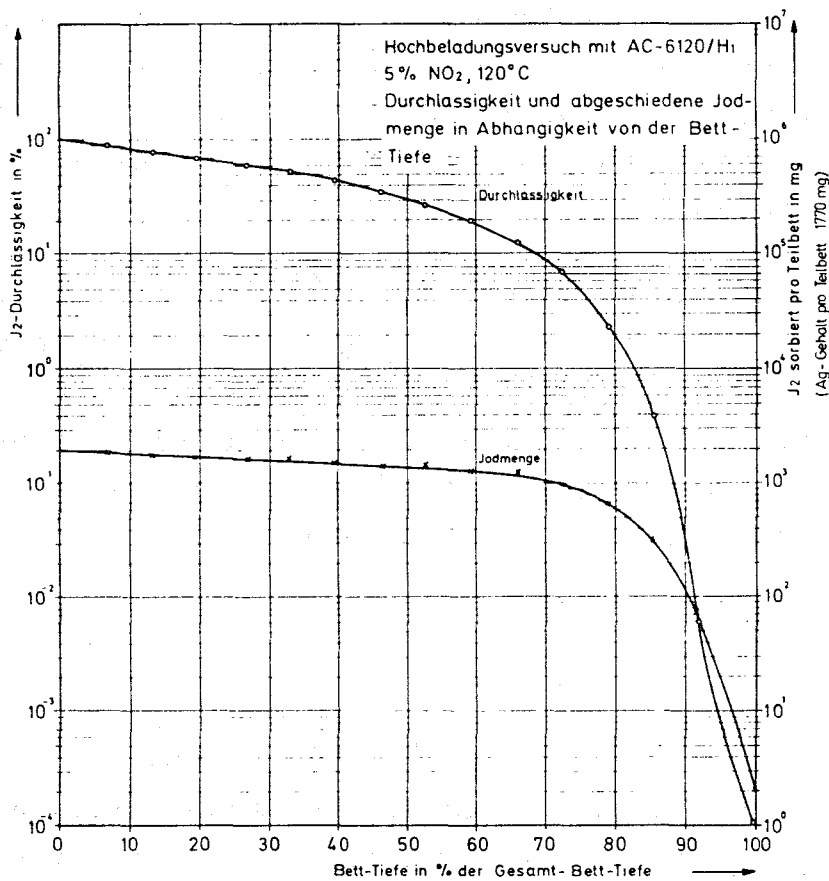


Abb. 4

Umsetzung von organischen Jodverbindungen an AC 6120

Aufgrund von weiteren Laboruntersuchungen zur Abscheidung von organischen Jodverbindungen werden keine Schwierigkeiten bei der Jod-Sorption am anorganischen Sorptionsmaterial AC 6120 in den Abgasen einer Wiederaufarbeitungsanlage erwartet. Die primären Alkyljodide setzen sich mit AC 6120 zu AgJ und Alkylnitrat sowie in geringer Ausbeute Alkanen um. Die sekundären Alkyljodide bilden bei der Umsetzung mit AC 6120 AgJ, Alkene und HNO_3 . Die tertiären Alkyljodide setzen sich zu AgJ, Alkenen und HNO_3 um.

Wie bei den primären Alkyljodiden nimmt die Reaktionsgeschwindigkeit der sekundären und tertiären Alkyljodide mit der Kettenlänge ab. Tertiäre Alkyljodide reagieren erheblich schneller mit AC 6120 als primäre und sekundäre Alkyljodide.

Jod-Cyclohexan als Beispiel einer alicyclischen Jodverbindung reagiert mit der AgNO_3 -Imprägnierung wie ein geradkettiges sekundäres Alkyljodid unter Bildung von AgJ und Cyclohexen. Benzyljodid als Vertreter von seitenkettensubstituierten aromatischen Jodiden reagiert mit AgNO_3 entsprechend den primären Alkyljodiden zu AgJ und Benzylnitrat. Jod-Benzol als kernsubstituierte aromatische Jod-Verbindung reagiert auch bei Temperaturen bis 180°C nicht mit der AgNO_3 -Imprägnierung von AC 6120.

In dem Prozeß der Wiederaufarbeitung von Kernbrennstoffen ist eine Zugabe von Aromaten bisher nicht vorgesehen. Das Auftreten von kernsubstituierten aromatischen Jodverbindungen in der Abluft in Mengen, die die Filterwirkung wesentlich beeinträchtigen, wird daher nicht erwartet. Bei Abänderung bisheriger Lösungs- und Extraktionsschritte sollten Aromaten, die leicht einer Jodierung unterliegen, nicht verwendet werden.

Schadstoffe für Jodfilter mit AC 6120

Als Schadstoffe für AC 6120 sind das Tri-n-Butylphosphat und seine Zersetzungsprodukte anzusehen, da das Ag^+ der AgNO_3 -Imprägnierung zu Silberphosphaten umgesetzt wird. Der Anteil an recycelter Säure und damit an Tri-n-Butylphosphat und seinen Zersetzungsprodukten im Auflöser wird daher einen Einfluß auf den Verbrauch an AC 6120/ H_1 im Jodfilter haben. Dodecan verhält sich bei der vorgesehenen Betriebstemperatur von 150°C völlig inert [8]. Hohe NO_2 -Konzentrationen beeinflussen den Abscheidegrad nur wenig (Abb. 5).

Auch zur Reinigung des Behälterabgases kann AC 6120, zweckmäßig mit geringer Imprägnierung, eingesetzt werden [9]. Vergiftungsercheinungen des AC 6120 durch organische Bestandteile, die in den Behälterabgasen unvermeidbar auftreten, können durch Zugabe von NO_2 vermieden werden, bzw. kann das Sorptionsmaterial mit NO_2 regeneriert werden [10]. In Abb. 6 ist die Durchlässigkeit eines AC 6120-Bettes, das in den Behälterabgasen der WAK vergiftet wurde, vor und nach der Regeneration mit NO_2 (21 h, 2,5 % NO_2) wiedergegeben.

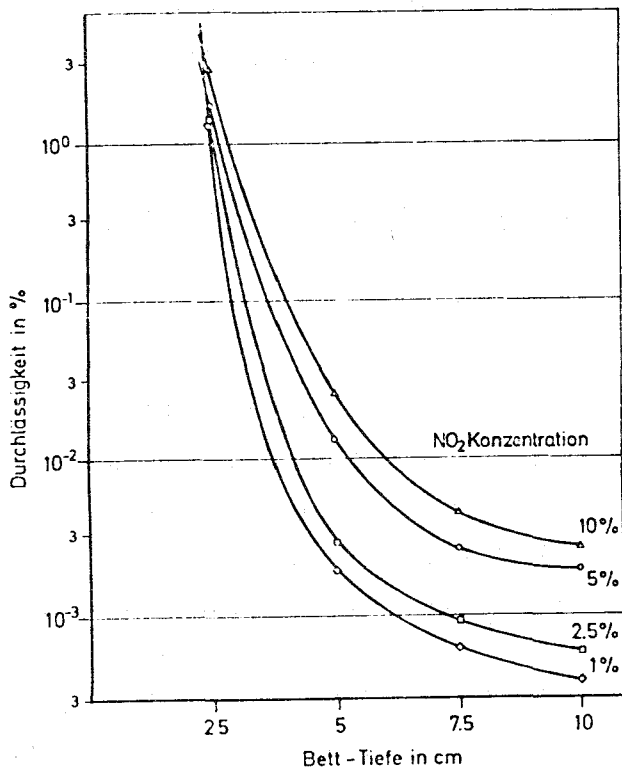


Abb. 5 Durchlässigkeit von AC-6120 für $\text{CH}_3^{131}\text{J}$ in Abhängigkeit vom NO_2 -Anteil in der Luft

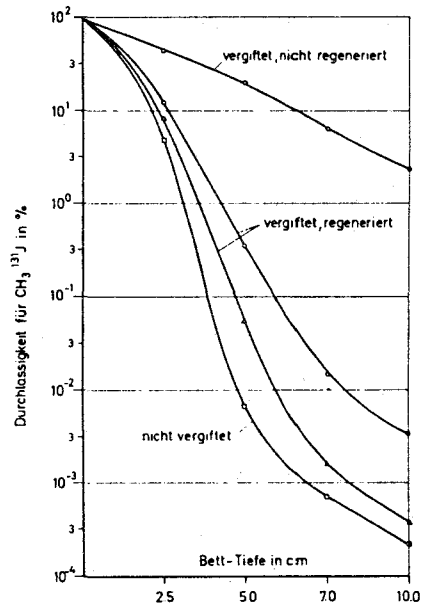


Abb. 6 Versuche zur Regeneration von vergiftetem AC-6120 durch NO_2 nach Einsatz im Behälterabgas

Da nach dem jetzt vorliegenden Konzept einer GWA das Trägergas in der Abgasstrecke des Auflöser wegen der nachfolgenden Kr-Ab-scheidung mittels Tieftemperatur-Rektifikation u. U. Stickstoff sein wird, muß z. Z. in weiteren Laborversuchen das Verhalten von AC 6120/ H_1 in N_2/NO_x -Gemischen untersucht werden. Durch NO im reinen Stickstoff wird die AgNO_3 -Imprägnierung des AC 6120/ H_1 zum metallischem Silber reduziert. Die Folge ist ein Verlust an Ab-scheideleistung. Durch gleichzeitige Anwesenheit von NO_2 kann diese Reaktion unterdrückt werden. In dem von Jod zu reinigenden Gasstrom sollte aufgrund der bisher durchgeführten Untersuchungen möglichst ein Überschuß an NO_2 im Verhältnis zum NO eingestellt werden.

Weitere Abscheidungsuntersuchungen

In der WAK und der SAP Marcoule werden in diesem und im nächsten Jahr Untersuchungen zum Verhalten des AC 6120/H₁ in dem Originalabgas einer Wiederaufarbeitungsanlage durchgeführt [11]. In beiden Anlagen ist das Trägergas für das Spaltjod allerdings ein Luft-NO_x-Gemisch, so daß eine ausreichende Simulation der Bedingungen im Abgasstrom einer GWA nicht erreicht wird. Es sind deshalb zusätzlich Jod-Abscheidungsexperimente unter Auflösung von nicht bestrahltem Brennstoff im Technikumsmaßstab in Zusammenarbeit mit dem Institut für Heiße Chemie geplant.

2.7. Ausführung der Jodfilter für eine große Wiederaufarbeitungsanlage

Aufbau

Die Abb. 2 zeigt das Fließbild einer geplanten GWA-Jodfilteranlage. Die Filterkonstruktion für den Einsatz des Jod-Sorptionsmaterials AC 6120/H₁ wird darauf ausgerichtet, eine möglichst quantitative Umsetzung des Silbers im Sorptionsmaterial durch Jod zu erreichen. Die Anzahl der notwendigen Filterstufen ist durch den Konzentrationsgradienten des Jodes im Sorptionsmaterial und die Notwendigkeit zur möglichst vollständigen Ausnutzung des abzuziehenden Sorptionsmaterials gegeben. Volumenstrom bzw. lineare Gasgeschwindigkeit gehen direkt in den erreichbaren Konzentrationsgradienten ein. Es ist ein 2stufiges Jodfilter vorgesehen, dessen in Anströmrichtung liegende erste Filtertrommel bis zur Erschöpfung mit Jod beladen wird, während die nachgeschaltete zweite Filtertrommel bis zum Durchbruch der ersten nur eine geringe Beladung erfährt. Nach Ausbau der erschöpfend beladenen Filtertrommel wird die teilbeladene Filtertrommel in die in Anströmrichtung erste Position umgesetzt und erschöpfend beladen.

Alternativ wird die Anwendung von Ringschichtfiltern, die bei vergleichsweise größerem Konstruktionsaufwand eine geringere Druckdifferenz ermöglichen und ein Verfahren mit festen Filterpositionen und wechselseitiger Anströmung untersucht.

Bedarf an Lagerraum

Bei vollem Durchsatz einer GWA wird ein Filterwechsel alle 6 d notwendig. Die Filterelemente passen unmittelbar in die üblichen Rollreifenfässer zur Aufnahme von radioaktivem Abfall.

Pro Jahr fallen ca. 50 Rollreifenfässer mit 200 l Fassungsvermögen an. Es wird also ein geringer Lagerraum benötigt. Das Verhalten von jodbeladenem AC 6120/H₁ im Salz wird der Gegenstand weiterer Untersuchungen sein. Falls die Auflagen zur Auslaugbarkeit des Spaltjodes im Endlager nicht erfüllt werden, ist geplant, die 200 l Rollreifenfässer mit dem AC 6120/H₁ in 400 l Fässer einzuzementieren.

2.8. Einsatz von Jodfiltern mit AC 6120 in z. Z. betriebenen Wiederaufarbeitungsanlagen

Als erste Wiederaufarbeitungsanlage wurde die WAK mit einem AC 6120-Filter zur Abscheidung des Jodes aus dem Auflöserabgas ausgerüstet. Die sich hier ergebenden Erfahrungen werden in die Auslegung eines Prototyp-Jodfilters für die Abgasreinigung einer GWA einfließen, das 1978 zur Erprobung vorliegen wird.

In der SAP Marcoule wurde ein AC 6120/H₁-Jod-Sorptionsbett direkt mit dem Abgas des Auflösers beaufschlagt. Zwischen Auflöser und Jod-Sorptionsbett befand sich nur die Fasermatte eines Schwebstofffilters der Klasse S. Bei einer Verweilzeit, die für eine Filtertrommel des in der Entwicklung befindlichen GWA-Jodfilters vorgesehen ist, wurde ein Abscheidegrad von 99,98 % erreicht.

Literaturzitate

- [1] Environmental Analysis of the Uranium Fuel Cycle, Part III-Nuclear Fuel Reprocessing, EPA-520/9-73-003-D (1973).
- [2] R.W. Stromatt "Removal of Radio-Iodine from Purex Off-Gas with Nitric Acid Mercuric Nitrate Solutions, HW-55735 (1958).
- [3] W.S. Groenier, B.A. Hannaford, An Engineering Evaluation of the Jodox-Process, ORNL-TM-4701 (Mai 1975).
- [4] O.O. Yarbrow, J.C. Mailen, W.S. Groenier, Iodine Scrubbing from Off-Gas with Concentrated Nitric Acid, CONF-740807, Vol. II, S. 832 (März 1975).
- [5] Jahresbericht 1974 des Laboratoriums für Filtertechnik, KFK 2165 (Juni 1975).

- [6] G.D. Parfitt, A.L. Smith, A.G. Walton, J. Phys. Chem. 69 (1965), S. 661.
- [7] J. Furrer, R. Kaempffer, J.G. Wilhelm, Entwicklung von Abluftfiltern für Wiederaufarbeitungsanlagen, in KFK 2165 S. 9 (Juni 1975).
- [8] J. Furrer, R. Kaempffer, J.G. Wilhelm, Entwicklung von Abluftfiltern für Wiederaufarbeitungsanlagen, in KFK 1973, S. 93 (1974).
- [9] J.G. Wilhelm, H. Schüttelkopf, An Inorganic Adsorber Material for Off-Gas Cleaning in Fuel Reprocessing Plants, CONF-720823 (1972), S. 540.
- [10] J. Furrer, J.G. Wilhelm, Jodfilterung aus der Abluft von Wiederaufarbeitungsanlagen, Seminar über Jodfilter und ihre Prüfung, EURATOM Doc. V/559/74 (März 1974).
- [11] J. Furrer, R. Kaempffer, Aufbau von Prüfeinrichtungen für Aerosole und Spaltjod aus Auflöserabgasen in Wiederaufarbeitungsanlagen, in KFK 2195 (im Druck).

Verfestigung hochaktiver Abfälle

K. Scheffler

1. Einleitung

Aus der Betrachtung aller Abfallströme, die bei der Wiederaufarbeitung von Kernbrennstoffen anfallen, wird deutlich, daß den hochaktiven Abfalllösungen ein besonderes Gewicht zuzumessen ist. Im Vortrag von H. Krause/ABRA-GfK "Arbeiten zur Behandlung radioaktiver Abfälle aus Wiederaufarbeitungsanlagen" wurde dies bereits hervorgehoben.

Die grundlegenden Arbeiten auf diesem Gebiet wurden bei der GfK/ABRA vor rd. 10 Jahren begonnen. Bereits frühzeitig fiel hier - wie an den meisten anderen Stellen auch - die Entscheidung auf Borosilikat-Gläser, die als das derzeit geeignetste Matrixmaterial für die Verfestigung hochaktiver Lösungen erscheinen. Borosilikatgläser sind chemisch, thermisch und mechanisch außerordentlich stabil; sie sind beständig gegenüber γ -Strahlung und nehmen über 20 Gew.% an Metalloxiden aus dem hochaktiven Konzentrat, dem sogenannten 1 WW, in homogener Verteilung auf.

Die Arbeiten im Labormaßstab konzentrierten sich im wesentlichen auf die Entwicklung und Charakterisierung von geeigneten Borosilikatgläsern.

Neben den Spaltprodukten enthält die hochaktive Abfalllösung auch α -Aktivitäten in Form einiger Aktinidenisotope von Np, Pu, Am und Cm. Die bestehende Unsicherheit über die Stabilität von Gläsern gegenüber diesen α -Strahlern für Endlager-Zeiträume von einigen 100.000 Jahren hat ein entsprechendes Versuchsprogramm zu dieser Frage eingeleitet.

Ziel des technologischen Arbeitsprogrammes ist die Entwicklung des Verfahrens VERA bis zur anwendungstechnischen Reife.

Die Demonstration des Verfahrens mit aktiven Spaltproduktlösungen im Rahmen der WAK-Erweiterung VERA II hat sich vorerst verzögert. Eine Überprüfung der im Genehmigungsverfahren gemachten Auflagen hat ergeben, daß die Durchführung zu einem der Aufgabenstellung als Versuchsanlage nicht mehr gemäßen Anlagenkomplex geführt hätte. Deshalb wurde der Genehmigungsantrag zurückgezogen. Das Konzept VERA wird nunmehr überarbeitet.

Nach diesem kurzen Überblick wird im folgenden zuerst auf die wesentlichen Entwicklungsarbeiten im Labor eingegangen:

2. Laboruntersuchungen

Die grundlegenden Prozeßschritte des VERA-Fließschemas (Abb. 1) sind:

1. Zerstörung der freien Salpetersäure im hochaktiven 1 WW-Konzentrat durch Denitrierung mit Ameisensäure.
2. Trocknung und Kalzinierung des denitrierten 1 WW in einem Sprühkalzinator bei einer Temperatur von 400-450°C.
3. Mischen des Kalzinats mit Glaskomponenten und Erschmelzen eines homogenen Glases.
4. Abstechen der Glasschmelze in eine Kokille und
5. Abgasbehandlung.

Beim ersten Schritt, der Denitrierung, wird die freie Salpetersäure durch Ameisensäure zerstört. Auf diese Weise wird die

Flüchtigkeit von Ruthenium auf weniger als 0,1% herabgesetzt, das ohne Denitrierung als RuO_4 zu einem hohen Prozentsatz mit dem Abgas entweichen würde. Darüber hinaus wird das Problem der Werkstoffauswahl für Kalzinator und Glasschmelzanlage wesentlich entschärft. Die Denitrierung mit Ameisensäure führt zu über 95% zu CO_2 und inertem Lachgas, so daß gegenüber anderen Denitrierungsmitteln keine Salpetersäurerückgewinnung mehr erforderlich ist.

Die Laboruntersuchungen zur Denitrierung von 1 WW wurden bereits im Jahr 1974 abgeschlossen und dokumentiert.

Die Trocknung und Kalzinierung des 1 WW, die Glaskomponentenzugabe und die Glasschmelzstufe laufen verfahrenstechnisch gemeinsam ab. Der Schwerpunkt der Laboruntersuchungen liegt hier bei der Ermittlung der optimalen Kalzinateigenschaften, bei Untersuchungen zur Flüchtigkeit und Zurückhaltung von Spaltprodukten sowie bei Korrosionsuntersuchungen. Zur Ermittlung der Flüchtigkeit und Rückhaltung einzelner Radionuklide wurde eine Laboranordnung installiert, in der die Vorgänge in der VERA-Anlage weitgehend simuliert werden können.

In Tracerexperimenten mit Ru, Cs, Sr, Gd, J, Te und Se werden u.a. deren Flüchtigkeit aus der Glasschmelze sowie deren Rückhaltung an Filtern und in Waschkolonnen gemessen. Hierdurch wird eine detaillierte Aussage über die Höhe der Aktivitätsverluste im Abgasstrom des VERA-Prozesses möglich.

Ein besonderer Schwerpunkt der Laborarbeiten liegt bei der Entwicklung und Untersuchung der Borosilikatglasmatrix. Die Karlsruher Arbeiten konzentrieren sich dabei auf anwendungstechnische und sicherheitsrelevante Fragestellungen. Nachstehend sind einige Beispiele hierzu aufgezählt:

- Das Glas soll einen möglichst hohen Anteil an Metalloxiden aufnehmen, d.h. von seiten der Endlagerung wird die größtmög-

liche Volumenreduktion im endlagerfähigen Verfestigungsprodukt angestrebt. Dabei muß unter den Bedingungen des VERA-Prozesses (Temperatur, Schmelzdauer usw.) ein einphasiges homogenes Produkt gebildet werden.

- Die Viskosität der Glasschmelze muß bei vorgegebener Temperatur, die durch den metallischen Tiegelwerkstoff auf 1150°C nach oben begrenzt ist, klein genug sein, damit die Schmelze einwandfrei in die Kokille abläuft.
- Andererseits wird eine möglichst hohe Erweichungstemperatur gefordert, damit der Glasauslauf aus dem Schmelztiegel in die Kokille durch Kühlung rasch gestoppt werden kann.

Mit der Entwicklung eines 5-Komponentenglases mit der Bezeichnung VG 38 wurden zunächst die geforderten Ziele erreicht. An dieser Stelle sei ein aus Savannah River/USA kürzlich veröffentlichtes Untersuchungsprotokoll zitiert (J.A. Kelly, DP 1382, Savannah River Laboratory, May 1975).

Danach wurden alle bisher in der Welt bekannten Glaskompositionen, die entweder bereits für die 1 WW-Verfestigung angewendet werden oder dafür vorgesehen sind, auf ihre Eigenschaften untersucht und miteinander verglichen. Dabei schneidet das Karlsruher VG 38 am besten ab: eine sehr ähnliche Zusammensetzung wurde daraufhin für die Verfestigung der etwa 4000 m^3 1 WW, die in Savannah River z.Zt. in Tanks lagern, ausgewählt.

Obwohl die Entwicklung von Gläsern weitgehend abgeschlossen ist, wurden in der letzten Zeit zusätzliche Untersuchungen notwendig. So erwuchs im letzten Jahr aus dem Fließschema der KEWA die Forderung, größere Mengen an Gd_2O_3 in Glas zu inkorporieren. Gadolinium wird als homogenes Neutronengift bei der Auflösung des

abgebrannten Kernbrennstoffs zugesetzt. Es erscheint dann quantitativ zusammen mit den Spaltprodukten im 1 WW. Entsprechend den Kritikalitäts-Berechnungen werden etwa 15 kg Gd/t Brennstoff zugesetzt, während die Spaltprodukte etwa 30 kg/t ausmachen, d.h., neben den etwa 20 Gew.% an Spaltprodukttoxiden sollte das Glas noch zusätzlich etwa 10 Gew.% Gadoliniumoxid aufnehmen.

Bis zu diesem Zeitpunkt war über Gläser, die Seltene Erden in derart hohen Konzentrationen enthalten, nichts bekannt. Wie die Herstellung von zunächst reinen Gadolinium-Gläsern gezeigt hat, ließen einige Glaszusammensetzungen Gehalte bis zu 30 Gew.% Gd_2O_3 zu. Im Laufe der Laborversuche wurde die Glaszusammensetzung soweit variiert und optimiert, daß jetzt ein neues Grundglas unter der Bezeichnung VG 98 zur Verfügung steht: Die gewünschten 20 Gew.% 1 WW Oxide und 10 Gew.% Gd_2O_3 werden homogen inkorporiert.

In die hochaktive Abfalllösung können nach Störfällen, in Interventionsphasen oder durch Prozeßchemikalien Substanzen eingebracht werden, die einige wichtige Glaseigenschaften negativ beeinflussen. Dies betrifft vor allem die Neigung zur Phasenbildung und -separation im Glas in Gegenwart von Fluorid- und Chloridionen sowie die Viskositätserhöhung durch Sulfationen. Die höchsten zulässigen Gehalte an Fluorid, Chlorid und Sulfat wurden zu 1-1,25 Gew.% ermittelt. Daneben gibt es noch eine Reihe weiterer störender Fremdsubstanzen. Während dem Wiederaufarbeiter in der Regel nur der Spaltstoffverlust, d.h. der U- und Pu-Gehalt im 1 WW bekannt ist, können diese Angaben den Glasmacher keineswegs zufriedenstellen. Um dem abzuhelfen, wurde ein umfangreiches Programm zur Probenahme und Analytik in hochaktiven Lösungen aufgestellt und experimentell eingeleitet.

Ergänzend zur Weiterentwicklung der Gläser wurde die Verbesserung dieses Matrixmaterials durch gesteuerte Kristallisation unter-

sucht. Glas ist von Natur aus ein thermodynamisch metastabiles System, das durch Zufuhr der notwendigen Aktivierungsenergie entglasen, d.h. in ein makroskopisch inhomogenes Kristallaggregat übergehen kann. Diese Entglasung würde die chemischen und mechanischen Eigenschaften des Produktes in starkem Maße negativ beeinflussen. Durch eine gezielte Kristallisation können dahingegen bestimmte Gläser in mikrokristalline Produkte, sogenannte Glaskeramiken umgewandelt werden. Diese Produkte sind thermodynamisch stabiler als Gläser und haben in der Regel etwas bessere Eigenschaften.

Von der GfK/ABRA wird die Herstellung einer Glaskeramik nur als zusätzliche Temperaturbehandlung im Anschluß an die Verglasung nach dem VERA-Prozeß verstanden. Daher wurden Borosilikatgläser mit bestimmten Zusätzen erschmolzen, die die Bildung von Kristallkeimen als Voraussetzung für eine Kristallisation begünstigen. In einigen Versuchsreihen ist es gelungen, auf diesem Wege glaskeramische Produkte herzustellen, die gleichgute und zum Teil bessere Eigenschaften aufweisen als die bisher entwickelten Gläser.

Das Schaubild (Abb. 2) zeigt einen Vergleich. Man erkennt, daß neben sonst unbedeutenden Unterschieden die thermische Beständigkeit der in Karlsruhe entwickelten VC 15-Glaskeramiken deutlich höher ist als für Glas.

Abb. 3 zeigt VC 15-Gläser ohne und mit 20 Gew.% an 1 WW-Oxiden und daneben jeweils die entsprechenden glaskeramischen Produkte. Die gezielte Mikro-Kristallisation von Gläsern stellt - wie diese ersten Ergebnisse zeigen - eine aussichtsreiche Fortsetzung der bisherigen Entwicklungsarbeiten in Hinblick auf Verbesserungen der Produktqualität dar.

Ebenfalls eng verknüpft mit der Sicherheit bei der Endlagerung der hochaktiven Verfestigungsprodukte ist ihr Verhalten gegen-

über α -Strahlern. Die hochaktiven Abfalllösungen enthalten α -Strahler mit überwiegend sehr großen Halbwertszeiten. Von diesen α -Strahlern könnten die schwerwiegendsten Strahlenschäden im Glas erwartet werden, da die beim α -Zerfall auf kleinstem Raum auf das Glas übertragenen Energien um Größenordnungen höher sind als bei β - und γ -Strahlern. Das Langzeitverhalten von Gläsern gegenüber α -Strahlern mit großen Halbwertszeiten kann durch kurzlebige α -Strahler mit hoher Aktivität simuliert werden. Bei gleicher integraler Dosis sind dabei die Bedingungen im Zeitrafferexperiment noch extremer als im Realfall, weil die pro Zeiteinheit dem Glas applizierte Dosis wesentlich höher ist als im echten hochaktiven Glas.

Im Januar 1975 wurden von GfK/ABRA Gläser mit dem kurzlebigen Isotop Cm-242 erschmolzen. Die chemische Zusammensetzung der drei Glasproben entspricht dem schon erwähnten Glastype VG 98 1. in reiner Form, 2. mit 20 Gew.% 1 WW-Oxiden und 3. mit 20 Gew.% 1 WW-Oxiden sowie 10 Gew.% Gd_2O_3 . Die Glasproben hatten jeweils eine spezifische α -Aktivität von rd. 2,6 Ci/g Glas zum Herstellungszeitpunkt. Im Diagramm, Abb. 4, ist die α -Dosis dieser Cm-Gläser und die der echten hochaktiven Gläser als Funktion der Zeit dargestellt. Im hochaktiven Glas wird z.B. in 10.000 Jahren die gleiche Dosis erreicht wie in den Curium-Gläsern in rd. 20 Monaten. Am 17. November 1975 erreichte die α -Dosis in den Curium-Gläsern einen Wert von $1,4 \times 10^{11}$ Rad; das entspricht der α -Dosis in den echten hochaktiven Gläsern nach 2100 Jahren. Die kontinuierliche Untersuchung der Glasproben durch mikroskopische Beobachtung, Autoradiografien und Auslaugtests hat bisher keinen Hinweis auf Veränderungen in der Glasmatrix im Sinne einer Rekristallisation ergeben. Z.Zt. laufen darüber hinaus Messungen, die die Bestimmung der gespeicherten Energie und der He-Diffusion zum Ziel haben.

3. Technologische Entwicklung

Nach diesem Überblick über unsere Laborarbeiten zur Verfestigung hochaktiver Abfalllösungen wird kurz auf die technologischen Entwicklungen zum VERA-Prozeß eingegangen. Abb. 5 zeigt das stark vereinfachte VERA-Fließbild. Dieser Prozeß wurde in den vergangenen Jahren in einem inaktiven Teststand demonstriert.

Im Denitrator wird der salpetersaure 1 WW chargenweise denitriert. Er wird anschließend aus einem Puffer-Tank kontinuierlich über eine Düse in den Sprühkalzinator eingespeist. Die versprühte Lösung wird im Kalzinatorturm durch überhitzten Dampf von 650°C Eintrittstemperatur verdampft - die enthaltenen Feststoffe werden getrocknet und kalziniert. Die mittlere Temperatur im Kalzinator beträgt dabei 400 bis 450°C . Das Kalzinat wird in einer Filterkammer an feinporigen Sintermetallfilterkerzen abgeschieden, die periodisch ebenfalls mit überhitztem Dampf zurückgeblasen werden.

Kalzinat und Grundglasgranulat, das über einen seitlichen Stutzen zudosiert wird, schmelzen im Tiegel kontinuierlich bei etwa 1100°C . Der Schmelztiegel hat einen offenen, separat beheizbaren und kühlbaren Auslaufstutzen. Dieser mit einem Glaspfropfen verschlossene Auslauf wird nach Erreichen der oberen Füllstandsmarke im Schmelztiegel erhitzt. Der Glaspfropfen wird dabei aufgeschmolzen, so daß die Glasschmelze in die vorgeheizte Kokille abläuft. Nach Erreichen des Minimalfüllstandes im Schmelztiegel wird der Auslauf wieder gekühlt und somit durch erstarrtes Glas verschlossen. Die Kokille wird dicht verschweißt und ist gleichzeitig Endlagerbehälter.

Eine Besonderheit des VERA-Verfahrens stellt die Energiezufuhr in das Innere des Sprühkalzinators durch überhitzten Dampf dar. Hierdurch werden wesentliche Vorteile gegenüber der bisherigen Technik erreicht:

Es fällt nur eine sehr kleine Menge nicht kondensierbarer Abgase an. Diese werden in mehreren Waschkolonnen gereinigt und über ein Absolutfilter an das Gesamt-Abluftsystem abgegeben.

Im Gegensatz zu wandbeheizten Sprühtrocknern werden Kalzinat-ablagerungen an den Wänden nicht gesintert. Darüber hinaus eignet sich der Sprühkalzinator vom Konzept her in besonderem Maße für hohe Durchsätze; die Vergrößerung auf KEWA-Maßstab ist unproblematisch und würde das Betriebsverhalten sogar günstig beeinflussen.

In der letzten Zeit wurden wesentliche Verbesserungen am Prozeß und an Komponenten der Anlage erzielt, von denen nachstehend einige genannt werden:

Denitrierung

In der ersten Denitrieranlage bei ABRA/GfK, die aus Duran-Glas-Bauelementen erstellt wurde, wurden bisher über 4000 l simulierter l WW in Chargen von 50 l denitriert, ohne daß irgendwelche Störungen auftraten. Auch die kontinuierliche Denitrierung wurde erfolgreich demonstriert; sie ist aber wegen der geringen Durchsätze von nur 30 l/h in der aktiven VERA-Anlage nicht vorgesehen. Dagegen wurde ein Denitrator im 1:1 VERA-Maßstab für die chargenweise Denitrierung von 200 l simuliertem l WW konstruiert (Abb. 6).

Als Konstruktionswerkstoff wurde Incoloy 825 gewählt, das nach umfangreichen Korrosionsversuchen die beste Beständigkeit gezeigt hat. Der Denitrator wird Ende 1975 inaktiv in Betrieb gehen.

Sprühdüse

Die Sprühdüse am Kopf des Kalzinators arbeitet heute nach langer Entwicklungsarbeit zufriedenstellend, ohne daß - auch im

Dauerbetrieb über 400 Stunden - Verstopfungen oder Ablagerungen beobachtet wurden.

Kalzinator

Im Kalzinator ist die Trocknung und Kalzination der versprühten Partikel bereits wenige Zentimeter nach Verlassen der Düse abgeschlossen, wie in einem Dauerversuch von 100 Stunden gezeigt werden konnte: Ein z.B. in 6 cm Abstand von der Düse aufgehängtes Metallplättchen blieb danach vollständig blank.

Durch konstruktive Änderungen am Dampfverteiler im Oberteil des Kalzinators konnte die Ausbildung von Kalzinatablagerungen an der Wandung noch weiter vermindert werden. Das abgelagerte Kalzinat haftet nur sehr lose und baut sich nicht laufend auf.

Filtersystem

Die heute benutzte Filtereinheit besteht aus 16 Sintermetallkerzen gegenüber früheren Versionen mit über 40 Filterkerzen.

Nach über 400 Stunden Betriebsdauer, in denen rd. 700 kg Kalzinat produziert wurden, war kein Anstieg des Druckverlustes am Filter festzustellen. Eine entscheidende Verbesserung der Filterwirksamkeit wurde dadurch erreicht, daß 30 % der für die Glasherstellung notwendigen SiO_2 -Menge bereits der Lösung als Filterhilfsmittel zugesetzt werden.

Schmelzanlage

Die Glasschmelzstufe läuft seit langem zufriedenstellend. Eine Neuerung stellt das Glasdosiersystem dar, mit dem ein Grundglasgranulat direkt in den Schmelztiegel dosiert wird. Dieses Dosiersystem eröffnet außerdem die Möglichkeit, Störungen beim Schmelzen zu beheben, indem entsprechende Chemikalien eingespeist werden.

In der inaktiven Testanlage wurden bis heute 11.000 l simulierter l WW zu 1400 kg Kalzinat und 400 kg Glas verarbeitet. Die Gesamtbetriebszeit betrug dabei 1200 Stunden.

4. VERA-Mock-Up/Ausblick

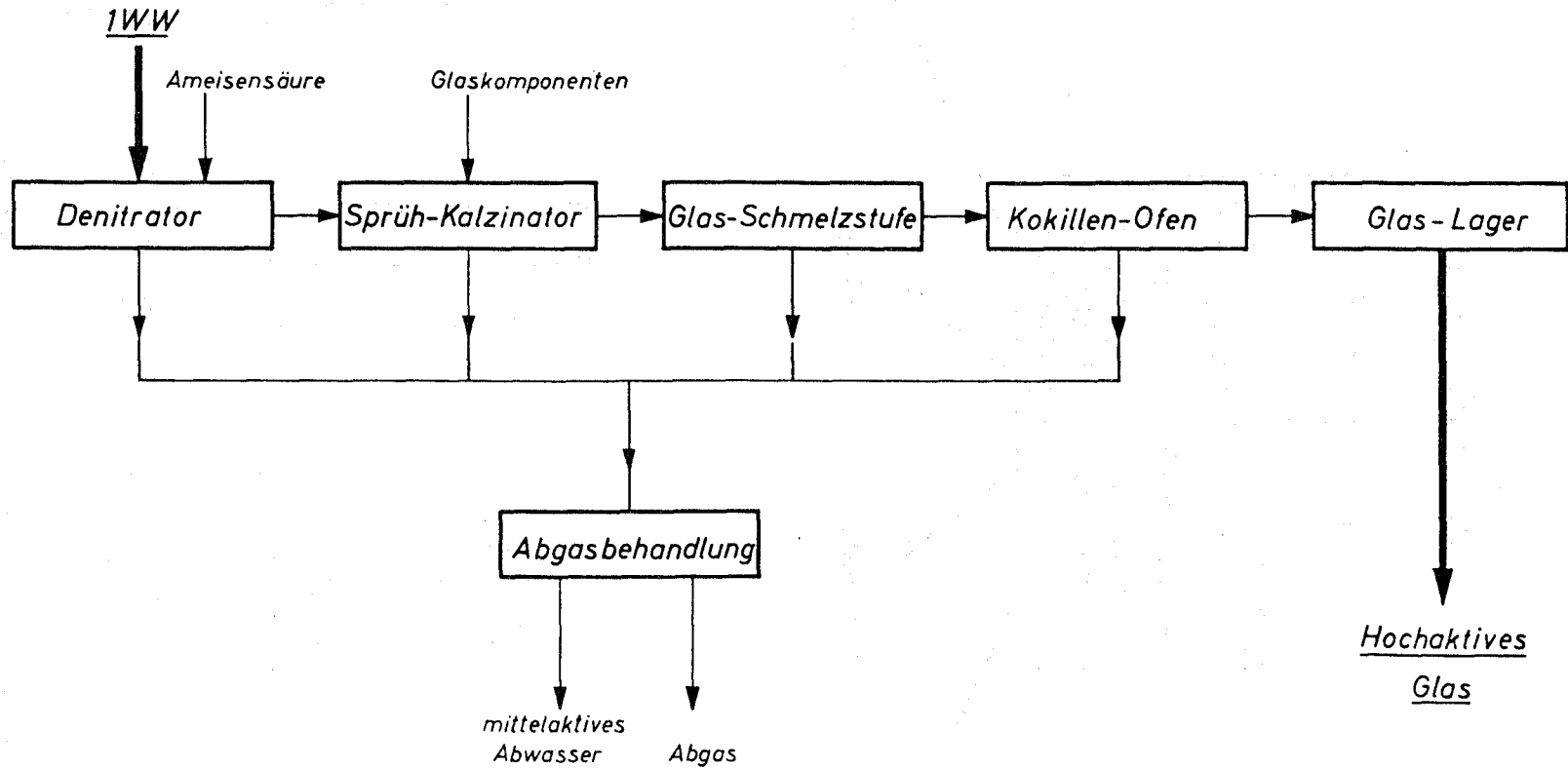
Als Vorstufe für die Errichtung der aktiven Anlage VERA bei der WAK wurde mit der Planung einer inaktiven Anlage im 1:1 Maßstab begonnen, die unter den simulierten Bedingungen einer Heißen Zelle betrieben werden soll. Der Betrieb soll in Analogie zur späteren aktiven Anlage durchgeführt werden.

Die Simulation hat zum Ziel:

1. die Funktionstüchtigkeit der optimierten Hauptverfahrenskomponenten zu demonstrieren,
2. nachzuweisen, daß das Verfahren im Verbund störungsfrei über lange Zeiträume bei ferngesteuertem und fernbedienten Betrieb läuft und
3. die fernbediente Interventions- und Wechseltechnik zu erproben. Dies gilt für Routineoperationen wie Auswechseln von Düsen und Filtern als auch für Operationen zur Behebung von Störfällen.

Der derzeitige Terminplan sieht vor, daß bis 1980 die Versuchsergebnisse aus der 1:1-Simulationsanlage vorliegen. Da die gesammelten Erfahrungen in Planung und Bau der aktiven Versuchsanlage VERA einfließen sollen, kann mit deren Inbetriebnahme für Mitte der 80er Jahre gerechnet werden.

Abbildung 1 Prinzip-Fließschema für den VIRA-Prozess



Prinzip-Fließschema für den VERA-Prozess

Beständigkeit

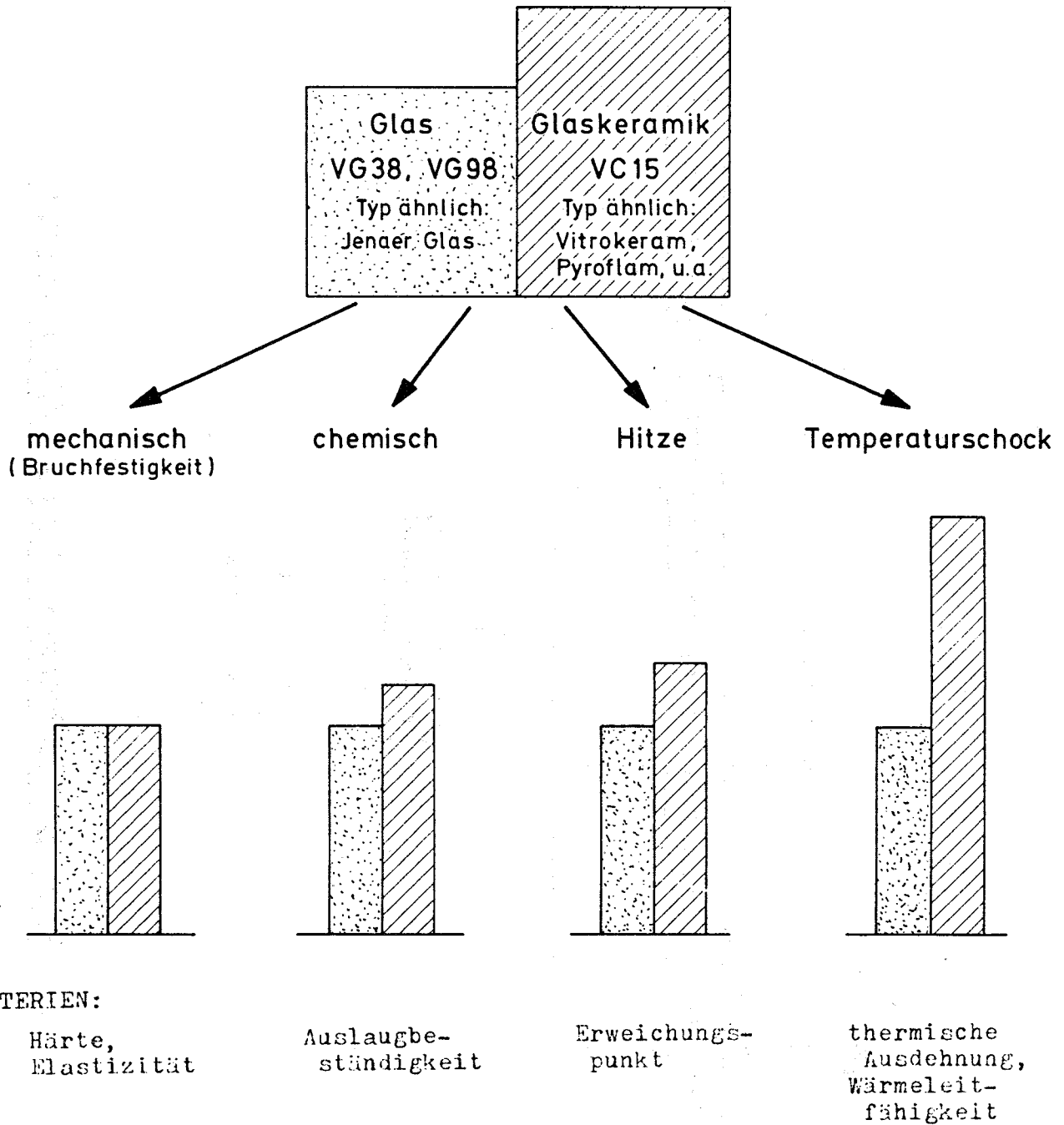
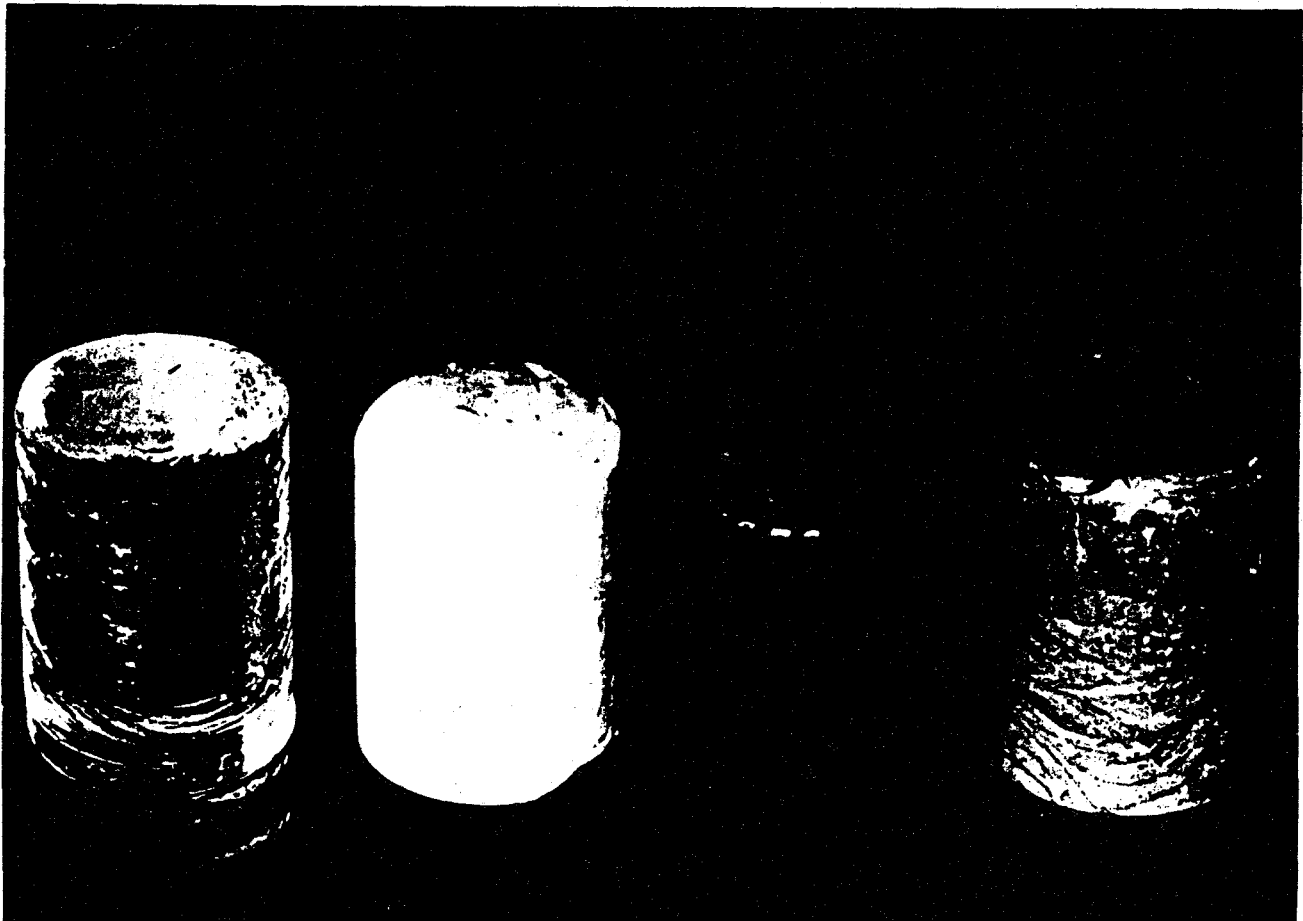


Abbildung 2 Graphischer Vergleich der Beständigkeit von Borosilikat-Glas VG 38 und Borosilikat-Glaskeramik VC 15



VC 15

Glas

VC 15

Glaskeramik

VC 15

Glas

VC 15

Glaskeramik

Grundzusammensetzung ohne weitere Zusätze

Grundzusammensetzung mit 20 Gew.% an Metalloxiden aus dem 1WW

Abbildung 3: Produkte aus der gezielten Kristallisation von VC 15-Borosilikatgläsern zu VC 15-Glaskeramiken

Vergleich der α -Dosis in 1 WW-Gläsern und Cm-Gläsern

Abbildung 4. α -Dosis in hochaktiven Gläsern und in von GFK/AERA erschmolzenen Curium-242-Gläsern

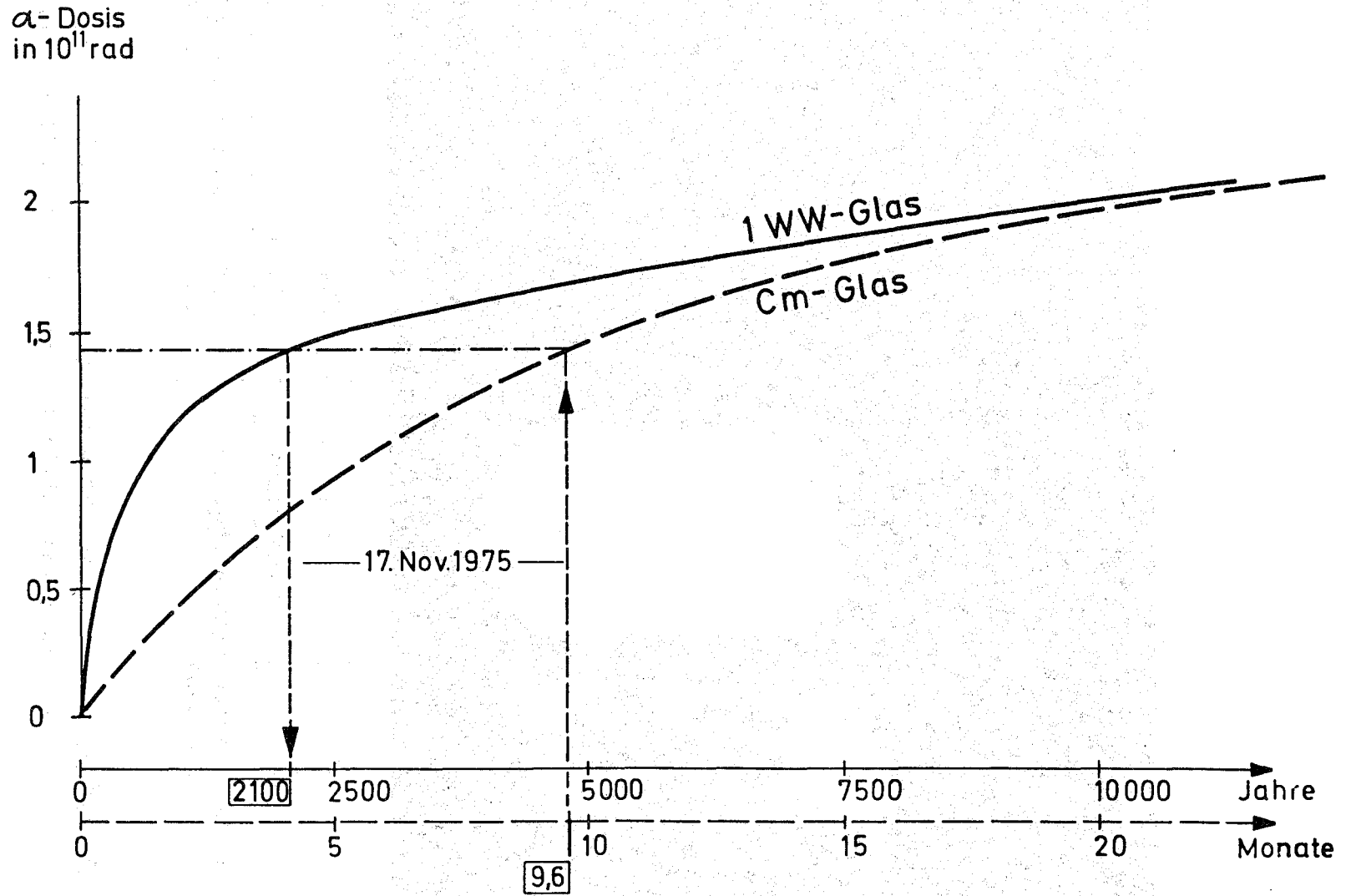
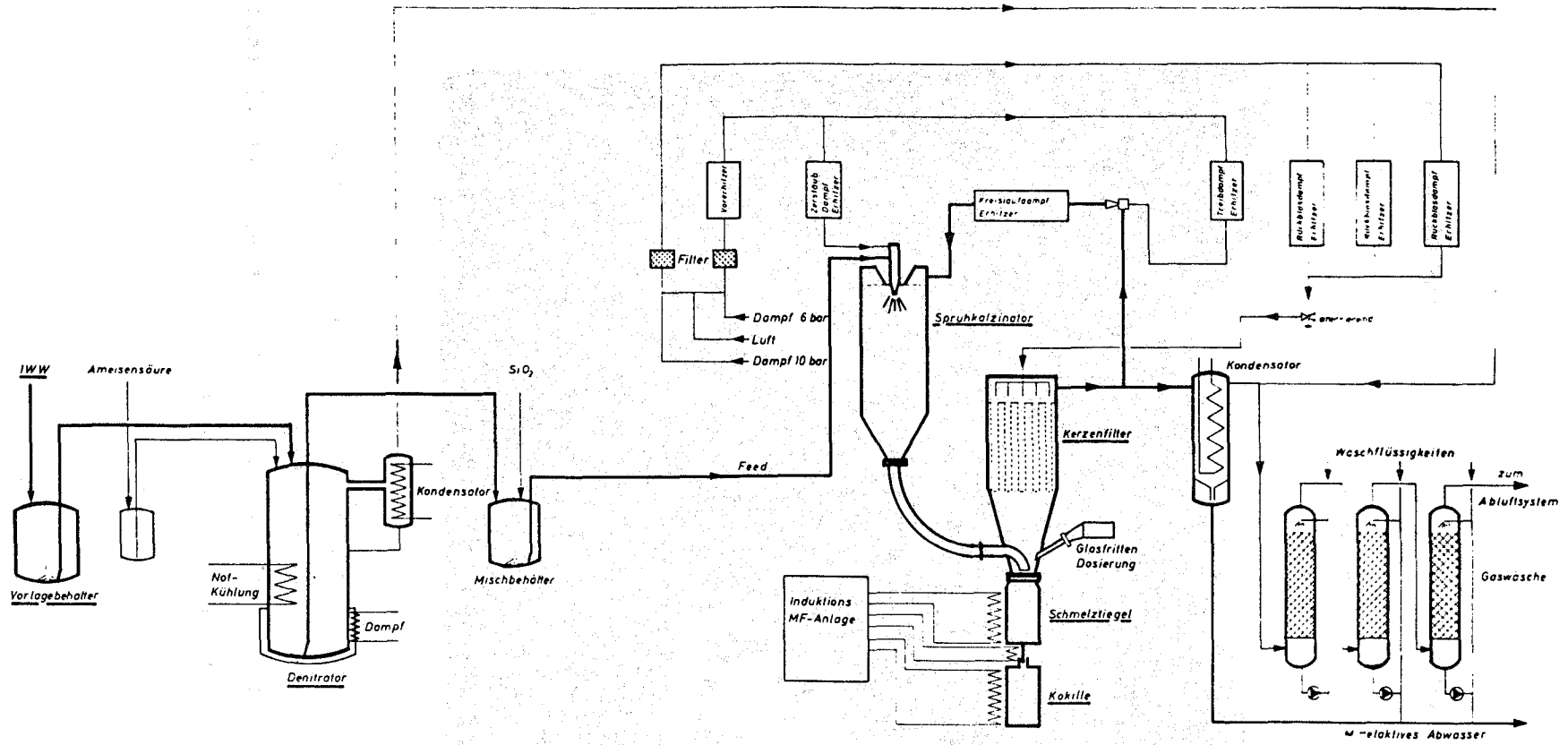


Abbildung 5 Vereinfachtes Fließbild zum VERA-Prozess



Vereinfachtes Fließbild zum VERA-Prozess

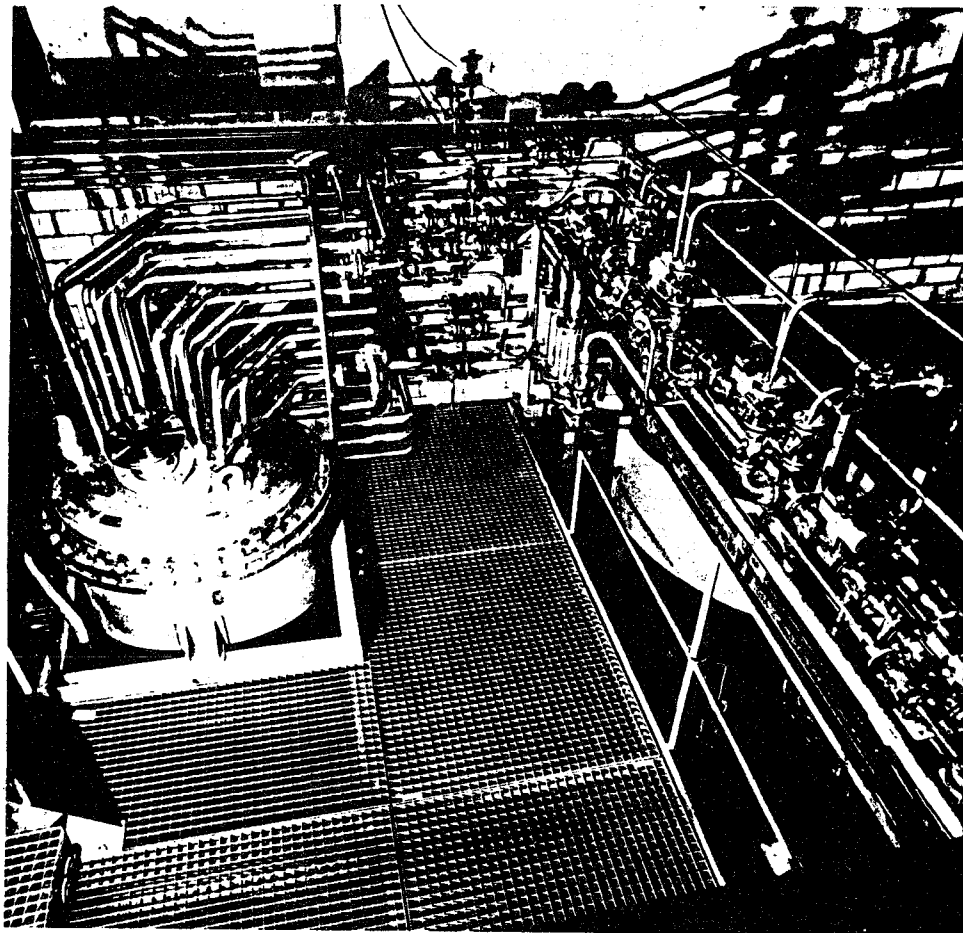


Abbildung 6 Denitrieranlage im 1:1-VERA-Maßstab,
redundant ausgelegt
Gesamtvolumen des Denitrierreaktors(links):
1000 l, Nutzvolumen: 200 l

In-line-Instrumentierung und rechnergeführte
Prozeßüberwachung bei der Wiederaufarbeitung

H.-R. Mache, Institut für Datenverarbeitung
in der Technik

P. Groll , Institut für Heiße Chemie

1. Aufgaben der Prozeßkontrolle und ihre Voraussetzungen

Rationelle, zuverlässige und sichere Prozeßführung ist nur möglich über eine ausreichende Prozeßkontrolle. Im allgemeinen Fall umfaßt die Prozeßkontrolle die Erfassung der relevanten Prozeßdaten, die Meldung von Prozeßstörungen und deren Abarbeitung, Einleitung von Gegenmaßnahmen bei Abweichungen, sowie die Regelung und Steuerung. Bei Wiederaufarbeitungsanlagen hat die umfassende Betriebsüberwachung Vorrang, damit das Erreichen von Gefahrensituationen und die Annäherung an Kritikalitätszuständen frühzeitig erkannt werden und eventuell notwendige Prozeß- oder Noteingriffe vorbereitet werden können.

Die Prozeßüberwachung basiert auf der Messung von Prozeßvariablen und Anlagenzuständen. Dazu sind einerseits Durchflüsse, Druck, Temperaturen und Flüssigkeitsniveaus und andererseits Konzentrationen von Uran, Plutonium, Säure und Spaltprodukten an den unterschiedlichsten Stellen im Prozeß zu bestimmen. Für die erst genannten Meßgrößen stehen überwiegend kommerzielle Meßgeräte zur Verfügung; dagegen fehlt es an in-line Meßgeräten für die kontinuierliche Messung von Konzentrationen in radioaktiven Prozeßlösungen. Diese aber sind notwendig zur verzögerungsfreien und umfassenden Prozeßkontrolle. Zur ausreichenden Instrumentierung als Voraussetzung für die wirkungsvolle Überwachung kommen detaillierte Kenntnisse des Prozeßgeschehens und über Störfälle hinzu.

Im ersten Teil wird ein Überblick über die existierenden in-line-Geräte gegeben; die rechnergeführte Datenerfassung und -verarbeitung wird im zweiten Teil behandelt.

2. Anforderungen an in-line-Meßgeräte

Für die ständige Kontrolle des Prozesses sollten in-line-Meßgeräte sehr zuverlässig sein. Bezüglich ihres Einsatzes in Wiederaufarbeitungsanlagen sind die folgenden Anforderungen verstärkt zu berücksichtigen:

- Genaue Kenntnis des Zusammenhangs zwischen Meßwert und Prozeßvariabler
- Geringe Meßwertverfälschung durch Fremdstoffe, Verunreinigungen und Strahleneinwirkung
- Repräsentative Meßwernerfassung
- Resistenz gegen Prozeßmedien (Korrosion, Alterung) und Strahlung (Strahlungsbeständigkeit)
- Weitgehende Wartungsfreiheit (wenig mechanisch bewegte Teile) und Überprüfbarkeit der Funktionsfähigkeit
- Hohe Meßwertkonstanz innerhalb der Meßgenauigkeit
- Möglichkeit der Nacheichung während des Prozeßlaufs
- Leichte Ersetzbarkeit bei Geräteausfall
- Rückführung der abgezweigten Prozeßströme in den Prozeß bei Geräten im Bypass (möglichst keine Reagenzzugabe)

3. Überblick über einsatzbereite in-line-Meßgeräte

Für die Konzentrationsbestimmung von Uran, Plutonium und Säure stehen bereits einige in-line-Geräte zur Verfügung /2/. Die Entwicklung solcher Geräte ist kostspielig und zeitaufwendig. Die Gründe dafür sind die Forderung nach großer Betriebssicherheit unter den erschwerten Bedingungen der radioaktiven und korrosiven Medien, der begrenzte Einsatz in der Wiederaufarbeitung und damit die geringen Stückzahlen sowie die intensiven Tests zur Erfüllung der Spezifikationen. In Abbildung 1 sind einige Meßgeräte zusammengestellt, die im Institut für Heiße Chemie des Kernforschungszentrums entwickelt wurden und für Tests in der WAK einsatzbereit sind:

ZUSAMMENSTELLUNG VON IN-LINE-GERÄTEN ZUR KONZENTRATIONSBESTIMMUNG

Meßgeräte	Meßprinzip	Meßgröße	Meßbereich	zul. Fremdaktivität Ci/l	Bemerkungen
α -Trommelmeßzelle	Aktivitätsmessung der Prozeßlösung	Pu	0,005-0,5 g/l	?	Isotopenzusammensetzung sollte bekannt sein; autom. Nacheichung möglich
γ -Absorptiometrie	Schwächung der γ -Strahlung durch Schwermetalle in der Prozeßlösung	U/Pu	0,01-100 g/l	0,1	automatische Nacheichung möglich
Differenzdichte	Dämpfung mechan. Schwingungen in Abhängigkeit von der Dichte der umgebenden Lösungen	U/Pu	10-100g/l	100	Einsatz in organischen u. anorg. Lösungen
nichtdispersive Röntgenfluoreszenzanalyse	Röntgenfluoreszenz der Schwermetallionen	U/Pu	0,05-50g/l	0,1	
pH-Durchflußmeßzelle	elektrochemische Potentialbestimmung	HNO ₃	0,001-0,1 Mol/l	10	Salzkonzentrationen 200g/l stören

- Bei der Trommelmeßzelle taucht eine rotierende Walze in eine vom Prozeßstrom kontinuierlich durchströmte Flüssigkeitszelle ein. Durch Adhäsion bildet sich auf der Walze ein Flüssigkeitsfilm aus, dessen α -Aktivität mit Detektoren ausgemessen wird. Das Meßgerät eignet sich für die Bestimmung von Plutonium, wobei die Isotopenzusammensetzung annähernd bekannt sein sollte. Die zulässige γ -Aktivität muß noch durch Versuche ermittelt werden.
- Durch Schwächung der γ -Strahlung einer Americium-241-Quelle durch Uran- oder/und Plutoniumlösungen kann bei der γ -Absorptometrie die Uran- oder Plutoniumkonzentration in Durchflußküvetten gemessen werden. Sind γ -Strahler in höherer Konzentration in der Meßlösung, so wird die Messung gestört. Zur Zeit ist ein weiterentwickeltes Prototypgerät im Test, das Messungen auch unter diesen Bedingungen erlaubt.
- Über die Dämpfung eines mechanischen Schwingungssystems kann die Dichte einer Flüssigkeit einfach bestimmt werden. Ermittelt man den Dichteunterschied zwischen der mit Uran oder Plutonium beladenen Prozeßlösung und der unbeladenen Phase, so ist die Schwermetallionenkonzentration proportional zur Dichtedifferenz. Die Meßmethode ist für wässrige und organische Phasen gleichermaßen verwendbar.
- Eine weitere Methode zur Uran- bzw. Plutoniumbestimmung besteht in der nichtdispersiven Röntgenfluoreszenz. Die integrale Messung der Sekundärstrahlung ist ein Maß für die Beladung der Prozeßströme mit Uran und Plutonium. Eigenaktivität der Prozeßlösung beeinträchtigt die Messung.
- Als letztes Meßgerät sei die pH-Durchflußmeßzelle für Säurebestimmung erwähnt. Bei nicht zu hohen Fremdsalzkonzentrationen wird mit Hilfe einer Glaselektrode das elektrochemische Potential bestimmt. Der Meßbereich ist leider auf 0,1 Mol/l begrenzt.

Die Aufzählung der Meßgeräte ist unvollständig und sollte nur einige Beispiele anführen. Die Entwicklung geeigneter in-line-Meßgeräte muß fortgesetzt werden. Zur Zeit wird versucht, die nichtdispersive Röntgenfluoreszenzanalyse auf die Simultanbestimmung von Uran und Plutonium auszudehnen.

Für die Wertigkeitsbestimmung von Uran und Plutonium im 1. Extraktionszyklus ist die Weiterentwicklung eines in-line-Spektrophotometers geplant.

Parallel zu diesen Meßgeräten wird man stets noch Laboruntersuchungen von Prozeßproben durchführen müssen. Die Ursache dafür ist, daß vielfach eine Meßgenauigkeit von 1-5% nicht ausreicht. Es kommt hinzu, daß einige Bestimmungsmethoden umfangreiche Probenvorbereitungen erfordern oder prinzipiell für eine kontinuierliche Messung wegen der Zugabe von Reagenzien ungeeignet sind.

4. Ziele der rechnergeführten Prozeßüberwachung

Nach dem Überblick über die in-line-Instrumentierung soll nun der Einsatz der Datenverarbeitung bei der Prozeßüberwachung behandelt werden. Elektronische Rechenanlagen können wegen ihrer freien Programmierbarkeit und hohen Ausführungsgeschwindigkeit für die unterschiedlichen Datenoperationen die Prozeßkontrolle in allen Bereichen wirkungsvoll unterstützen. Bei der Wiederaufarbeitung ist zunächst nur an eine rechnergeführte Prozeßüberwachung gedacht. Die Aufgabe des Rechners besteht dabei einerseits in der Erfassung der Daten von den Meß- und Alarmwertgebern, Alarmerkennung und -verarbeitung. Andererseits wird er für die Informationsauswertung, Datenspeicherung sowie zur zweckmäßigen und übersichtlichen Darstellung der Vielzahl von Prozeßinformationen auf Sichtgeräten eingesetzt. Das Bedienungspersonal interpretiert die dargebotene Prozeßinformation, fällt entsprechend ihrer Betriebs erfahrung Entscheidungen und greift direkt in das Prozeßgeschehen ein. Es wird sich bewußt auf die Prozeßüberwachung beschränkt, weil zur Zeit brauchbare und umfassende Modelle für die Steuerung fehlen. Die geplante Wiederaufarbeitungsanlage ist zudem recht komplex und ein sinnvoller Eingriff erscheint derzeit nur durch den Menschen möglich.

Für den Aufbau eines umfassenden und zuverlässigen Prozeßüberwachungssystems werden im Bereich der Datenverarbeitung Hilfs-

mittel für die Erstellung von Programmen entwickelt. Es werden Rechner- und Programmkonfigurationen bezüglich Zuverlässigkeit untersucht sowie Konzepte für eine vernünftige Datenstruktur und Informationsdarstellung erstellt und erprobt. Erste Ergebnisse liegen von der exemplarischen Implementierung der rechnergeführten Prozeßüberwachung für die Modellanlage TAMARA vor. Das bestehende Prozeßüberwachungssystem /1/ und die bisherigen Ergebnisse sollen im folgenden kurz dargestellt werden.

5. Kurzbeschreibung des Prozeßüberwachungssystems TAMARA

TAMARA (Technikumsaufbau eines Modells einer automatisierten Reprocessing Anlage) ist eine vereinfachte Extraktionsanlage für das System $U/HNO_3/TBP$ und simuliert einen vollen Uran-Extraktionszyklus. Sie besteht aus einer Misch-Absetz-Batterie im WAK-Maßstab bzw. wahlweise einer Pulskolonne für die Extraktion und einer Misch-Absetz-Batterie für die Rückextraktion. Die Prozeßströme werden weitgehend im Kreislauf gefahren; mit Hilfe eines Verdampfers wird die Produktlösung aufkonzentriert und über ein Einstellsystem als Feedlösung zurückgeführt. Die Durchsätze entsprechen der WAK.

Abbildung 2 zeigt eine Gesamtansicht der Modellanlage. Links im Bild ist der Verdampfer zu sehen. Davor steht ein Verdampferregelsystem mit einer γ -Absorptiometriemeßzelle. Im rechten Teil des Bildes sind die beiden Misch-Absetz-Batterien als Stahlwannen zu erkennen, die in einem Metallgerüst hängen. Im Mittelteil kann man Zwischenfässer und Pumpen sehen.

Zur Fluß- und Temperaturüberwachung ist TAMARA mit konventionellen Durchfluß- und Temperaturmeßstellen instrumentiert. Für die Konzentrationsbestimmung des Säure- und Urangehalts wurden die vorher vorgestellten in-line-Meßgeräte γ -Absorptiometrie, nichtdispersive Röntgenfluoreszenzanalyse und pH-Meßstellen eingesetzt. Hinzu kommen 2 kombinierte Dichte-Leitfähigkeitsmeßzellen für die gleichzeitige Bestimmung von Uran und Säure.

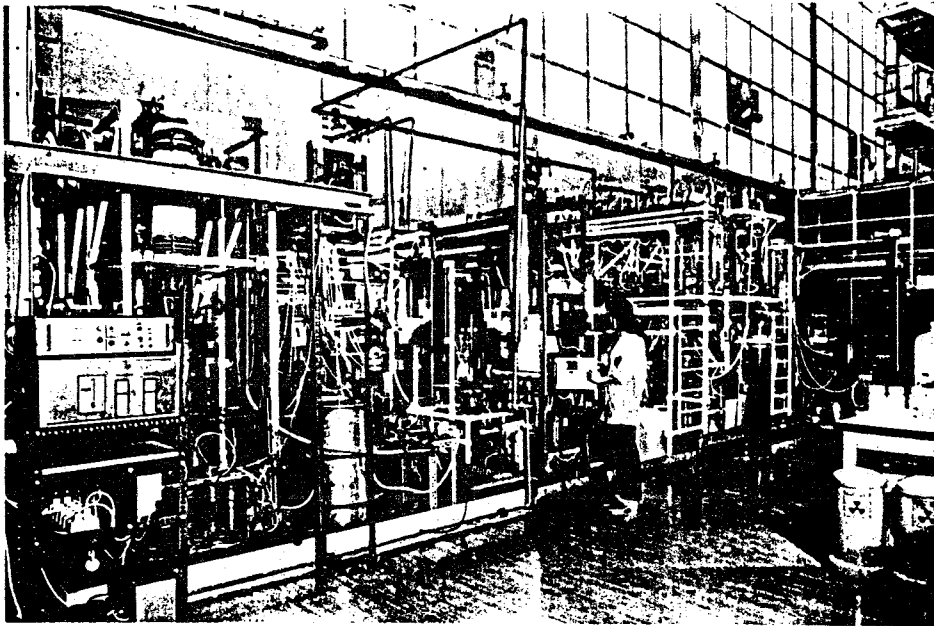


Abb. 2 Gesamtansicht der Modellanlage TAMARA

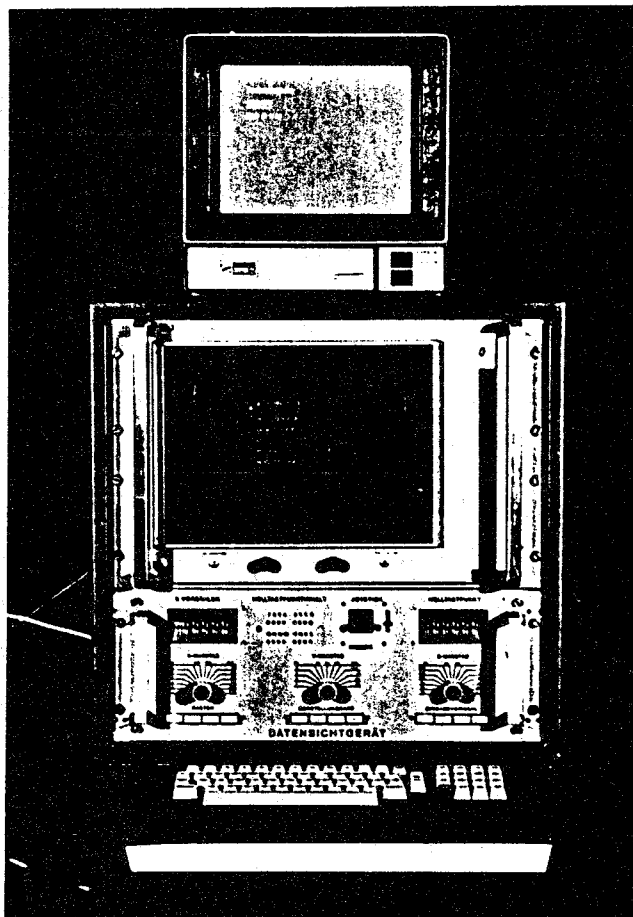


Abb. 3 Sichtgerätestation für den Dialog Operator-Rechner

Vom Rechner sind nach dem Stand vom 31.12.1974 folgende Prozeßsignale zu verarbeiten:

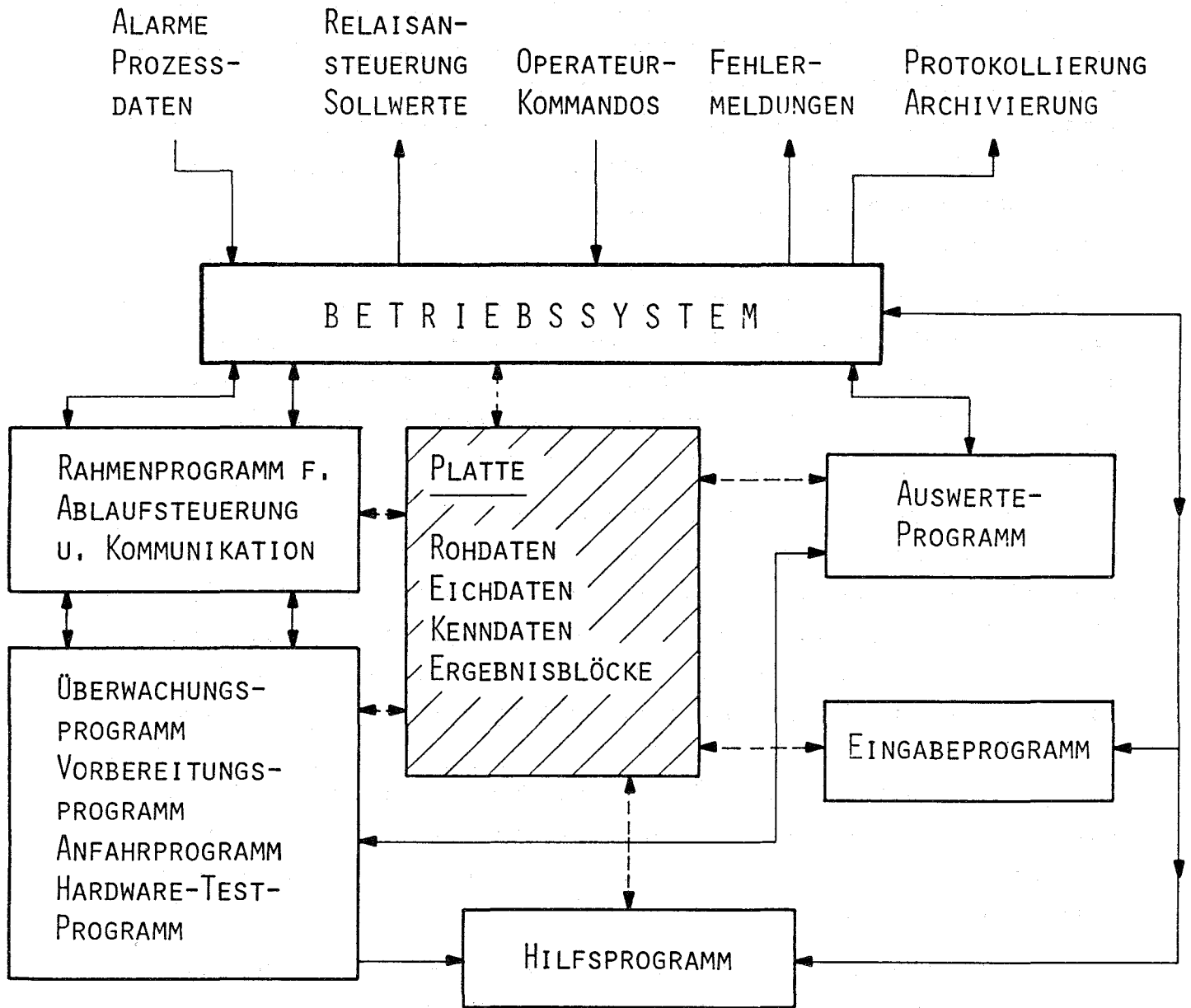
- 21 Analog-Meßwerte
- 2 Digital-Meßwerte
- 104 Status-Meldungen
- 57 Alarm-Meldungen (gekoppelt mit Status-Meldungen)
- 6 Sollwertausgaben
- 23 Relais-Ansteuerungen

Die Modellanlage wurde über ein eigenentwickeltes Prozeßinterface an das zentrale CALAS-Prozeßrechnersystem des Kernforschungszentrums angeschlossen. Vor Ort sind für den Dialog Operator-Rechner 2 Sichtgeräte und eine Tastatur installiert, wie sie in Abb. 3 wiedergegeben werden. Der obere Bildschirm dient zur Ausgabe von Anweisungen an den Operator und von Fehlermeldungen. Auf dem unteren Sichtgerät werden Meßwerte in tabellarischer Form ausgegeben, Parameterlisten für die Eingabe und Kontrolle oder Meßergebnisse und Anlagenzustände in verschiedenen Aufbereitungen.

Die Programmausrüstung baut auf dem Vielfachzugriffs-Betriebssystem CALAS 69/4 auf. Innerhalb diesem läuft das Programmpaket TAMARA/C quasi parallel zu 7 anderen Experimenten ab. Die Struktur des Softwaresystems ist schematisch in Abb. 4 dargestellt. Als Datenbasis wurden getrennte Informationsblöcke für Roh-, Eich-, Kenndaten und Ergebniswerte gewählt. Das Programmsystem besteht derzeit aus 4 Datenerfassungs- und Überwachungsmoduln und 13 Auswerte- und Hilfsprogrammen.

Die Prozeßsignale werden über das Betriebssystem an das Rahmenprogramm des Programmsystems TAMARA/C weitergeleitet. Das Rahmenprogramm übernimmt die Ablaufsteuerung der Prozeßüberwachung, die Abwicklung der Operateureingriffe, die Verwaltung der Fehlermeldungen und die Notabschaltung des Prozesses bei Gefahrensituationen. Der Operator kann durch Funktionstasten den Programmablauf steuern, Alarmsignale quittieren und die verschiedenen Prozeßphasen initialisieren.

ABB. 4 AUFBAU DES PROGRAMMSYSTEMS TAMARA/C



Für letztere existieren jeweils einzelne Teilmoduln, die der Prozeßvorbereitung, dem Anfahren, der stationären Prozeßüberwachung oder dem Hardwaretest dienen. Diese führen die Datenerfassung, -speicherung, Alarmverarbeitung und Initialisierung von Auswerteprogrammen entsprechend dem vorliegenden Prozeßzustand funktionell und zeitlich korrekt durch. Im Normalfall werden die Meßwertgeber als Ganze in vorgebbaren Zeitintervallen zyklisch abgefragt und die Meßdaten mit dem Anlagenzustand auf einem externen Schnellzugriffsspeicher wie Platte und auf Magnetband abgelegt.

Die Teilmoduln starten ihrerseits Auswerteprogramme. Diese berechnen aus den erfaßten Meßdaten anhand von Eichdaten schritthaltend die physikalischen Meßwerte. Außerdem wird die aktuelle Prozeßinformation unmittelbar auf dem Bildschirm dem Betriebsingenieur in tabellarischer Form dargeboten.

Zur Eingabe von Eichwerten, Prozeßkenn- und Prozeßsteuerdaten stehen mehrere Dialog-Programme zur Verfügung. Während des Prozeßlaufs sind Änderungen von Parametern sowie neue Sollwerte für die Durchflußregelstrecken beliebig vom Operateur einzugeben. Andere Hilfsprogramme dienen der Ausgabe von älteren Meßwerten. Dabei lassen sich einerseits die Meßwerte eines Zyklus zusammenfassen und andererseits die Meßwerte einer Meßstelle für aufeinanderfolgende Zyklen ausgeben. Hinzu kommen Programme für die Aufstellung von Massenbilanzen, zur Berechnung von Dosierdaten, zur Abfrage des Anlagenstatus und für die Protokollierung von Operateurkommandos.

Die bisherigen Prozeßläufe der Modellanlage haben ergeben, daß die meisten in-line Geräte innerhalb der Meßgenauigkeit von 1-5% ein ausreichend gutes Langzeitverhalten besitzen. Die Wartung der Meßgeräte beschränkte sich im allgemeinen während der Versuchsläufe nur auf die Kontrolle der Eichwerte.

Die rechnergeführte Datenerfassung, schritthaltende Auswertung und die Ausgabe der Prozeßinformation funktionierten einwandfrei. Bis zu Zykluszeiten von 5 sec ergaben sich keine Störungen. Die

Aufteilung der Information auf 2 Bildschirme erwies sich als sehr vorteilhaft; ebenso erfüllte der programmgeführte Dialog zwischen Rechner und Operateur voll die Anforderungen. Lediglich bei der Ansteuerung der Regelstrecken für die Durchflüsse traten Schwierigkeiten auf. Aus diesem Grunde konnte das Modul für das Anfahren des Prozesses bisher nicht getestet werden. Die Prüfung des selbständigen Abschaltens des Prozesses bei Gefahrensituationen durch den Rechner steht auch noch aus.

6. Schlußbemerkungen

Die bis jetzt entwickelten in-line Instrumente müssen sich zunächst in einer Wiederaufarbeitungsanlage bewähren. Die Entwicklung neuer in-line Instrumente ist weiterzuführen, vor allem um Instrumente in höher aktiven Bereichen einer Wiederaufarbeitungsanlage einsetzen zu können. Sie erst bieten die Voraussetzung für die geplante sichere Prozeßüberwachung einer großen Wiederaufarbeitungsanlage, wofür die vorliegenden Ergebnisse ein Ansatzpunkt sind.

Von Seiten der Datenverarbeitung ist TAMARA eine Teildemonstration der möglichen rechnergeführten Prozeßüberwachung von Wiederaufarbeitungsprozessen. Die Entwicklungsarbeiten müssen auf den gesamten Extraktionsprozeß ausgedehnt werden. Später sollen sie auch die Bereiche Head-End und Abfallbearbeitung umfassen. Neben der Verbesserung der Prozeßkontrolle durch Integration von Prozeßmodellen in die Prozeßüberwachung sind zu einem späteren Zeitpunkt das Betriebslabor einschließlich der Spaltstofffluß- und Warenein- und -ausgangskontrolle in die Überwachung einzu beziehen.

Literatur

/1/ G. Baumgärtel, K. Bier, E. Kuhn, H.-R. Mache, S. Radek
TAMARA - Eine Uranextraktionsanlage zur Demonstration
der rechnergeführten Prozeßüberwachung bei der Wieder-
aufarbeitung

Teil 1: Beschreibung der Anlage und Versuchsergebnisse
KFK-Bericht 2041, 1975

/2/ G. Baumgärtel, L. Finsterwalder

In-line Instrumentierung bei der Wiederaufarbeitung von
betrahlten Kernbrennstoffen

Kerntechnik 12 (8), 347-355, 1970