

KfK 2615
April 1978

**Sammlung der Vorträge
anlässlich des
2. Statusberichtes des
Projekt Wiederaufarbeitung
und Abfallbehandlung am
18. 11. 77**

Projekt Wiederaufarbeitung und Abfallbehandlung

Kernforschungszentrum Karlsruhe

Als Manuskript vervielfältigt
Für diesen Bericht behalten wir uns alle Rechte vor

KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE GMBH

K E R N F O R S C H U N G S Z E N T R U M K A R L S R U H E

Projekt Wiederaufarbeitung und Abfallbehandlung

KfK 2615

PWA 15/78

Sammlung der Vorträge anlässlich des
2. Statusberichtes des Projektes Wiederaufarbeitung
und Abfallbehandlung am 18.11.77

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH, Karlsruhe



Inhaltsverzeichnis

	Seite
1. Begrüßung und Eröffnung H. Böhm, Vorstandsmitglied der Kernforschungszentrum Karlsruhe, GmbH.	1-6
2. Stand der Verwirklichung des Entsorgungskonzeptes aus der Sicht der Bundesregierung M. Hagen, Bundesministerium für Forschung und Technologie	7-15
3. Stand und künftige Aufgaben des Projektes Wiederaufarbeitung und Abfallbehandlung (PWA) R. Kroebel, Projektleitung PWA	16-36
4. Stand des Projektes Entsorgungszentrum E. Hess, Deutsche Gesellschaft zur Wiederaufarbeitung von Kernbrennstoffen (DWK)	37-47
5. Die F+E-Vorhaben aus der Sicht der Anlagenplanung für das Entsorgungszentrum P. Zühlke, Kernbrennstoff-Wiederaufarbeitungsgesellschaft mbH. (KEWA)	48-60
6. Stand und Technik bei der Behandlung des Auflöserabgases einer Wiederaufarbeitungsanlage und Wege der Verfahrensoptimierung F. Baumgärtner, Institut für Heiße Chemie	61-91
7. Tieflagerung Radioaktiver Abfälle im Salz - Erreichtes und Geplantes - F. Perzl, Gesellschaft für Strahlen- und Umweltforschung mbH, München (GSF)	92-112
8. Auslegungsstörfälle in den Einrichtungen des Entsorgungszentrums und die geplanten Maßnahmen zu ihrer Beherrschung W. Issel, Kernbrennstoff-Wiederaufarbeitungsgesellschaft mbH. (KEWA)	113-138

- | | |
|--|---------|
| 9. Neue Ergebnisse in der Versuchsanlage MILLI aus Experimenten zur Wiederaufarbeitung von Kernbrennstoffen
W. Ochsenfeld, Institut für Heiße Chemie | 139-159 |
| 10. Verfahrensentwicklungen zur Abfallminimierung im Purex-Prozeß
H. Schmieder, Institut für Heiße Chemie | 160-178 |
| 11. Aufgaben zur Optimierung des Headends für die deutsche Wiederaufarbeitungsanlage
K.D.Kuhn, Kernbrennstoff-Wiederaufarbeitungsgesellschaft mbH. (KEWA) | 179-205 |
| 12. Die Eindampfanlage für mittelaktive, wässrige Abfallösungen - Auslegung und Betriebserfahrungen
H.J.Funk, Abteilung Dekontaminationsbetriebe (ADB) | 206-215 |
| 13. Fixierung von MAW in anorganischer Matrix
L. Kahl, Abteilung Behandlung radioaktiver Abfälle (ABRA) | 216-229 |
| 14. Inline-Instrumentierung und Laborautomatisierung als Grundlage einer effektiven Prozeßkontrolle
P. Groll, Institut für Heiße Chemie (IHCh) | 230-256 |
| 15. DV-System für das Betriebslabor einer Wiederaufarbeitungsanlage
R. Friehmelt, Institut für Datenverarbeitung in der Technik (IDT) | 257-267 |

Prof. Dr. H. Böhm

Statusbericht 1977 des Projektes Wiederaufarbeitung und Abfall-
behandlung am 18. November 1977

Begrüßung und Eröffnung

Ich möchte Sie sehr herzlich im Kernforschungszentrum Karlsruhe zum zweiten Statusbericht unseres Projektes Wiederaufarbeitung und Abfallbehandlung begrüßen und Ihnen einen interessanten und informativen Tag wünschen.

Es sind fast genau zwei Jahre her, als das Kernforschungszentrum Karlsruhe den ersten Statusbericht seines Projektes Wiederaufarbeitung und Abfallbehandlung abhielt. Wir hatten von vornherein einen zweijährigen Rythmus dieser Informationsveranstaltung vorgesehen, um den ohnehin schon überladenen Tagungskalender nicht noch stärker zu belasten.

Mit großer Freude und Genugtuung stelle ich fest, daß die Zahl der Teilnehmer an diesem zweiten Statusbericht unsere Erwartungen weit übertroffen hat. Nicht nur die Zahl der Teilnehmer, sondern insbesondere auch die Tatsache, daß wir Abgeordnete, Vertreter der verschiedenen Ministerien und Behörden, zahlreicher Industriefirmen und Forschungseinrichtungen aus dem In- und Ausland sowie nicht zuletzt der Presse begrüßen können, spiegelt das ungebrochene, breite Interesse wieder, das diesem Teil der Kerntechnik entgegengebracht wird.

Bei der Eröffnung des ersten Statusberichtes habe ich erläutert, warum Karlsruhe besonders prädestiniert ist, die Arbeiten zur

nuklearen Entsorgung der Leichtwasserreaktoren zu einem Schwerpunkt seines Programms zu machen, und ich habe dabei auf die in den sechziger und im Anfang der siebziger Jahre geleisteten Vorarbeiten hingewiesen. Der heutige Statusbericht steht verständlicherweise im Zeichen einer Information über die in den vergangenen zwei Jahren durchgeführten Arbeiten. Nun sind unsere Arbeiten zur Wiederaufarbeitung und Abfallbehandlung nicht völlig isoliert zu betrachten. Sie stehen vielmehr, wie wir alle wissen, in engem Zusammenhang mit den politischen und wirtschaftlichen Aspekten und Vorhaben auf diesem Gebiet.

Angesichts dieser Tatsache haben wir in das Programm unseres Statusberichtes nicht nur Berichte aus unserem engeren Projektbereich aufgenommen, sondern wir haben auch Vertreter des BMFT, der DWK, der KEWA, der GWK, der GSF sowie unserer Abteilung Dekontaminationsbetriebe um Beiträge gebeten. Den genannten Organisationen und Firmen und insbesondere den Autoren für ihre Bereitschaft, sich an diesem Statusbericht aktiv zu beteiligen, zu danken, ist mir an dieser Stelle eine angenehme Aufgabe. Zugleich möchte ich aber auch unseren Mitarbeitern für die geleistete Arbeit der vergangenen Jahre herzlich danken.

Die Einbettung unserer Arbeiten in den Gesamtbereich der nuklearen Entsorgung rechtfertigt es auch, wenn ich in meiner Eröffnung nicht nur auf einige wichtige interne Ereignisse der vergangenen zwei Jahre hinweise sondern auch auf solche, die außerhalb unserer eigenen Arbeiten liegen, die aber direkt oder indirekt einen Einfluß auf unserer Arbeiten hatten oder noch haben werden.

Herausragendes Ereignis im weltpolitischen Rahmen in dieser Zeit war zweifellos die Erklärung von Präsident Carter, die kommerzielle Wiederaufarbeitung abgebrannter Brennelemente auf unbestimmte Zeit zu verschieben. Die Konferenz in Salzburg im Frühjahr dieses Jahres wurde deutlich durch diese Änderung der amerikanischen Politik mitgeprägt. Für Politiker und Fachexperten in der Bundesrepublik bedeutet diese Erklärung den Beginn einer langanhaltenden Diskussion im internationalen Rahmen, in der das von der Bundesrepublik Deutsch-

land und anderen Ländern verfolgte Konzept einer Entsorgung über die Wiederaufarbeitung den anderen denkbaren Alternativen kritisch gegenübergestellt wurde. Das "International Fuel Cycle Evaluation Program", an dem viele der hier Anwesenden aktiv beteiligt sind, ist ein Ergebnis dieser Diskussion.

Verlassen wir damit den internationalen Rahmen und wenden uns einigen wichtigen Ereignissen auf dem Entsorgungssektor innerhalb der Bundesrepublik zu. Ich möchte dabei nicht auf den sich gerade in diesen Tagen am politischen Horizont abzeichnenden Silberstreif Bezug nehmen sondern mich auf die Ereignisse im wirtschaftlichen und technischen Bereich beschränken.

Die erfolgte Gründung der Deutschen Gesellschaft für Wiederaufarbeitung (DWK) ist ein deutliches Zeichen der Elektrizitätsversorgungsunternehmen, die Planung, den Bau und den Betrieb eines Entsorgungssystems im großtechnischen Umfang verantwortlich durchzuführen. Durch die zum 1.9.1977 erfolgte Übernahme der KEWA durch die DWK sowie die zum 1.1.1979 geplante Übernahme der GWK durch dieselbe Firma hat die wünschenswerte Konzentration auf diesem Gebiet einen Zustand erreicht, der eine effektive und erfolgreiche Bearbeitung und Lösung der schwierigen Aufgaben bei der Errichtung und Inbetriebnahme eines Entsorgungszentrums ermöglichen und zugleich sicherstellen sollte. Für das Kernforschungszentrum bedeutet dies, daß wir es in Zukunft hinsichtlich unserer Zusammenarbeit mit der Wirtschaft im wesentlichen nur noch mit einem Partner zu tun haben werden.

Im Frühjahr 1977 hat die DWK den zuständigen Behörden den Sicherheitsbericht für das Entsorgungszentrum, als dessen Standort von der Niedersächsischen Landesregierung in der Zwischenzeit Gorleben vorgeschlagen worden war, vorgelegt. Ende Oktober dieses Jahres haben die Reaktorsicherheitskommission und die Strahlenschutzkommission in einer Stellungnahme die sicherheitstechnische Realisierbarkeit des Entsorgungszentrums bejaht. Die mit der Stellungnahme verbundenen Empfehlungen werden zweifellos einen Einfluß auf unser weiteres F+E-Programm haben.

Bezüglich der Endlagerung radioaktiver Abfälle ist durch die Novelle zum Atomgesetz die Zuständigkeit der Physikalisch-Technischen Bundesanstalt für diese Aufgabe festgelegt worden, womit für uns auch auf diesem Gebiet der zuständige Partner festliegt.

Lassen Sie mich nun noch auf einige wenige Punkte und interne Ereignisse der letzten Zeit hinweisen, die im unmittelbaren Zusammenhang mit unseren Arbeiten zur Wiederaufarbeitung und Abfallbehandlung stehen. Auf die Fortschritte und Ergebnisse unseres eigentlichen F+E-Programms wird im Übersichtsvortrag des Projektleiters sowie den zahlreichen Fachvorträgen ausführlich eingegangen.

Hinsichtlich der personellen und finanziellen Ausstattung ist das Projekt in den vergangenen zwei Jahren in eine Konsolidierungsphase eingetreten und hat die unserer Meinung nach sachlich zu rechtfertigende Größe erreicht.

Im Berichtszeitraum ist mit dem Bau einer für unsere Arbeiten wie auch für die Arbeiten der DWK wichtigen Anlage, der Technikumshalle zur Komponentenerprobung TEKO begonnen worden. Ihre Fertigstellung soll termingerecht im nächsten Jahr erfolgen. Sie ist das äußere optische Zeichen im Kernforschungszentrum für unsere verstärkte Tätigkeit auf diesem Gebiet. In dieser Anlage werden Mitarbeiter verschiedener Firmen sowie des Kernforschungszentrums an der Weiterentwicklung und Erprobung von Verfahren und Komponenten zur Wiederaufarbeitung und Abfallbehandlung arbeiten. Von erheblicher Bedeutung für die Weiterentwicklung der Wiederaufarbeitung und Abfallbehandlung und deshalb auch an dieser Stelle erwähnenswert sind die betrieblichen Erfahrungen der vergangenen zwei Jahre in der WAK und in der ADB.

So sind in der WAK Leichtwasserreaktorbrennelemente mit einem Abbrand bis zu 39.000 MWd/t erfolgreich wiederaufgearbeitet worden, ein Ergebnis, das nicht hoch genug eingeschätzt werden kann, insbesondere wenn man es vor dem Hintergrund der in der Öffentlichkeit manchmal aufgestellten Behauptung von der "ungelösten Wieder-

aufarbeitung" sieht.

Der erfolgreiche Betrieb der im Kernforschungszentrum entwickelten Filter zur Jodrückhaltung im aktiven Betrieb der WAK ist ein weiterer Punkt, der einen bedeutsamen Fortschritt darstellt. Ein integriertes Abgassystem an der WAK unter der Bezeichnung AZUR, das nicht nur die Jodrückhaltung sondern u.a. auch die Krypton-Abtrennung beinhaltet, ist vor einigen Tagen von uns in Auftrag gegeben worden und soll bis Ende 1980 fertiggestellt sein. Auch die Arbeiten in und die Erfahrungen mit der ADB in den vergangenen zwei Jahren verdienen in diesem Zusammenhang besondere Erwähnung.

Seit einigen Jahren werden die Anlagen bei laufendem aktiven Betrieb im Rahmen eines mehrjährigen Sanierungs-, Umbau- und Ergänzungsprogramms in einen Zustand gebracht, der eine Verarbeitung und Konditionierung der in der WAK und dem Kernforschungszentrum anfallenden schwach- und mittelaktiven Abfälle auch langfristig sicherstellt. Die hierbei gewonnenen Erfahrungen ergänzen unsere F+E-Ergebnisse in ausgezeichneter Weise und finden ihren Niederschlag in einem starken Interesse der in- und ausländischen Industrie an unseren Verfahren und Erfahrungen. Wir werden diese Anlagen in Zukunft stärker als es bisher möglich war als Testbett für die Erprobung neuer Verfahren nutzen.

Im Bereich der F+E-Arbeiten zur Endlagerung radioaktiver Abfälle haben wir aus Gründen der hohen Prioritäten der anstehenden Aufgaben sowie der besseren Nutzung der Kapazitäten die entsprechenden Arbeiten, die in der GSF und dem Kernforschungszentrum durchgeführt werden, nicht nur verstärkt sondern auch in einer von den beiden genannten Gesellschaften getragenen Entwicklungsgemeinschaft unter einheitlicher Leitung zusammengefaßt. Diese Arbeiten werden daher ab 1.1.1978 aus dem Projekt Wiederaufarbeitung und Abfallbehandlung herausgenommen.

Diese kurze, unvollständige Aufzählung wichtiger externer wie interner Ereignisse in der Zeit seit dem letzten Statusbericht

mag genügen, um Sie auf das Thema des heutigen Tages etwas einzustimmen und den Rahmen abzustecken, innerhalb dessen unsere Arbeiten zur nuklearen Entsorgung zu sehen sind.

Mit dem Wunsch, daß diese Veranstaltung Ihre Erwartungen bezüglich Information und Kenntnis- und Erfahrungsaustausch erfüllen möge, eröffne ich den heutigen Statusbericht.

Stand der Verwirklichung des Entsorgungskonzeptes aus der Sicht der Bundesregierung

Dr. M. Hagen, BMFT

1. Die politischen Diskussionen der letzten Wochen und Monate und die jüngsten Beschlüsse der politischen Parteien haben deutlich gemacht, welche zentrale Bedeutung der Lösung der Entsorgungsfrage für die weitere Entwicklung unseres Programms zur friedlichen Nutzung der Kernenergie zukommt, eine Bedeutung, die zumindest z.Zt. auch unabhängig von der energiepolitischen Rolle der Kernenergie gesehen wird. Diese Entwicklung zeichnete sich bereits beim 1. Statusbericht der PWA vor zwei Jahren ab, war allerdings nicht in dem dann tatsächlich eingetretenen Umfang abzusehen.
2. Lassen Sie mich zunächst nochmals kurz das System der Anforderungen für eine befriedigende Entsorgungsvorsorge beschreiben:

Die Bundesregierung hat unter Beachtung des Verursacherprinzips eine Kopplung der Genehmigung von Bau und Betrieb von KKW stufenweise an eine ausreichende Entsorgungsvorsorge durchgesetzt.

Die Bundesregierung stützt sich dabei in den Einzelanforderungen grundsätzlich auf Ihr Konzept eines gemeinsam mit der Industrie aufzubauenden und in Betrieb zu nehmenden integrierten Entsorgungssystems, das sowohl national wie international als optimale Lösung anerkannt ist.

Die Bundesregierung hat diesen Grundsatz in der Regierungserklärung vom Dezember 1976 und in dem Beschluß des Bundeskabinetts über die Grundlinien und Eckwerte für die Fortschreibung des Energieprogramms im März 1977 bekräftigt und damit ihre bereits 1974 eingeleitete Politik des konstruktiven Zwanges zur rechtzeitigen Sicherstellung der Beherrschung aller Folgeprobleme der KE-Nutzung, insbesondere bei der Schließung des Brennstoffkreislaufs unterstrichen.

Die Bundesregierung hat im Frühjahr dieses Jahres im Einvernehmen mit der Mehrheit der Länder "Grundsätze zur Entsorgungsvorsorge für Kernkraftwerke" aufgestellt, um den Antragstellern und Genehmigungsinhabern von Kernkraftwerken die im Rahmen der Genehmigungsverfahren herbeizuführenden Konkretisierungen einer Entsorgungsvorsorge zu verdeutlichen.

Die Entsorgungsgrundsätze gehen primär von einer Verknüpfung der Genehmigung weiterer Kernkraftwerke mit Fortschritten bei der Verwirklichung des deutschen Entsorgungszentrums aus.

Sie unterscheiden nach 3 Fallgruppen:

- Vorhaben, für die noch keine atomrechtliche Genehmigung erteilt ist
- in der Errichtung oder Inbetriebnahme befindliche Kernkraftwerke
- in Betrieb befindliche Kernkraftwerke.

Sie erlegen Antragstellern und Genehmigungsinhabern auf, vor bestimmten Errichtungs- oder Betriebsgenehmigungen in fortschreitender Konkretisierung nachzuweisen,

- wieviele Brennelemente aus ihrem Kraftwerk entladen werden und zu welchem Zeitpunkt dies geschieht,
- wo und wie diese Brennelemente gelagert werden,
- welche Vorbereitungen getroffen wurden, um die Brennelemente wiederaufzuarbeiten und ihre Abfälle zu beseitigen.

Der Nachweis der Vorsorge der Entsorgung kann sich auf das geplante deutsche Entsorgungszentrum, auf ausländische Vertragspartner oder zunächst auf vergleichbare andere Entsorgungslösungen oder zeitlich begrenzte Teillösungen (z.B. Zwischenlager für bestrahlte Brennelemente) abstützen.

Für die Erteilung einer 1. Teilerrichtungsgenehmigung für neue Kernkraftwerke machen die Entsorgungsgrundsätze, sofern sich die Vorsorge der Entsorgung auf das geplante Entsorgungszentrum abstützt, zur Voraussetzung

- a) Vorauswahl eines oder mehrerer grundsätzlich geeigneter Standorte für das Entsorgungszentrum,
- b) Einleitung des Genehmigungsverfahrens durch Antrag auf die 1. Teilerrichtungsgenehmigung für die Wiederaufarbeitungsanlage (Brennelemente-Eingangslagerbecken) als Bestandteil des Entsorgungszentrums mit Antragsunterlagen, die die Basis für ein vorläufiges Gesamturteil über das gesamte Entsorgungszentrum bilden,
- c) positives Urteil von Reaktor-Sicherheitskommission und Strahlenschutzkommission über die grundsätzliche sicherheitstechnische Realisierbarkeit des Entsorgungszentrums.

Dabei ist unter der grundsätzlichen sicherheitstechnischen Realisierbarkeit des Entsorgungszentrums zu verstehen, daß die erforderlichen Kenntnisse und technischen Mittel vorhanden sind oder rechtzeitig beschafft werden können, um das Entsorgungszentrum den Genehmigungsvoraussetzungen des § 7 Abs. 2 des Atomgesetzes entsprechend zu errichten und zu betreiben.

Der Bundesminister des Innern hat die Länder im Sommer 1977 angewiesen, die Entsorgungsgrundsätze ab sofort als Mindestvoraussetzung hinsichtlich der Entsorgung in Genehmigungsverfahren für Kernkraftwerke anzuwenden.

3. Ich möchte nun skizzieren, welche Fortschritte bei der Erfüllung der Entsorgungsanforderungen inzwischen erreicht wurden, Fortschritte, die letztlich erst die jüngsten im Grundsatz positiven Beschlüsse der großen politischen Parteien zur weiteren Kernenergienutzung möglich machten.

a) Auf der politisch-rechtlichen Ebene hat der Deutsche Bundestag bei der Verabschiedung der 4. Novelle zum Atomgesetz das Entsorgungskonzept der Bundesregierung gebilligt.

Es wurden damit die rechtlichen Voraussetzungen für die Verwertung radioaktiver Reststoffe und die Beseitigung radioaktiver Abfälle geschaffen (gem. § 9 a Atomgesetz). Es ist vorgesehen, diese Bestimmungen bei einer Novellierung des Atomgesetzes weiter zu konkretisieren.

Der Betreiber eines Kernkraftwerkes ist hiernach, dem Verursacherprinzip entsprechend, verpflichtet, in der Anlage anfallende radioaktive Reststoffe, und hierzu sind insbesondere bestrahlte Brennelemente zu zählen, schadlos zu verwerten oder als radioaktive Abfälle geordnet zu beseitigen.

Die Verantwortung für die Sicherstellung und Beseitigung der radioaktiven Abfälle wurde dem Bund, vertreten durch die Physikalisch-Technische Bundesanstalt, übertragen, die damit zuständig ist für Errichtung und Betrieb des Teilprojektes Abfallendlagerung im Entsorgungszentrum. Sie soll sich bei der Wahrnehmung dieser Aufgaben der Hilfe Dritter, d.h. entsprechend fachkundiger Industriefirmen bedienen können.

b) Auf der industriellen Ebene hat die Kopplung von Entsorgungsvorsorge und Genehmigung neuer Kernkraftwerke die Elektrizitätswirtschaft schließlich dazu veranlaßt, die Realisierung des Entsorgungszentrums planerisch und durch

Bereitstellung von Finanzmitteln beschleunigt in Angriff zu nehmen, nachdem die chemische Industrie sich schließlich doch nicht bereitfand, zur Finanzierung der Entsorgungsanlagen beizutragen. Es ist zu hoffen und zu erwarten, daß ihre fachliche Mitwirkung im Auftragswege weiterhin erhalten bleibt.

Die deutsche Energiewirtschaft hat sich zur Lösung der Entsorgungsaufgaben in der Deutschen Gesellschaft für Wiederaufarbeitung von Kernbrennstoffen mbH (DWK) zusammengeschlossen.

Die von ihr vorzunehmende Planung, Organisation und Bereitstellung von Finanzmitteln für das Entsorgungszentrum hat ein fortgeschrittenes Stadium erreicht:

- die DWK wurde mit einem Gesellschaftskapital von zunächst 100 Mio DM gegründet. Sie hat die Kernbrennstoff-Wiederaufarbeitungs-Gesellschaft (KEWA) übernommen und Anteile an der Gesellschaft zur Wiederaufarbeitung von Kernbrennstoffen (GWK) erworben;
- umfangreiche Planungsaufträge zur ingenieurtechnischen Vorbereitung des Entsorgungszentrums wurden vergeben. Ihre Ergebnisse waren u.a. Grundlage des Genehmigungsantrages und des Sicherheitsberichts;
- Planungen zum Zwischenlager sind durchgeführt;
- Verträge mit der französischen Compagnie Générale des Matières Nucléaires (COGEMA) zur teilweisen Sicherstellung der Entsorgung der Kernkraftwerke der Bundesrepublik sind weitgehend fertigverhandelt.

Dies sind wesentliche Schritte der Energiewirtschaft zur Vorbereitung der Entsorgung ihrer Kernkraftwerke.

- c) Entsprechend dem Entsorgungskonzept und im Hinblick auf die Bundesverantwortung für die Endlagerung hat es der Bund übernommen, einen geeigneten Standort für das Entsorgungskonzept zu finden und zu erwerben. Nach der Vorauswahl einiger geeignet erscheinender Standortkandidaten in Niedersachsen schlug schließlich die niedersächsische Landesregierung im Februar dieses Jahres vor, einen Standort im Landkreis Lüchow-Dannenberg auf dem Salzstock Gorleben zur Grundlage der weiteren Planungen für das Entsorgungszentrum zu machen. Die Bundesregierung stimmte nach einer ausführlichen Vorprüfung im Sommer dieses Jahres der Vorauswahl von Gorleben zu. Es steht ausser Frage, daß dieser Standort grundsätzlich für die Errichtung des Entsorgungszentrums geeignet ist. Seine endgültige Eignung ist allerdings noch im Laufe des Genehmi-

gungsverfahrens vor Erteilung einer 1. TEG, d.h. etwa in den nächsten 2 - 3 Jahren nachzuweisen, insbesondere durch eine ausführliche geologische Erkundung des unterliegenden Salzstocks.

Gestatten Sie mir in diesem Zusammenhang eine kurze Bemerkung: Ich bin zuversichtlich, daß das Land Niedersachsen das Genehmigungsverfahren, wie von MP Dr. Albrecht mehrfach erklärt, so zügig und intensiv wie möglich vorantreiben wird. Bezüglich der immer wieder diskutierten Probebohrungen ist zu sagen, daß die PTB sehr kurzfristig einen Antrag für eine 1. Bohrung stellen wird.

d) Zum Genehmigungsverfahren selbst:

Am 31. März 1977 hat die Deutsche Gesellschaft für Wiederaufarbeitung von Kernbrennstoffen mbH (DWK) beim Niedersächsischen Sozialminister als zuständiger Genehmigungsbehörde den Antrag auf Genehmigung der Errichtung und des Betriebs des Entsorgungszentrums für den Standort Gorleben gestellt. Der Antrag der DWK erstreckt sich auf die von der Energiewirtschaft zu errichtenden und zu betreibenden Teilprojekte des Entsorgungszentrums, nämlich Brennelementlagerung, Wiederaufarbeitung, Abfallbehandlung und Abfallzwischenlagerung, Uranverarbeitung, Plutonium-Brennelementherstellung, Abfallbehandlung und übergeordnete Infrastruktur.

Eine erste Teilerrichtungsgenehmigung wurde für den Standort, die Errichtung des Brennelement-Lagerbeckengebäudes und verschiedener Hilfs- und Versorgungsanlagen beantragt.

Die DWK hat zusammen mit dem Antrag einen Sicherheitsbericht vorgelegt. Er beschreibt die auf der Grundlage des Entsorgungskonzepts der Bundesregierung geplanten Teilprojekte des Entsorgungszentrums einschließlich der Abfallendlagerung und insbesondere die zu ihrer sicheren Errichtung und ihrem sicheren Betrieb vorgesehenen Einrichtungen und Maßnahmen. Die PTB hat am 28. Juli 1977 das Planfeststellungsverfahren für das Endlager der radioaktiven Abfälle durch einen entsprechenden Antrag beim zuständigen Niedersächsischen Sozialminister eingeleitet.

e) Zur technischen und sicherheitstechnischen Realisierbarkeit des EZ, die Gegenstand des Genehmigungsverfahrens ist, liegt inzwischen eine erste wesentliche Zwischenentscheidung vor.

Die vom BMI beauftragten Gremien, die Reaktor-Sicherheitskommission (RSK) und die Strahlenschutzkommission (SSK) haben am 20.10.1977, nach mehrmonatiger Beratung des Sicherheitsberichts für das Entsorgungszentrum, weiterer Unterlagen und nach Anhörung zahlreicher hinzugezogener Sachverständiger einstimmig befunden, "daß das Entsorgungszentrum grundsätzlich sicherheitstechnisch realisierbar ist."

Die in der Beurteilung der RSK und SSK enthaltenen Bedingungen und Empfehlungen für die sicherheitstechnische Auslegung der geplanten Anlagen sind nicht grundsätzlicher Natur und stellen das Konzept hinsichtlich der Realisierbarkeit nicht in Frage. Ihnen kann, wie RSK und SSK selbst hervorheben, projektbegleitend entsprochen werden.

Die bisher vorliegenden technologischen Erfahrungen und Aktivitäten auf dem Gebiet der Forschung und Entwicklung bestätigen, daß die noch zur großtechnischen Anwendung fortzuentwickelnden Anlagen und Verfahren rechtzeitig zur Verfügung stehen.

Damit sind durch Vorauswahl eines geeignet scheinenden Standortes, Einleitung des Genehmigungsverfahrens und positivem RSK/SSK-Urteil, die in den Entsorgungsgrundsätzen aufgestellten Forderungen erfüllt. Diese aus der Sicht der Bundesregierung erfreuliche Entwicklung findet ihren Niederschlag in den jüngsten Beschlüssen der großen politischen Parteien zur Energiepolitik und insbesondere zur Kernenergie-Nutzung.

4. Die von der Bundesregierung und den Ländern getragenen Grundsätze sollen auch in Zukunft angewendet werden, um die in Verfolgung des Verursacherprinzips der Kernenergiewirtschaft auferlegte und von ihr auch anerkannte Verantwortung für die Entsorgungsvorsorge durchzusetzen und die Gefahr einer Entsorgungslücke in jedem Einzelfall zuverlässig zu vermeiden. Zu diesem Zwecke muß u.a. für jedes Kernkraftwerk die Entsorgungsvorsorge fortschreibend jeweils für 6 Jahre im voraus nachgewiesen werden.

Da sich der Stand der Verwirklichung des Entsorgungszentrums fortentwickelt, werden die Entsorgungsgrundsätze hinsichtlich der konkreten Voraussetzungen in angemessenen zeitlichen Abständen fortgeschrieben. Die Bundesregierung prüft, ob und in welcher Form die Entsorgungsgrundsätze im Atomgesetz selbst näher geregelt werden sollen.

Im Rahmen der Entsorgungsvorsorge hält es die Bundesregierung für zulässig, eine Zwischenlagerung der abgebrannten Brennelemente in einem zentralen Zwischenlager bzw. eine Entsorgung im Ausland in dem Zeitraum vorzusehen, in den Entsorgungsanlagen in der Bundesrepublik Deutschland noch nicht oder nicht ausreichend zur Verfügung stehen, d.h. etwa bis 1990. Dazu sind folgende Maßnahmen vorgesehen:

(1) Errichtung eines Zwischenlagers für bestrahlte Brennelemente mit einer Kapazität von 1500 t Brennstoff

Vorbehaltlich der Ergebnisse der noch durchzuführenden gesetzlichen Genehmigungsverfahren nach dem Atom- und Bauordnungsrecht (zuständig: Physikalisch-Technische Bundesanstalt nach dem Atomgesetz, Landesbehörden nach dem Bauordnungsrecht) ist hierfür ein Standort in Nordrhein-Westfalen vorgesehen.

(2) Zeitlich spätere Abstützung auf das Eingangslager des Entsorgungszentrums mit einer Kapazität von 3000 t Brennstoff.

(3) Schaffung von Kapazitäten in Kompaktlagern der Kernkraftwerke als Reserve zur Überwindung vorübergehender Schwierigkeiten. In einem Kompaktlager kann der abgebrannte Brennstoff aus bis zu 8 Betriebsjahren des betreffenden Kernkraftwerks gelagert werden.

(4) Ergänzende Entsorgung im Ausland

Für eine Entsorgungsvorsorge im Ausland steht derzeit praktisch nur die Anlage der Compagnie Générale Matières Nucléaires (COGEMA) bei La Hague, Frankreich, zur Verfügung. COGEMA ist aufgrund der in ihren Anlagen bei La Hague gewonnenen Erfahrungen in der Lage, diese Anlagen nach dem Baukastenprinzip auf gesteigerten Durchsatz auszulegen. Außerdem wird die COGEMA bis 1981 die Kapazität der Eingangslagerbecken ihrer Anlagen auf 3000 t erweitern.

Die deutsche Elektrizitätswirtschaft steht vor dem Abschluß von Entsorgungsverträgen für 1977 bis 1979 für insgesamt ungefähr 600 t Brennstoff. Für die Entsorgung der bei Berücksichtigung der unter (1) bis (3) genannten Maßnahmen verbleibenden Mengen des insgesamt in den Jahren 1980 bis 1990 anfallenden Brennstoffs hat die DWK einen Vertrag mit der COGEMA ausgehandelt; der hierzu notwendige Notenwechsel auf Regierungsebene ist in Vorbereitung.

In den Vertragsentwürfen ist vorgesehen, daß die verfestigten radioaktiven Abfälle erst zu einem Zeitpunkt zurückgenommen werden müssen, zu dem Anlagen zur Aufnahme solcher Abfälle in der Bundesrepublik verfügbar sind.

Weitere realistische Entsorgungsangebote aus dem Ausland sind zur Zeit nicht abzusehen.

Dies trifft insbesondere auf die im Rahmen der amerikanischen Nuklearpolitik angekündigte Zwischenlagerung von bestrahlten Brennelementen in den USA zu.

Möglicherweise werden die USA ausländischen Kernkraftwerksbetreibern anbieten, die für den eigenen amerikanischen Bedarf zu errichtenden großen Zwischenlager in eng begrenztem Ausmaß mitzubenutzen, wenn es den Zielen der Nichtverbreitung von Kernwaffen dient. Damit und aufgrund der Mengenbegrenzung kann realistischerweise nicht erwartet werden, daß die USA in ihr Angebot auch die westeuropäischen Industrieländer und Japan miteinbeziehen.

5. Was bleibt darüber hinaus zu tun, um die Realisierung des Entsorgungszentrums sicherzustellen - und dies insbesondere an die Adresse der heute hier vertretenen F + E-Stellen.

RSK und SSK sind bei ihrer Prüfung des Sicherheitsberichtes Entsorgungszentrum zu dem Ergebnis gekommen, daß offene Fragen, die die Realisierung des Entsorgungszentrums grundsätzlich zweifelhaft erscheinen lassen könnten, nicht vorliegen, und daß deshalb alle zu empfehlenden Forschungs- und Entwicklungsarbeiten beim Bau des Entsorgungszentrums projektbegleitend rechtzeitig durchgeführt werden können. Eine zusammenfassende Darstellung der Vorschläge für Forschungs- und Entwicklungsarbeiten zu sicherheitstechnischen Fragen werden die Kommissionen im Dezember 1977 vorlegen und dabei gleichzeitig begründen, daß sie projektbegleitend gelöst werden können.

Ich glaube, allen Beteiligten, die das RSK/SSK-Papier über die Zusammenfassung hinaus schon analysieren konnten, ist klar, welcher enorme Aufwand hier erforderlich werden wird, um Verzögerungen beim Projekt Entsorgungszentrum zu vermeiden.

Ich sehe den Erfolg nur dann sichergestellt, wenn das bei uns insgesamt vorhandene Potential bei Großforschungseinrichtungen, Bundesanstalten und Industrie in optimaler Weise verknüpft wird und zielorientiert den Anforderungen des Entsorgungszentrums zuarbeitet. Ich sehe z.Zt. bei allen Beteiligten den klaren Willen, zu den erforderlichen Zusammenarbeitsvereinbarungen zu kommen. Ich hoffe, daß dies bald zu entsprechenden, auch aus der Sicht des Bundes befriedigenden Vereinbarungen führt. Die Bundesregierung wird bei der Unterstützung und Beurteilung dieser Vorhaben gemäß dem ihr vom Deutschen Bundestag im letzten Jahr erteilten Auftrag verfahren - ich zitiere auszugsweise:

"1. für folgende Maßnahmen die Prioritäten beizubehalten:

- a) baubegleitende Forschung und Entwicklung für die Wiederaufbereitung abgebrannter Brennelemente;
- b) Forschung und Entwicklung für die Endlagerung radioaktiver Abfälle, insbesondere für die Lagerung hochaktiver Abfälle und ihre eventuelle Nutzung;

2. dafür Sorge zu tragen,

daß in die Forschung zur Entsorgungssicherung und in die Entsorgungssicherung selbst alle radioaktiv verschmutzten Teile einer Kernkraftanlage einbezogen werden."

Dazu gehört auch die Förderung arbeitsteiliger internationaler Zusammenarbeit, vor allem bei den Arbeitsgebieten Abfallbehandlung und Endlagerung.

Meine Damen und Herren, ich bin sicher, daß die weiteren Vorträge des heutigen Tages sehr viel präziser auf die vor uns liegenden Aufgaben und die mit ihnen verbundenen Schwierigkeiten eingehen. Ich hoffe, daß dennoch zum Schluß bei uns allen die positive Grundstimmung erhalten bleibt, daß diese Aufgaben in der gebotenen Zeit gelöst werden können.

Stand und künftige Aufgaben des Projektes Wiederaufarbeitung und Abfallbehandlung

Projektleitung PWA, vorgetragen von R. Kroebel

1. Einleitung

Im Jahre 1973 wurde gemeinsam mit allen interessierten Institutionen - KEWA/GWK als damaligem Industriepartner, BMFT und GfK als staatlichen Stellen - ein vorläufiges F+E-Programm für das Jahr 1974 mit Blick auf die Erfordernisse für eine große Wiederaufarbeitungsanlage (WAA) formuliert. Zur Durchführung wurde am 1.1.74 das Projekt Wiederaufarbeitung und Abfallbehandlung (PWA) ins Leben gerufen. Im Jahre 1974 wurde eine Fließbildstudie erstellt. Darin wurde alles uns zugängliche Wissen - einschließlich das der einschlägigen Ingenieurfirmen - zusammengetragen. Diese Studie bildete die Grundlage sämtlicher Zielvorgaben der F+E-Vorhaben. Diese wurden in drei Prioritätsklassen geordnet:

Klasse 1 für genehmigungstechnisch wichtige Verfahren, insbesondere der Sicherheit,

Klasse 2 für wünschenswerte, insbesondere betriebliche Verbesserungen an sich vorhandener Technologie, um Verfügbarkeit und Betriebssicherheit zu erhöhen und

Klasse 3 für Untersuchungen längerfristigen Charakters, z.B. für spätere Anlagen, andere Brennstoffzyklen usw.

Diese Einteilung besteht bis heute. Im Zuge des Planungsfortschritts wurden nur wenige Einzelvorhaben anders zugeordnet. Nach Abschluß der Vorplanung durch die Industrie sowie der vorläufigen Prüfung durch die staatlichen Genehmigungsinstitutionen sind allerdings Änderungen zu erwarten. Diese sind z.Z.

Zusammenwirken der verschiedenen Institutionen für große Wiederaufarbeitungsanlagen in Europa und USA

Funktion \ Land	D	F	GB	USA
	Betreiber	* KEWA (GWK)	CEA	BNFL
Ingenieurfirma	UHDE LURGI NUKEM	SGN	BNFL	Bechtel
F + E	GfK (GWK) GSF	CEA	BNFL UKAEA	ERDA
Zusammenarbeit	geregelt in URG-Vertrag und Unterverträgen			bilateral

* Auftraggeber: PWK
Projektträgergesellschaft für die Wiederaufarbeitung von Kernbrennstoffen

Abb.1

in der Beratung zur Verabschiedung durch die RSK und uns noch nicht bekannt.

Wir dürfen heute feststellen, daß unsere im Jahre 1975 anläßlich unseres ersten Statusberichtes angenommene Entwicklung des PWA eingetreten ist. Ein planmäßiger Aufbau des Projektes ist erfolgt und der Projektumfang wurde konsolidiert.

2. Änderungen im Berichtszeitraum 1975 - 1977

Zuhörer unseres 1. Statusberichtes vor 2 Jahren haben vielleicht noch das Bild (Abb. 1) vor Augen, in dem der Vergleich der Aufgabenteilung in Europa und USA angestellt wurde. Hier haben sich sowohl in Deutschland als auch in Frankreich bedeutsame Änderungen vollzogen (Abb. 2). Die KEWA ist, GWK wird voll von der aus der damaligen Projektträgergesellschaft hervorgegangenen Deutschen Gesellschaft für Wiederaufarbeitung von Kernbrennstoffen (DWK) übernommen, so daß es jetzt nur noch einen sowohl finanztechnisch als auch abwicklungs- und genehmigungsmäßig voll verantwortlichen Industriepartner geben wird.

Im F+E-Bereich gibt es neben dem GfK-Anteil aus PWA und PNS nunmehr die seinerzeit geforderte "Entwicklungsgemeinschaft Tieflagerung" zwischen GfK und GSF (EGT). Die Gemeinschaft soll die dringend nötige Verstärkung der Endlagerkomponente, die durch die Physikalisch Technische Bundesanstalt (PTB) im künftigen Entsorgungszentrum im staatlichen Bereich verbleibt, F+E-mäßig abdecken. Hierzu gibt das Projekt diesen Teil seiner bisherigen Arbeiten ab. Die notwendige und vorhandene freundschaftliche Zusammenarbeit unseres Projektes mit dem Endlagerbereich soll der folgende Vortrag von Dr. Perzl noch beleuchten.

Künftig wird sich die DWK an einigen großanlagen-bezogenen Entwicklungen selbst stärker beteiligen müssen. Insbesondere

Land	D	F	GB	USA
Funktion				
Betreiber	*DWK (GWK)	COGEMA	BNFL	Allied-Gulf General - Electric
Ingenieurfirma	UHDE LURGI NUKEM	COGEMA	BNFL	Bechtel
F + E	GfK GSF DWK/GfK	CEA	BNFL UKAEA	ERDA
Zusammenarbeit	bilateral	bilateral		bilateral

* Auftraggeber: DWK
Deutsche Gesellschaft für Wiederaufarbeitung von Kernbrennstoffen



Zusammenwirken der verschiedenen Institutionen für große Wiederaufbereitungsanlagen in Europa und USA

Abb. 2

gilt dies für die Großkomponentenerprobung im Rahmen der von GfK/PWA erstellten Technikumshalle für Komponentenerprobung (TEKO), in der die DWK eigene Versuchsstände errichten und betreiben wird.

Soweit es sich um sicherheitsrelevante Forschung und Entwicklung handelt, bleibt GfK direkt tätig.

Weiterhin fällt in Abb. 2 auf, daß das CEA die Produktion unter dem Namen COGEMA ausgegliedert hat und nur seine F+E-Gruppen behielt. Durch diese Angleichung der Aufteilung in Deutschland und Frankreich sollte eine nunmehr eher bilaterale Zusammenarbeit möglich sein, dort wo bisher allein der URG-Vertrag alle Beziehungen zwischen D, F und GB regelte. Der URG-Kenntnisaustauschvertrag besteht zwar weiterhin zwischen KEWA, COGEMA und BNFL, ist aber in der Folge der neuen amerikanischen Nichtverbreitungspolitik praktisch suspendiert. Die Folgen dieser Suspendierung werden später noch behandelt.

3. Was wurde bisher von unseren Projektarbeiten erledigt, was liegt noch vor uns?

3.1 Teilbereich Headend

Bei der Auslegung der deutschen WAA werden erstmals Sicherheitsstandards für die Abgabe gasförmiger Spaltprodukte und Aerosole zu erfüllen sein, die bisher in keiner WAA gefordert waren. Hieraus ergab sich für das Teilprojekt Headend ein umfangreiches F+E-Programm zur Auflöserabgasreinigung (J^{129} , Kr^{85} , T, NO_x , Aerosole) und zur Jodaustreibung aus der Auflöserlösung.

- In heißen Versuchen beim Betrieb von SAP^{x1} (Marcoule) und WAK^{x2} konnte gezeigt werden, daß der angestrebte

x1 Station des Ateliers Pilote

x2 Wiederaufarbeitungsanlage Karlsruhe

Wert \leq 1% des Restjodgehaltes in der Auflöserlösung bei geeigneter Prozeßführung deutlich unterschritten werden kann.

- Umfangreiche Untersuchungen zur Rückhaltung von flüssigen und festen Aerosolen wurden durchgeführt. Gemessene Abscheidegrade an Schwebstofffiltern der Klasse S mit radioaktiven Aerosolen in der SAP und WAK lagen zwischen 99% und 99,3%.

Unser Ziel ist es, diese Abscheidegrade zu verbessern und die Handhabung der verschiedenen Filtersysteme zu vereinfachen.

- Die Jodabscheidung und Kr-Abtrennung mit ihren Vorreinigungsschritten wird vom PNS betreut. Erinnert sei hier an die guten Ergebnisse des LAF-Jodfilters im aktiven WAK-Abgas.
- Für die gesamte Auflöserabgasstrecke sind geeignete Verfahrensschritte vorhanden. Das optimale Zusammenspiel der einzelnen Komponenten ist jedoch noch zu erproben. Hieraus können sich Änderungen bei der Feinausarbeitung des Abgasfließschemas der Großanlage ergeben, die aber mit unseren Testanlagen zuverlässig simuliert werden können.
- Die Bereitstellung der erforderlichen Analysengeräte zur kontinuierlichen Prozeßüberwachung und -regelung für das Auflöserabgas ist wichtig. Für eine Reihe von Geräten läßt sich aus den mit ihnen gemachten Erfahrungen ihre Verwendbarkeit für die WAA voraussagen.
- Das Verhalten der Spaltgase beim Scheren und Auflösen von Brennelementen untersuchen wir gemeinsam mit dem CEA.

Erste Ergebnisse deuten an, daß beim Schneidvorgang nur geringfügige Mengen von Spaltgasen entweichen. Die Hauptmenge wird beim Auflösen freigesetzt. Genauere Meßergebnisse erwarten wir in naher Zukunft.

- Eine weitere gemeinsame Untersuchung mit dem CEA hat gezeigt, daß die Verwendung von Paraformaldehyd zur Zerstörung der Salpetersäure bei der Spaltproduktkonzentrierung im industriellen Maßstab machbar ist. Dieser Verfahrensschritt hilft, das Tritium in zukünftigen WAA's zusammenzuhalten.

3.2 Teilbereich Extraktion

Der im Jahre 1974 in der bereits erwähnten Fließbildstudie zusammengefaßte Wissensstand wurde in der Zwischenzeit durch experimentelle Untersuchungen in der MILLI mit hochabgebrannten Brennstoffen vervollständigt. Es konnte gezeigt werden, wie die für die Endprodukte Uran und Plutonium geforderten Dekontaminationsfaktoren auch für das Neptunium erreicht werden können. Noch ist offen, wie das Neptunium gezielt in nur einen Abfallstrom - bevorzugt in den HAW - gelenkt werden kann.

Die Aufarbeitung von Plutonium-Recycle-Brennstoff wurde untersucht und ein Fließschema für den höheren Plutoniumgehalt erarbeitet. Die Verminderung der Pu-Verluste im Auflöserrückstand ist das Ziel gemeinsamer Anstrengungen des BE-Herstellers und des PWA.

Für die Tritiumrückhaltung im ersten Extraktionszyklus wurden in einer Studie Vor- und Nachteile von Mischabsetzern und Pulskolonnen als Tritiumscrubber untersucht. Der Vergleich fiel zugunsten der Pulskolonne aus. Experimentell

konnte in statischen Verteilungsversuchen gezeigt werden, daß unter dem Einfluß einer γ -Strahlenbelastung von bis zu 10^8 rad nur weniger als 3 % irreversibel in der organischen Phase verbleibt (ca. 1000-facher Durchlauf des Extraktionsmittels).

Vor dem Einsatz von Hafnium als Werkstoff mit hoher Neutronenabsorption müssen dessen Eigenschaften wie Festigkeit, Korrosionsbeständigkeit, Verarbeitbarkeit usw. nach den Normen des TÜV nachgewiesen werden. Nachdem inzwischen Hafnium für diese Untersuchungen beschafft werden konnte, sind die Arbeiten bei der Metallgesellschaft angelaufen. Die Beschaffung aus den USA als einzigem Lieferanten größerer Mengen scheiterte bisher an den neuen Bestimmungen zur Nichtverbreitung der WA-Technologie. Dieser Zustand kann wohl erst politisch verändert werden.

Unter Ausbau der Versuchseinrichtungen und Weiterentwicklung der Meßverfahren wurden die Kenntnisse des Stoffübergangs und der Fluiddynamik in gepulsten Siebboden-Kolonnen erweitert. Auf der Basis dieser Grundlagenuntersuchungen werden an Modellkolonnen im Durchmesserbereich zwischen 100 mm und 300 mm Probleme des Scale-up zur optimalen Auslegung von Pulskolonnen einer WAA bearbeitet.

Die Planung eines Plutonium-Teststandes (PUTE) wurde abgeschlossen. Mit dem Aufbau wurde begonnen. Von 1979 an werden dort Versuche zur Minimierung der Pu-Verluste im 2. und 3. Zyklus der WAA durchgeführt. In diesem Teststand sollen auch die elektrolytische Rückextraktion von Plutonium mit einer Pulskolonne (ELKE) getestet und ihre verfahrenstechnischen Vorzüge gegenüber den herkömmlichen chemischen Verfahren nachgewiesen werden. Eine elektrolytische Pulskolonne aus Titan wurde gebaut, nachdem in Glaskolonnen das Prinzip erfolgreich mit Uran getestet wurde.

Zur heißen Betriebserprobung steht ein elektrolytischer Mischabsetzer (2B-EMMA) aus Titan bereit. Nach Durchlaufen der Uran- und Plutoniumtestphasen wird er 1978 in den WAK-Betrieb übernommen.

Die elektrolytischen Zellen zur Reoxidation des Pu (ROXI) wurden mit der Entwicklung eines Flachtyps erhöhter Ausbeute weiter verbessert. Erprobungen sind nach Einbau 1978 in der WAK, im Plutoniumteststand und im Uranextraktionszyklus der TEKO vorgesehen.

3.3 Abfallbehandlung

Die seit einigen Jahren auch betrieblich angewandten Verfahren der Bituminierung schwach- und mittelaktiver wässriger Abfälle aus KKW und WAA können als F+E-Thema mit der aktiven Inbetriebnahme der Eurobitumanlage in Mol zunächst abgeschlossen werden. Die inaktiven halbtechnischen Erprobungen des Adduktverfahrens zur Kerosinreinigung, zur Denitrierung saurer MAW-Abfallösungen, zur Dekontamination kerntechnischer Anlagen und zur Verfestigung von KKW-Austauscherharzen in organischen Kunststoffen sind abgeschlossen. Das letzte Verfahren wurde bereits durch eine Industriefirma auch aktiv demonstriert, die übrigen werden für eine solche Erprobung im Rahmen unserer eigenen Möglichkeiten vorbereitet.

Die inaktiven Vorarbeiten zur Verglasung hochaktiver WA-Abfälle im keramischen Schmelzofen werden technisch ähnlich wie in Hanford (USA) von Battelle Pacific North-West auch bei uns zur aktiven Vorprojekt reife geführt, die Ende nächsten Jahres erreicht sein soll. Nach einer vergleichenden Begutachtung aller deutschen Verglasungsverfahren durch Industrievertreter im Juni in Bonn wurde empfohlen, daß mit Vorrang das PAMELA-Verfahren der Fa. Gelsenberg

gefördert werden sollte, weil es einen zeitlichen Vorsprung vor unserer Entwicklung habe. Wir sollen jedoch eine Borosilikatblockglasvariante weiterentwickeln, die mit unseren Versuchseinrichtungen lediglich unter Verzicht auf die Sprühkalzination simulierbar ist.

Einen weiteren Schwerpunkt bilden die Arbeiten zum wässrigen MAW. Hier werden zementgebundene Matrices für auslaugbeständige Endprodukte entwickelt, wofür es vor allem Vorbilder in Oak Ridge, USA, gibt. Ein von uns vorgeschlagenes Verfahren zur Fällung der aktiven Bestandteile des MAW und Einbindung der gefällten Nuklide in Glas soll in den nächsten Jahren halbtechnisch inaktiv und aktiv erprobt werden.

Für die großen Mengen ausgelaugter BE-Hülsen werden sparsamere und auslaugsichere Konditionierungsalternativen untersucht.

Die Veraschung α -haltiger Festabfälle ist ein wichtiges Thema der nächsten 5 Jahre, ebenso die Konditionierung der veraschten Rückstände.

3.4 Prozeßkontrolle, Analytik

Im Bereich der Prozeßkontrolle wurden die Inline-Instrumente zur kontinuierlichen Uran- und Plutoniumkonzentrationsbestimmung soweit entwickelt, daß sie nunmehr unter realistischen, heißen Betriebsbedingungen getestet werden müssen. Hierzu steht uns z.Z. nur die WAK zur Verfügung. Leider konnten dort bisher nur ein von uns entwickelter α -Monitor und ein Hülsenmonitor eingebaut werden.

Die für die Sicherheit der Anlage notwendigen Monitore zur Überwachung von Spaltstoffakkumulationen und Neutronengift-

konzentrationen wurden konzipiert und gehen jetzt in die Erprobungsphase.

Um die Einsatzmöglichkeiten moderner Datenverarbeitungsanlagen in einer WAA zu demonstrieren, wurde in enger Zusammenarbeit mit der GWK ein DV-System für das analytische Betriebslabor erarbeitet, das im kommenden Jahr in der WAK installiert werden soll.

Die in der GfK verfügbaren Rechencodes zur Berechnung der kritikalitätssicheren Auslegung verfahrenstechnischer Apparate wurden den Bedingungen einer WAA angepaßt und hiermit insbesondere Kritikalitätsberechnungen zur homogenen Gd-Vergiftung im Auflöser und zur heterogenen Vergiftung mit Hf als Strukturmaterial durchgeführt.

Um die Interventions- und Schleustechniken zu verbessern, wurden zunächst die im In- und Ausland angewandten Methoden einer kritischen Bewertung unterzogen und dann darauf aufbauend eine Testeinrichtung konzipiert, an der vorhandene und neue Systeme erprobt werden sollen.

3.5 Endlagerung

Die GfK bearbeitet im Verbund mit der GSF die kerntechnischen Entwicklungen und Sicherheitsaspekte der Endlagerung. Als Ergebnisse dieser Arbeiten sind die Aufstellung der ASSE-Einlagerungsbedingungen für MAW und LAW sowie die Entwicklung und Beschaffung von Transportsystemen für den ober- und untertägigen Betrieb zu nennen.

Der Bau der Prototypkaverne für die abschirmfreie Beschickung mit MAW-Gebinden machte gute Fortschritte. Die Anlage kann voraussichtlich wie geplant im Jahre 1979 in Betrieb gehen.

4. Personalentwicklung

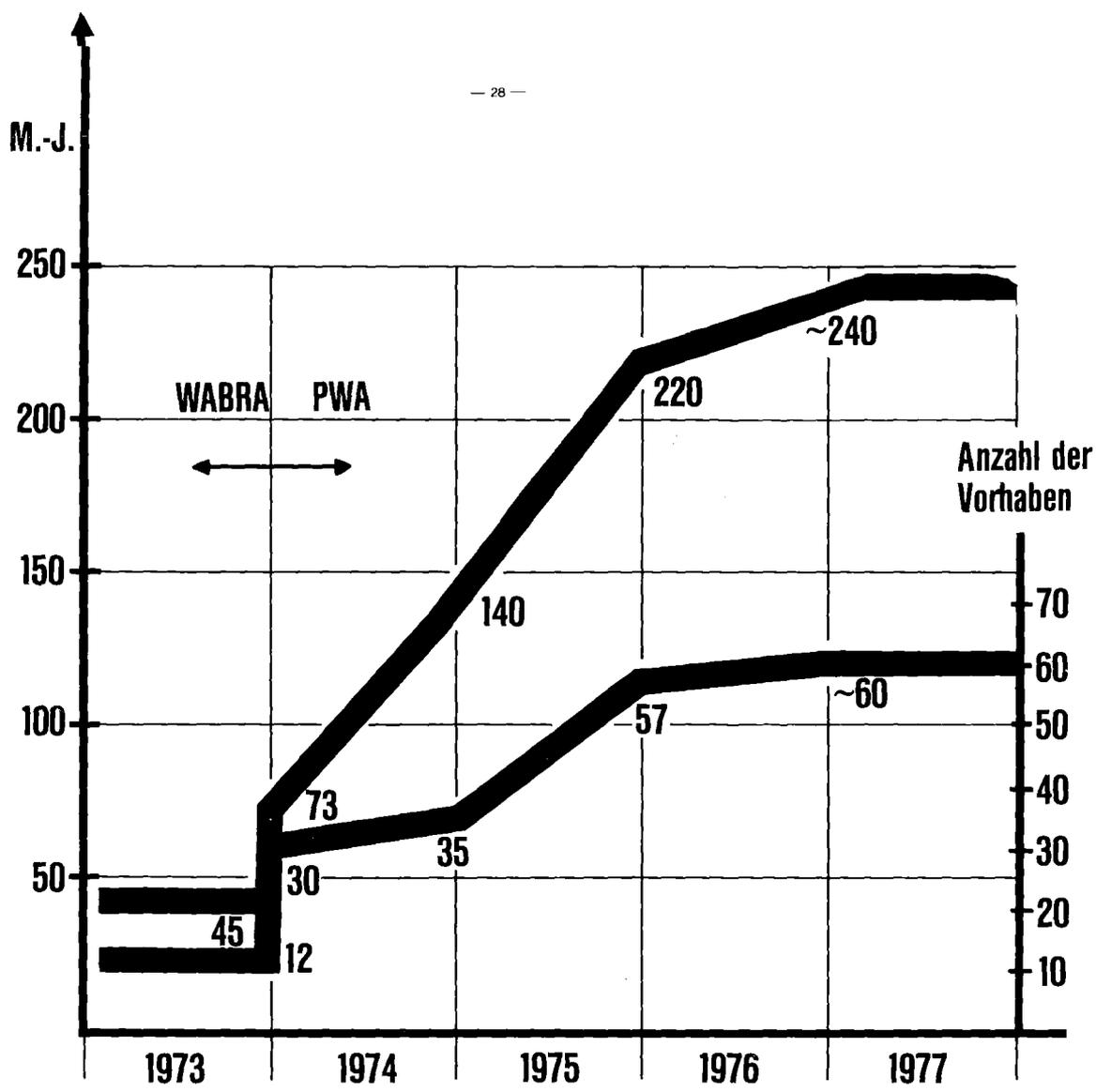
Die personelle Entwicklung des Projektes ist durch die obere Kurve in Abb. 3 - bezogen auf die linke Ordinate - dargestellt und zeigt seit Ende 1976 an, daß wir uns im Sättigungsbereich befinden. Die untere Kurve - bezogen auf die rechte Ordinate - gibt ein ähnliches Bild für die Anzahl der Einzelvorhaben. Heute arbeiten etwa 220 GfK-Angehörige, 25 delegierte Industriefirmen-Ingenieure von den Firmen NUKEM, KAH, UHDE/LURGI sowie 7 Mitarbeiter der GWK-E an den rd. 60 F+E-Vorhaben, die sich über 12 wissenschaftlich-technische Institutionen unserer Gesellschaft erstrecken.

	<u>1974</u>	<u>1975</u>	<u>1976</u>	<u>1977</u>
GfK-Angehörige	85	185	207	218
Delegierte Ingenieure	8	19	21	23
Mitarbeiter GWK/E	-	8	8	8
	<hr/>	<hr/>	<hr/>	<hr/>
	93	212	236	247

Tabelle 1: Durchschnittliche Anzahl der in den Jahren 1974-1977 für PWA tätigen Personen

Wie aus den dargebotenen Zahlen ersichtlich ist, liegt die wesentliche Aufbauphase des F+E-Projektes seit 1975/76 hinter uns. Wir können so konsolidiert in den kommenden Jahren mit einem Potential von ausgebildeten Leuten in den durch GfK erstellten Versuchsanlagen die meisten anstehenden Fragen beantworten.

Die Ausbildungsfunktion, die dem Kernforschungszentrum zukommt, findet u.a. darin Ausdruck, daß einmal mehrere GfK-Angehörige zu Industriefirmen wechselten, zum anderen bereits 20 delegierte Ingenieure nach z.T. mehrjähriger Tätigkeit im Kern-



Gesamtaufwand des PWA in Mio.-DM

9,0	19,2	33,1	44,7	52,4
-----	------	------	------	------



Entwicklung des PWA

Abb. 3

forschungszentrum zu ihren Stammfirmen zurückkehrten, um dort die hier erworbenen Kenntnisse und Erfahrungen bei der Planung der Anlagen des Entsorgungszentrums zu verwerten.

5. Größere Versuchsanlagen

Unser größtes Einzelbauvorhaben ist die Technikumshalle für Komponentenerprobung (TEKO), die im Auftrag des BMFT auf dem Gelände der GfK errichtet wird, um die seinerzeit von KEWA und PWA-PL formulierten Tests von Komponenten und Verfahren vornehmen zu können. Der Bau und die Infrastruktur der Halle mit ca. 46.000 m³ umbauten Raum für ca. 22,5 Mio DM werden spätestens bis Sommer 1978 zur Verfügung stehen. Da die Industrie ihre Tests - insbesondere des 1. Extraktionszyklus - im Maßstab 1:1 selbst finanzieren soll, hat sie nach dem Vorprojekt die Abwicklung nunmehr übernommen und den Planungsauftrag vergeben. Wir erwarten, daß diese sehr wichtigen Tests, die vor allem der Erhöhung von Betriebssicherheit und Verfügbarkeit dienen, aber auch die Erfüllbarkeit sicherheitstechnischer Auflagen der Behörden nachweisen müssen, ab 1980 durchgeführt werden können. Dieses Thema wird in einem folgenden Beitrag der KEWA noch eingehend dargestellt.

Eine neue Anlage zur Reinigung des Auflöserabgases an der WAK (AZUR) ist seit 3 Monaten ins Projektplanungsstadium eingetreten und soll bis 1981 für den aktiven Versuchsbetrieb bereitstehen. Dieser wird durch die GWK durchgeführt. Für das Zustandekommen der Anlage AZUR sind an wichtigen Punkten Ergebnisse der GfK-Arbeiten notwendig, die teils vorliegen, teils noch durch den Betrieb der inzwischen von GfK erbauten Testanlagen erbracht werden müssen. Diese Testanlagen sind aller-

dings vorrangig für die Simulation der Verhältnisse in der Großanlage gedacht, welche nicht vollständig mit AZUR erfaßt werden können. Der Vortrag zum Stand der Technik bei der Behandlung des Auflöserabgases wird hierzu die Einzelheiten abhandeln.

Für die Sicherheitsforschung bzw. Nachweise der Sicherheit werden zwei weitere Anlagen ertüchtigt, die bereits vorhanden waren, nämlich das alte Transplutoniumlabor (TPL) als bleibgeschirmte Heißzellenanlage und die MILTESSA genannte Pulskolonnenenerweiterung der MILLI unserer heißen Versuchswiederaufarbeitungsanlage, um die in Mischabsetzern nicht simulierbaren Störfälle im Extraktionsprozeß zu untersuchen.

Für Plutoniumfließschemauntersuchungen und die Sicherheitsaspekte im Pu-Zyklus sowie die Minimierung der Pu-Verluste wurde das schon erwähnte Projekt Plutoniumteststand (PUTE) in Angriff genommen. PUTE dient aber auch Arbeiten zur Brüteraufarbeitung und Verfahrensentwicklung des Plutoniumfließschemas.

6. Die internationale Zusammenarbeit

a) CEA

Durch die Zusammenarbeit mit dem CEA sollte F+E-Arbeit und damit Zeit und Geld gespart werden. Drei Jahre fruchtbarer Kooperation mit dem CEA für rd. 6 Mio DM deutscher Zahlungen liegen hinter uns.

Seinerzeit ermöglichte uns diese Zusammenarbeit den sofortigen Beginn prioritärer Arbeiten zur Sicherheit (Jodaustreibung, Tritiumrückhaltung, Extraktionsstörfälle, heiße Abgasuntersuchungen in Marcoule, Fließschemaentwicklungen zum Plutonium).

Der mögliche Wegfall dieser Zusammenarbeit infolge der neuen Nichtverbreitungspolitik für WA-Kenntnisse und hier besonders der Mitbenutzung vorhandener heißer Testanlagen in Frankreich, für die es hier keine Alternative gibt, führte dazu, ad hoc einige Testanlagen auszubauen. Es bleibt jedoch anzumerken, daß die Nutzung kompletter Testanlagen - wie der SAP-Anlage in Marcoule - höchstens durch Teilnahme an der Wiederinbetriebnahme der Eurochemic ersetzt werden könnte. Hierbei bleibt festzuhalten, daß diese vielleicht mögliche Alternative nicht die erwünschte Flexibilität hat, dafür allerdings die größere Betriebsnähe.

Die für viele Auslegungen und Betriebsprüfungen wichtige WAK könnte natürlich auch Entwicklungen prüfen, jedoch nur unter Verzicht auf Durchsatz, wegen der langwierigen und teuren Umbauarbeiten für solche Erprobungen.

Zusammenfassend läßt sich zu diesem Thema sagen, daß bei definitivem Abbruch der Zusammenarbeit mit Frankreich die Mehrbelastungen im Investitionssektor für alternative Testanlagen im Bereich von 3-5 Mio DM liegen, ohne Berücksichtigung der SAP. Der Wegfall des Personaleinsatzes, den wir dem CEA nur zu 50% bezahlen mußten, beträgt etwa 30-40 MJ/Jahr. Dies würde sich in der Verlängerung unserer Arbeiten niederschlagen. Hiermit sind nur Angaben zum staatlichen F+E-Sektor gemacht worden, im Industrie-E-Bereich ist der Ausfall in mehrstelligen Mio-Beträgen zu suchen, weil dort auch das großtechnische Betriebs-know-how kompensiert werden muß. Deshalb kommt den in der Technikumshalle TEKO von der Industrie geplanten Versuchen erhöhte Bedeutung zu.

b) BNFL

Mit BNFL liefen bisher keine konkreten Vorhaben gemeinsam. Diese waren für das laufende Jahr auf einigen Gebieten geplant und wurden durch die geänderte internationale Nuklearpolitik verhindert.

c) USA-ERDA

Seit Ende 1974 besteht zwischen der US-ERDA und dem BMFT ein F+E-Austauschabkommen auf dem Gebiet radioaktiver Abfälle. Die Zusammenarbeit lief inzwischen auf einigen Gebieten, wie im Endlagerbereich, bei α -haltigem Abfall und hochaktiver Verglasungstechnik an. Geplant ist die Ausdehnung auf mittelaktive, evtl. auch auf gasförmige Abfälle. Unsere gegenseitige Kenntnis der einschlägigen Arbeiten vermeidet die Aufnahme von Technologievorhaben mit geringen Erfolgsaussichten und befruchtet die wissenschaftlich-technische Diskussion über die besten Lösungswege. Die mehrfachen amerikanischen Organisationsänderungen der letzten Jahre verhinderten aber die Aufnahme gemeinsamer Vorhaben.

d) EUROCHEMIC

Mit Betrieb und F+E der EUROCHEMIC besteht ein lebhafter Gedankenaustausch und durch Delegation von GfK-Mitarbeitern die direkte Mitarbeit an den Programmen zur Bituminierung sowie demnächst zur Verbrennung α -haltiger Abfälle.

e) Europäische Gemeinschaften

Die GfK hat drei Kontrakte mit der Kommission der Europäischen Gemeinschaften (EG) abgeschlossen im Gesamtzuschußvolumen von $\sim 14,5$ Mio DM, die sich auf 4 Jahre verteilen. Sie betreffen die Bereiche Hochaktivlagerung in geologischen Formationen, α -Abfallbehandlung und Hülsenkonditionierung. Diese Programme werden z.T. auch auf alternativen Lösungswegen in anderen EG-Ländern bearbeitet. Wir hoffen, daß diese Programme auch nach 1979 fortgesetzt werden.

7. Nationale Zusammenarbeit im F+E-Bereich

Die nationale Zusammenarbeit erfolgt im Rahmen der Arbeitsgemeinschaft der Großforschungseinrichtungen (AGF) mit der GSF, dem HMI und der KFA. Daneben bestehen intensive Diskussionskontakte mit der NUKEM und der Gelsenberg AG.

Durch die direkte Förderung des BMFT von radiochemisch orientierten Hochschulinstituten, welche PWA-relevante Themen bearbeiten, erfahren wir eine willkommene Ergänzung im Grundlagenbereich. Diese Arbeiten werden von uns fachlich betreut, die Ergebnisse in unseren Instituten für Entwicklungen genutzt. Der Gesamtaufwand beträgt 12 MJ in 1977 mit steigender Tendenz für die Folgejahre.

8. Nationale Zusammenarbeit mit der Industrie

Ziel der meisten unserer Arbeiten - ausgenommen Schnellbrüterarbeiten und langfristige Programme, die z.Z. nur einen geringen Umfang haben - ist es, für den Bau des deutschen Entsorgungszentrums notwendige F+E-Arbeitsergebnisse bereitzustellen. Daher müssen alle aufwendigen Entsorgungsarbeiten auch in die Planung und den Bau bzw. die Sicherheitssysteme des geplanten Entsorgungszentrums einfließen. Soweit es sich um Alternativlösungen handelt, muß zu gegebener Zeit die wirkungsvollste Alternative gemeinsam mit der Industrie festgelegt werden.

Viele unserer Entwicklungen bedürfen praxisnaher Tests, d.h. entweder der betrieblichen Überprüfung in der WAK einschließlich AZUR, Verglasung usw. oder der Erprobung in der ADB. Sofern dies nicht möglich oder nicht nötig ist, können fallweise andere Testanlagen im In- und Ausland diese Rolle übernehmen (EUROCHEMIC, SAP Marcoule, BNFL, ERDA). Maßstabvergrößerungen

bis zum Originalmaßstab werden in der TEKO geprüft, die z.T. aus Industriemitteln unterhalten und betrieben werden soll. Einige Entwicklungen der GfK befinden sich bei der GWK, dem Betreiber der WAK, in der Erprobung, andere werden in den nächsten Jahren übernommen, betrieblich geprüft, evtl. in Zusammenarbeit ertüchtigt und dann für die Großanlage zur Verfügung gestellt.

Die kürzlich erfolgte Übernahme aller Industrieaktivitäten durch die DWK - auch die GWK - wird demnächst zu 100% auf DWK übergehen, macht nunmehr einen Vertrag zur Forschung und Entwicklung zwischen GfK und DWK möglich. Dieser wird derzeit verhandelt.

9. Ausblick auf die nächsten Arbeitsjahre des F+E-Projektes PWA

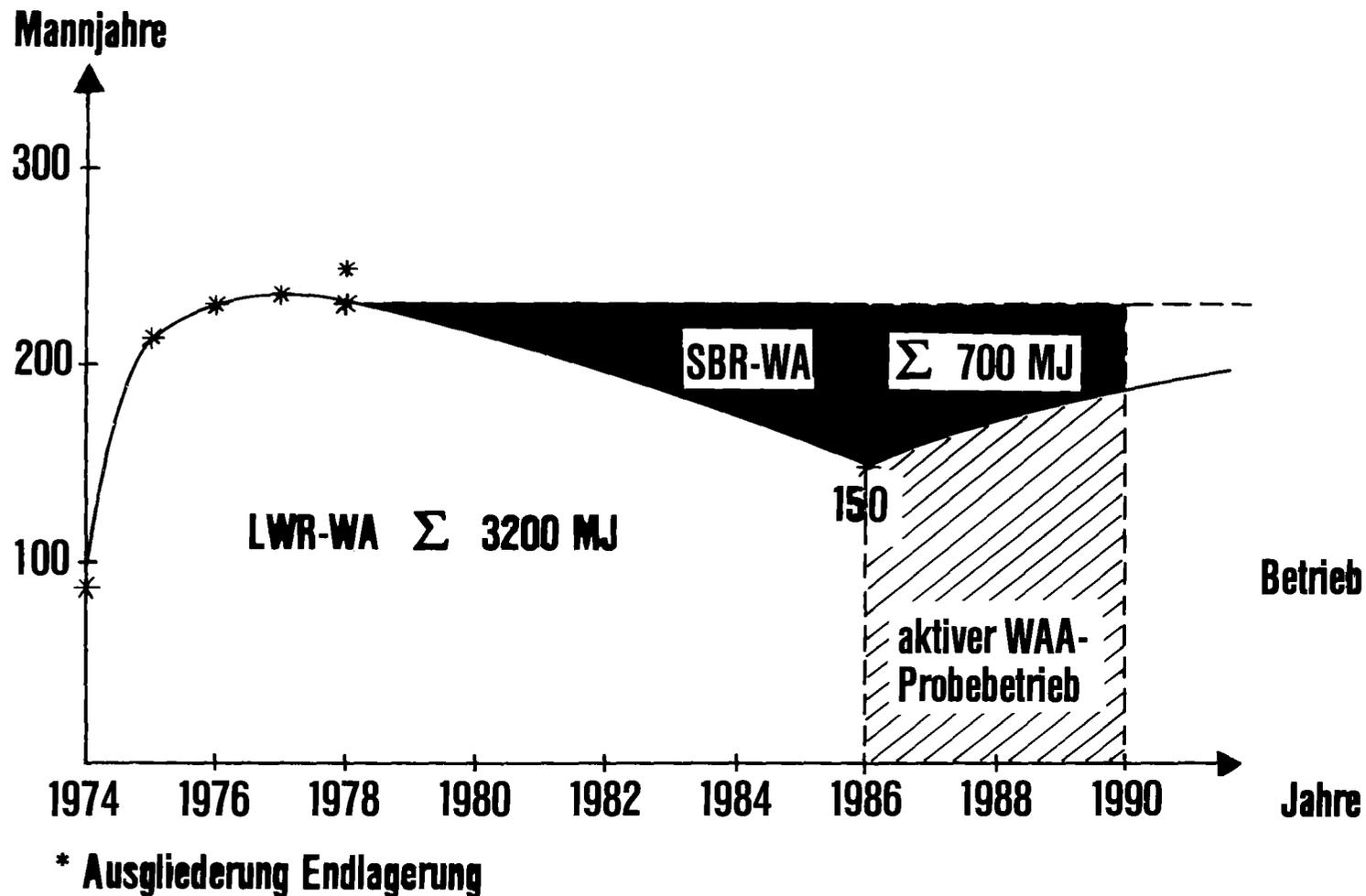
Im Projekt wurden bisher ca. 800 Mannjahre F+E erbracht, wobei unsere Schätzung von 1975 2000 Mannjahre bis zur Inbetriebnahme der Anlage vorsah. Nachdem sich die Auflagen der Behörden, die öffentliche Akzeptanzproblematik usw. erschwerend bemerkbar machen und der Planer bereits im Sicherheitsbericht Daten vorlegen muß, die eigentlich erst durch die Anlage selbst verifiziert werden sollten, müssen wir unsere Schätzung deutlich nach oben korrigieren. Selbst 3000 Mannjahre F+E erscheinen mittlerweile kaum ausreichend, hinzu kommt die durch Präsident Carter ausgelöste Absperrung des internationalen Kennnisaustausches, die uns zwingt, nunmehr auch bereits anderswo existierende Technologie selbst zu entwickeln. Ein weiterer Aufschlag von mindestens 1000 MJ erscheint in erster Näherung die Folge zu sein, d.h. die heutige F+E-Schätzung liegt bei 4000 MJ ohne die Endlagerung. Hiervon muß die Industrieseite einen eigenen Teil von ca. 1000 MJ für Technologievorhaben (TEKO) aufbringen.

GfK sieht es darüber hinaus als sehr wichtig an, Arbeiten zur Wiederaufarbeitung von Schnellbrüterbrennelementen (SBR-WA) schon jetzt zu beginnen und die Anstrengungen stetig zu steigern. Hierzu wird außerdem die Kooperation mit dem CEA angestrebt. Unter dieser Voraussetzung glauben wir derzeit, mit dem in der Abb. 4 rot ausgelegten Anteil von ca. 700 MJ für Schnellbrüterarbeiten bis 1990 auszukommen.

Der gelbe und gelb-schraffierte Teil von 3200 MJ, wovon 800 MJ - wie erwähnt - bereits geleistet wurden, ist für die LWR-Aufarbeitung vorgesehen, die allerdings bei im Grunde gleicher Technologie wesentliche Vorarbeiten für die SBR-WA liefert.

Mit Aufnahme des aktiven Probetriebes der Großanlage (1986) erwarten wir einen Wiederanstieg des LWR-Personaleinsatzes. Wie sich die SBR-Anstrengungen damit vertragen, ist derzeit unklar.

Ich schließe meine Ausführungen mit dem Dank der Projektleitung an alle Beteiligten der GfK für die in den letzten zwei Jahren geleistete Arbeit und bitte um Ihre weitere volle Unterstützung für die Arbeiten der kommenden Jahre.



PWA – F + E-Zuarbeit zur Wiederaufarbeitung (LWR + SBR)

Abb. 4

PWA - Vortrag 18. Nov. 1977

Stand des Projektes Entsorgungszentrum

1. Einleitung

Die Definition des Projektes Entsorgungszentrum resultiert grundsätzlich aus dem von der Bundesregierung 1974 postulierten sogenannten "Integrierten Entsorgungskonzept". Dieses beinhaltet im wesentlichen die Durchführung aller Schritte zur Schließung des Brennstoffkreislaufes sowie die Endlagerung der radioaktiven Abfälle an einem Standort.

Diese Entsorgungsschritte sind, - heute als Teilprojekte definiert -

1. Brennelementlagerung
2. Wiederaufarbeitung, Abfallbehandlung und
Zwischenlagerung
3. Uran-Verarbeitung
4. PU- BE-Herstellung
5. Abfallendbehandlung
6. Endlagerung
7. Übergeordnete Infrastruktur

Erst als die Elektrizitäts-Versorgungsunternehmen endgültig im Jahre 1976 als direkte Verursacher die Verantwortung für die Entsorgung übernahmen, sind diese Schritte im Sinne einer echten Integration zu einem "Zentrum" im einzelnen definiert und abgegrenzt worden.

Damit und durch die konsequent erfolgte Gründung der Trägergesellschaft DWK wurde die Basis geschaffen, die bis dahin weitgehend unabhängig voneinander laufenden F & E- sowie Vorplanungsarbeiten zu einzelnen Schritten der Entsorgung aufeinander abzustimmen und zu koordinieren.

Zwischenzeitlich sind alle wesentlichen am Projekt beteiligten Institutionen, Firmen und sonstige Gruppen sowohl auf der Auftragnehmer- als auch auf der Auftraggeberseite in einer Projektorganisation zusammengefaßt.

Ziel dabei ist es, angesichts dieses komplexen, in einem Zeitraum von fast 20 Jahren zu realisierenden Projekts

- das Wissen aller Beteiligten zusammenzufassen
- es auf die spezifischen Randbedingungen und wechselnden Prioritäten auszurichten
- und bei der schrittweisen Verwirklichung die notwendigen und letzten Erkenntnisse aus Forschung und Entwicklung einfließen zu lassen.

Die in dieser Richtung bisher gemachten Anstrengungen resultieren in 3 wichtigen Ereignissen:

1. Antrag auf Erteilung der Errichtungs- und Betriebsgenehmigung gem. § 7 Atomgesetz für das Entsorgungszentrum mit Ausnahme der Abfallendlagerung am 31.3.1977 durch die DWK für den am 22.2.1977 vorläufig benannten Standort Gorleben. Hierbei wurde der Sicherheitsbericht

für alle Teilprojekte, jedoch - in Anbetracht der unterschiedlichen Errichtungszeiträume - mit unterschiedlichem Detaillierungsgrad abgeliefert.

Für die erste Teilgenehmigung werden der Standort und die sicherheitstechnisch relevanten Bauwerke des 1. Teilprojektes Brennelementlagerung beantragt.

2. Einleitung des Planfeststellungsverfahrens gem. § 9 b Atg für die Abfallendlagerung, Teilprojekt 6, durch die PTB am 28.7.77.
3. Positives Urteil der Reaktorsicherheits- und der Strahlenschutzkommission über "die grundsätzliche sicherheitstechnische Machbarkeit des Entsorgungszentrums", das von den beiden Gremien termingerecht und einstimmig am 19.u.20.10.77 abgegeben wurde. Grundlage für dieses Urteil, das die letzte Bedingung der Weisung des Bundesinnenministeriums vom 25.4.77 zur Entsorgungsvorsorge für Kernkraftwerke erfüllt, waren der Sicherheitsbericht, Anhörungen des Antragstellers und zusätzliche Unterlagen.

Nach dieser kurzen Rückschau möchte ich nun auf den aktuellen Stand des Genehmigungsverfahrens und der Planung der Teilprojekte übergehen:

2. Genehmigungsverfahren

Die für das Entsorgungszentrum zuständige Genehmigungsbehörde,

der Niedersächsische Minister für Soziales, hat den TÜV Hannover mit der Erstellung eines Gutachtens zum Konzept des Entsorgungszentrums beauftragt. Infolge des Aufgabenumfanges hat der TÜV eine Arbeitsgemeinschaft, "ARGE Nukleares Entsorgungszentrum" genannt, gebildet. Diese besteht aus den verschiedenen für kerntechnische Anlagen tätigen Technischen Überwachungsvereinen der Bundesrepublik. Die ARGE hat sich gemäß der Gliederung des Sicherheitsberichtes nach Teilprojekten organisiert und im April 1977 ihre Gutachtertätigkeit aufgenommen.

Der Ablauf dieser ersten, sog. Konzeptbegutachtungsphase des Genehmigungsverfahrens nach § 7 ATG sieht z. Z. die sukzessive Erstellung von zusätzlichen Unterlagen bis zum Herbst 1978 vor und endet mit einer 1. Revision des Sicherheitsberichtes zum Ende des Jahres 1978.

Dabei werden die von der ersten Teilgenehmigung betroffenen Teilprojekte 1, BE-Lagerung und 7, Übergeordnete Infrastruktur, vorgezogen mit größerem Detaillierungsgrad behandelt.

Da infolge der z. Z. noch nicht möglichen Standortuntersuchungen Standortdaten nicht in ausreichendem Umfang zur Verfügung stehen, wird diese erste Begutachtungsphase weitgehend standortunabhängig erfolgen.

Die 2. Phase des Genehmigungsverfahrens ist durch die standortbezogene Begutachtung gekennzeichnet. Hierzu werden neben dem TÜV zahlreiche Gutachter und u. a. die für Bau-, Wasser- und Bergrecht zuständigen Behörden eingeschaltet. Als Weisungsbehörde,

die sich u. a. der Reaktorsicherheits- und der Strahlenschutzkommission bedient, fungiert der Bundesminister des Innern nach dem Atomgesetz wie im Genehmigungsverfahren für Kernkraftwerke.

Der Beginn der 2. Phase wird durch einen Grundsatzentscheid der Genehmigungsbehörde und durch Ergebnisse der Standortuntersuchungen bestimmt. Hier sind die im Rahmen des Planfeststellungsverfahrens durchzuführenden Tiefbohrungen zeitkritisch; denn erst nach Festlegung der Schachtansatzpunkte für das Endlager ist der endgültige Lage- und Bebauungsplan erstellbar und danach die für die 1. Teilgenehmigung erforderlichen letzten Daten u. a. für den Bauantrag zu ermitteln.

Aus heutiger Sicht kann unter Berücksichtigung eines weitgehend reibungslosen Ablaufes und der erforderlichen Standortdaten mit der ersten Teilgenehmigung in 1981 gerechnet werden.

Aus dem vorstehend Gesagten wird deutlich, daß die Anforderungen aus dem Genehmigungsverfahren im Hinblick auf die Erlangung der 1. Teilgenehmigung, die sich nur auf die Teilprojekte 1 und 7 bezieht, eine mindestens bis zu diesem Zeitpunkt begutachtungsfähige Festschreibung des Sicherheitsberichtes auch für die anderen Teilprojekte notwendig machen.

Andererseits besteht aus dem logischen Planungs- und Errichtungsablauf des Entsorgungszentrums und aus der Forderung, bei der Errichtung den letzten Kenntnisstand zu berücksichtigen, kein derartiger Zwang zur Festschreibung von Konzepten für die späteren Teilprojekte, insbesondere für die noch im Konzeptstadium befindliche Abfallendbehandlung.

Dieser Tatsache wird dadurch Rechnung getragen, daß die endgültige Konzeptfestschreibung erst zum Zeitpunkt des Antrags auf die 1. Teilgenehmigung des betreffenden Teilprojekts angestrebt wird.

3. Stand der Planung der Teilprojekte

Der Rahmenterminplan des Entsorgungszentrums (Abb. 1) ist naturgemäß wegen der Einflüsse aus dem Genehmigungsverfahren und der unterschiedlichen Planungstiefe der Teilprojekte mit entsprechenden Unsicherheiten behaftet.

Er stellt aus heutiger Sicht den letzten Erkenntnisstand dar und zeigt - auch unter Berücksichtigung des reduzierten Zubaus an Kernkraftwerkskapazität, der teilweisen Aufstockung der Lagerkapazität in Kernkraftwerken durch Kompaktlagergestelle, der Wiederaufarbeitung im Ausland bis 1984 und der Existenz eines BE-Zwischenlagers - die Notwendigkeit der zügigen Realisierung des Entsorgungszentrums.

Deutlich wird dies insbesondere an der etwa Mitte 1990 möglichen heißen Inbetriebnahme der zentralen und für die weiteren Teilprojekte terminführenden Wiederaufarbeitung.

Das im Jahre 1986 in Betrieb zu nehmende Eingangslager für 3000 t Uraninhalt muß bereits eine Pufferzeit von über 4 Jahren überbrücken, bis im Ablauf von weiteren 2 Jahren der Auslegungsdurchsatz der Wiederaufarbeitung mit 1400 t/a erreicht wird.

Uranverarbeitung (TP 3) und Plutonium- BE- Herstellung (TP 4) orientieren sich an der heißen Inbetriebnahme der Wiederaufarbeitung.

Die Inbetriebnahme der einzelnen Linien der Abfallendbehandlung wird vom zeitlichen Anfall der unterschiedlichen Abfälle aus der Brennelementlagerung und der Wiederaufarbeitung bestimmt.

Die Zwischenlagerung von flüssigen hochradioaktiven Abfällen ist - da bei Beginn der Wiederaufarbeitung von einer durchschnittlichen Abklingzeit nach Reaktorentladung von etwa 3 Jahren ausgegangen werden kann - auf weitere 3 Jahre angesetzt.

Wird diese 3jährige HAW-Zwischenlagerung unterstellt, ergibt sich für die Verglasung ein Inbetriebnahmetermin um 1993.

Die Errichtung des Endlagers wird im wesentlichen durch die Ergebnisse der Tiefbohrungen, den Planfeststellungsbeschluß und dann terminführend von der Abteufdauer von mindestens 2 Schächten bestimmt.

Ziel ist es, die Zwischenlagerung bereits im Zentrum angefallener und endbehandelter leicht- und mittelaktiver Abfälle (LAW und MAW fest) möglichst kurz zu halten und das dafür vorgesehene Grubengebäude (Lagerkammern) in einer ersten Ausbaustufe etwa 1992 in Betrieb zu nehmen.

Im Anschluß daran - in einem Zeitraum von etwa 3 Jahren - wird das Grubengebäude für die Lagerung der verglasten hochaktiven Abfälle errichtet. Damit ergibt sich aus der Sicht der Errichtung eine Mindestlagerzeit für HAW-Glasblöcke von etwa 3 Jahren.

Diese Angabe ist unabhängig von dem Ergebnis der z. Z. laufenden Untersuchungen über den Zusammenhang zwischen der zulässigen

maximalen Salztemperatur in einem Endlagerfeld, dessen Volumen und der Abklingzeit des im Entsorgungszentrum⁴ anfallenden hochaktiven Abfalls.

Die im Rahmenterminplan nur grob angedeuteten Planungsphasen in den Jahren 76 bis 79 sind für die Teilprojekte 1, 2 und 7 für die ersten Teilgenehmigungen und die Errichtung terminführend, für die restlichen Teilprojekte von den bereits erwähnten Anforderungen des Genehmigungsverfahrens bestimmt.

In diesem Zusammenhang wird die für die gesamte Projektabwicklung terminbestimmende Planung und Errichtung der Wiederaufarbeitungsanlage deutlich.

Wenn auch im Laufe der weiteren Planung dieses Teilprojektes 2 Anstrengungen zur Verkürzung der Bauzeit unternommen werden und über mehrere Teilgenehmigungen das Einfließen von letzten Entwicklungs- und Planungsergebnissen angestrebt wird, so kann nicht darüber hinweggegangen werden, daß in den nächsten 3 Jahren zahlreiche irreversible Entscheidungen mit zunehmendem Detaillierungsgrad fallen müssen. Auch hier sei nochmals auf die Anforderungen aus dem Genehmigungsverfahren hingewiesen, denen insoweit nachzukommen ist, als daß keine "wesentlichen Änderungen" im Sinne des Atomgesetzes im Genehmigungsablauf auftreten sollen.

4. Folgerungen für das PWA

In Anbetracht des Planungs- und Errichtungsablaufes der Wiederaufarbeitungsanlage und der Zwischenlagerung des

flüssigen HAW kommt einem wesentlichen Teil der Arbeiten des PWA eine prioritäre Bedeutung zu. Mit der Projektdefinition, dem Sicherheitsbericht, der weitgehend fertiggestellten, einheitlichen Konzeption für die Auslegung der sicherheitstechnisch relevanten Systeme und dem Rahmenplan sind die Randbedingungen vorhanden, nach denen auch alle auf das Entsorgungszentrum abzielenden Forschungs- und Entwicklungsaufgaben einschließlich der erforderlichen Versuchsanlagen ausgerichtet werden müssen.

Es gilt nun, für diese im engen Zusammenhang mit der Projektabwicklung des Entsorgungszentrums stehenden Aufgaben die Organisation und die erforderliche Zusammenarbeit so zu gestalten, daß ein sicherheitstechnisch den hohen Anforderungen genügendes, betrieblich funktionelles und wirtschaftlich vertretbares Zentrum termingerecht die Entsorgung der Kernkraftwerke übernehmen kann.

Dabei wird sicher nicht jede wissenschaftlich und technisch erfolgversprechende Entwicklungsrichtung bis zur Errichtung von Versuchseinheiten oder bis zum Einsatz im Entsorgungszentrum führen, auch wenn dieses manchem Beteiligten wünschenswert erscheint. Die vorhandenen Mittel und die Sach- und Terminzwänge aus der Abwicklung des Projektes Entsorgungszentrum werden hier den Maßstab setzen müssen.

Mit dieser Zielsetzung möchte ich die Beteiligten aufrufen, alle Kräfte gezielt zum Gelingen dieses wohl zur Zeit

schwierigsten Projektes einzusetzen und somit die gesamte Kerne-nergie im Rahmen ihrer Bedeutung für die Energieversorgung sicherzustellen.

Abschließend möchte ich mich bei den Veranstaltern des PWA-Statutsberichtes 1977 bedanken, daß Sie mir die Gelegenheit gaben, aus der Sicht des Großprojektes vorzutragen.

TEILPROJEKT	JAHR	76	77	78	79	80	81	82	83	84	85	86	87	88	89	90	91	92	93	94	95	96	
1 Brennelementlagerung		5. 3. 6. 9. 10. 6. 6.																					
2 Wiederaufarbeitung, Abfallbehandlung und Zwischenlagerung		5. 3. 6. 6. 6. 6. 6. 6.																					
HAW flüssig Lager		5. 3. 6. 6. 6. 6. 6. 6. 12.																					
3 Uranverarbeitung		5. 3. 3. 3. 3. 3. 3. 3. 6. 9.																					
4 Plutonium-Brennelementherstellg		5. 3. 12. 12. 6. 6. 6. 6. 6. 3.																					
<u>Abfallendbehandlung</u>																							
LAW/MAW fest/Corebaut. Ausbaust. 1		5. 3. 3. 3. 6. 6. 12. 6. 12.																					
LAW/MAW fest/Corebaut. Ausbaust. 2		5. 3. 3. 6. 6. 6. 6. 6. 12.																					
LAW flüssig Ausbaustufe 1		5. 3. 3. 6. 6. 6. 6. 3.																					
LAW flüssig Ausbaustufe 2		5. 3. 3. 3. 12. 6. 6. 6. 3.																					
MAW organisch		5. 3. 3. 12. 6. 6. 6. 12.																					
MAW wässrig		5. 3. 3. 3. 12. 6. 6. 6. 3.																					
HAW Verglasung		5. 3. 3. 9. 6. 6. 12. 6. 6.																					
HAW Glasblocklager		5. 3. 3. 6. 12. 6. 6. 6. 9.																					
LAW/MAW Festabfall-Zwischenlg.		5. 3. 3. 12. 6. 6. 6. 6.																					
<u>Abfallendlagerung</u>		9. 3. 10.																					
Oberirdische Anlagen																							
Tiefbohrungen																							
Schacht I + II																							
LAW/MAW Grubengebäude																							
HAW Grubengebäude																							
Tritium Lager																							
Krypton Lager																							
7 Übergeordnete Infrastruktur		11. 12. 9. 10.																					

Legende

□ = Planung
 ■ = Errichtung und Inbetriebn. kalt
 ▨ = Inbetriebn. heiß
 ◇ = migungsuntlg.f.d. zugehörige 1.TG
 ◆ = Erteilung der zugehörigen 1.TG
 10. = Ende d.10. Monats

Legende

SB = Unterlagenerstlg. f. Sicherheitsb.
 K = Konzept
 E = Entwurf
 A+V = Ausschreibung und Vergabe

Die F & E - Vorhaben aus der Sicht der
Anlagenplanung für das Entsorgungszentrum

Dr. P. Zühlke

In zahlreichen Verlautbarungen der für die Genehmigung des deutschen Entsorgungszentrums zuständigen Niedersächsischen Landesregierung ist sinngemäß zum Ausdruck gebracht worden, daß vor Erteilung der ersten Teilerrichtungsgenehmigung die von den kompetenten Behörden und Gutachtern vorzunehmende Konzeptbeurteilung zu einem positiven Ergebnis über die Realisierbarkeit und sicherheitstechnische Unbedenklichkeit kommen müsse. Angesichts der vergleichsweise langen Zeiten für die Realisierung des Entsorgungszentrums und der zeitlichen Abstufung in mehrere Teilprojekte könnte ein unbefangener Beobachter zu dem Schluß verleitet sein, daß auch die Konzeptbeurteilung entsprechend solcher zeitlichen Abfolge gestuft und zunächst für das erste Teilprojekt erforderlich sein könnte.

Wir wissen, daß das von der Genehmigungsbehörde nicht so gemeint ist, und ich möchte betonen, daß auch wir auf der Antragstellerseite voll hinter dem Grundsatz stehen, daß vor dem Beginn der Bau- und Errichtungsarbeiten die Machbarkeit des Gesamtkonzeptes mit allen seinen Einzelschritten aufgezeigt sein muß. Diese Auffassung hat sich dokumentiert in der mit Antragstellung erfolgten Übergabe eines alle Teilprojekte behandelnden Sicherheitsberichtes. Mit dieser umfassenden Dokumentation hat der Antragsteller seiner fundierten Überzeugung Ausdruck gegeben, daß für alle Teilschritte im geplanten Entsorgungszentrum, vom Empfang und der Zwischenlagerung bestrahlter Brennelemente bis zur Verarbeitung des wiedergewonnenen Urans und Plutoniums und der Endlagerung konditionierten Abfalls, ausreichend erprobte Verfahren und Komponenten zur Hand sind und Erfahrungen darüber in einem Maße vorliegen, die eine zuverlässige Übertragung auf die nach Größe und Sicherheit der Anlagen besonderen Bedingungen gewährleisten.

Die Kompetenz des Antragstellers und der hinter ihm stehenden Gesellschaften und Forschungseinrichtungen sowie seine berechtigten Erwartungen in eine zügige Behandlung des Antrages müssen auch bei einem Außenstehenden das als Schluß nahe legen, was für die mit der Materie Befassten fundiertes Wissen ist, nämlich, daß die Technologien der Wiederaufarbeitung, Abfallbehandlung und Brennstoffverarbeitung beherrscht werden. In diesem Sinne dürfen wir auch die jüngsten Aussagen von RSK und SSK in ihrer Stellungnahme zur "grundsätzlichen sicherheitstechnischen Realisierbarkeit des Entsorgungszentrums" werten, wo es zusammenfassend heißt, daß "alle vorgesehenen Verfahren bereits so weit erprobt sind, daß sie auf großtechnische Maßstäbe übertragen werden können und daß das Entsorgungszentrum grundsätzlich sicherheitstechnisch realisierbar ist."

Sind solche eindeutigen, positiven Darlegungen und Stellungnahmen vereinbar mit den von gleicher Seite propagierten oder betriebenen umfangreichen Forschungs- und Entwicklungsarbeiten? Schließen sich nicht die Erklärung über die Beherrschung der Technologie und die Forderung nach weiteren Forschungs- und Entwicklungsarbeiten gegenseitig aus? Wir wissen, daß diese Frage umgeht, und so praxisfremd sie in ihrer undifferenzierten, pauschalierenden Art auch ist, kann sie nicht einfach mit einem bloßen Nein beantwortet werden. Die Antwort darauf, warum beides nebeneinander zulässig und sinnvoll ist, charakterisiert das Verhältnis zwischen denen, die planen und denen, die Forschung und Entwicklung betreiben.

Das Verhältnis zwischen beiden Gruppen ist komplex; und wenn ich eine gewisse Polarität konstruiere, so deshalb, um zu verdeutlichen und in dem klaren Bewußtsein, daß eine solche Polarität nur als konstruktives Element unter einer gemeinsam getragenen Verantwortung und für ein gemeinsames Ziel verstanden werden darf.

Potentielle Konflikte ergeben sich aus dem wissenschaftlichen Auftrag und Drang der in Forschung und Entwicklung Tätigen, Neues zu suchen und zu finden einerseits und dem Zwang auf der anderen Seite, unter dem die Planer stehen, in meist engen Zeit- und Kostenrahmen technische Anlagen der Nutzung zuzuführen. Dieser Zwang führt zu der hinlänglich bekannten Tatsache, daß Verfahrens- und Anlagenkonzepte zu einem frühen Zeitpunkt festgeschrieben werden müssen und Neuentwicklungen für das in Frage stehende Projekt nicht mehr Berücksichtigung finden können. In unserem Falle des Entsorgungszentrums mußte dies besonders ausdrücklich geschehen. Die vor alle Teilerrichtungen gelegte Beurteilung des Gesamtkonzeptes zwang zu einer Verfahrens- und Apparateauswahl zu einem Zeitpunkt, der für die meisten Teilprojekte viel früher lag, als unter rein technischen Gesichtspunkten notwendig gewesen wäre. In ähnlicher Weise einschneidend war der für die Planung aufgestellte Grundsatz, stets die am weitesten und intensivsten erprobten und als am zuverlässigsten erkannten Komponenten einzusetzen, dafür aber auf potentielle Vorteile von Neuentwicklungen zu verzichten. Im Sinne der Fragestellung nach der Legitimität von Forschungs- und Entwicklungsarbeiten für eine angeblich beherrschte Technologie muß deshalb hier zunächst festgestellt werden, daß zur Realisierung des Entsorgungszentrums neue Verfahren nicht notwendigerweise entwickelt zu werden brauchen. Vordergründig könnte daraus eine Ignoranz der anwendenden Seite gegenüber einem großen Teil der Forschungs- und Entwicklungsarbeiten insbesondere des PWA abgeleitet werden. Daß es eine solche Ignoranz nicht geben darf und auch nicht gibt, davon wird gleich noch zu sprechen sein.

Zum gegenwärtigen Zeitpunkt steht der Antragsteller vor der Aufgabe, die von ihm gewählten Konzepte zu vertreten und im Zuge zunehmender Tiefe des Genehmigungsverfahrens die Aussagekraft und Belastbarkeit der Detailunterlagen zu belegen. Die erste Priorität erhalten daher vom Standpunkt der Planung diejenigen Versuchsarbeiten, die aus sicherheitstechnischer Sicht für die Akzeptanz der Konzepte, für die Anpassung der Komponenten und zur Absicherung der Auslegungsdaten erforderlich sind.

In dieser Einschätzung und Einstufung der Dringlichkeiten werden die Planer bestärkt durch die RSK und SSK, die in ihrer bereits zitierten Stellungnahme Empfehlungen aussprechen und Fragen aufwerfen, die - wie es wörtlich heißt - zum Teil einer weiteren Behandlung durch Forschungs- und Entwicklungsarbeiten bedürfen. Zur Zweckmäßigkeit und Legitimität solcher Arbeiten parallel zur Genehmigung und Planung seien ebenfalls die beiden Kommissionen zitiert, die hierzu ausführen, daß die grundsätzliche sicherheitstechnische Realisierbarkeit des Entsorgungszentrums dadurch nicht in Frage gestellt sei. Die noch ausstehenden Arbeiten könnten vielmehr entsprechend dem stufenweisen Vorgehen bei der Errichtung des Entsorgungszentrums projektbegleitend gelöst werden, wie dies auch in anderen Ländern geplant und in anderen im Aufbau begriffenen Industriezweigen üblich ist.

In dieser Aussage, die auch der Einstellung der Antragsteller entspricht, reflektieren sich drei grundsätzliche Tatsachen: Zum einen das Wissen um die bereits in Gang befindlichen, umfangreichen Forschungs- und Entwicklungsarbeiten und deren vielfältige Lösungsansätze, zum zweiten die Berechtigung zur Anwendung der industrieüblichen Grundsätze projektbegleitender Forschungs- und Entwicklungstätigkeit auch bei der Realisierung des Entsorgungszentrums und schließlich die langen zur Realisierung der einzelnen Teilprojekte angesetzten Zeiträume, die weit über das sonst in der Industrie übliche - ja ich möchte sogar sagen - Vertretbare hinausgehen. Zur Bewertung der vor uns liegenden Zeiträume und der mit ihnen gegebenen Möglichkeiten ergänzender Arbeiten in Labors und in Versuchs- und Pilotanlagen mag folgendes Zahlenbeispiel helfen. Zwischen dem Beginn der Betätigung mit der Kerntechnik in der Bundesrepublik im Jahre 1956 und dem ersten Vollastbetrieb des Kernkraftwerkes Biblis A lagen annähernd 19 Jahre. Von heute bis zum Zeitpunkt des Betriebes der häufig als besonders entwicklungsbedürftig angesehenen Verglasung hochaktiver Abfälle liegen 17 Jahre.

In etwa gleiche Zeiträume also, nur mit dem Unterschied, daß die Verglasung weit fortgeschritten ist im Vergleich zur kerntechnischen Stunde Null des Jahres 1956.

Aus der Sicht der Anlagenplanung für das Entsorgungszentrum ist - um das noch einmal deutlich hervorzuheben - den Aufgaben die höchste Priorität zu geben, die bei der Planung und bei der Begutachtung im Genehmigungsverfahren zur sicherheitstechnischen Realisierung erforderlich sind. War bisher von der Berechtigung die Rede, die die Anlagenplaner zur Inanspruchnahme solcher projektbegleitenden Forschungs- und Entwicklungsarbeiten haben, so muß auch ein Wort darüber gesagt werden, welche Bedeutung und welcher Umfang diesen Arbeiten zugemessen wird. Mit der bloßen Erwähnung von Dringlichkeiten ist das wohl nicht ausreichend getan. Sicherlich ist es nicht Aufgabe dieses Referats, Forschungs- und Entwicklungsaufgaben im einzelnen aufzuzählen, und nach Zielvorgabe, Bearbeitungszuständigkeit, Terminplan und Kosten detailliert zu beschreiben. Zur Erläuterung der großen Bedeutung, die den Forschungs- und Entwicklungsarbeiten von seiten der Anlagenplanung beigemessen wird, mag aber der Hinweis darauf dienen, daß KEWA im Rahmen ihrer fachtechnischen Kompetenz bei der Realisierung des Entsorgungszentrums neuerlich einen Katalog aller von ihr für erforderlich gehaltenen Forschungs- und Entwicklungsvorhaben erstellt hat, der etwa 50 Aufgaben mit zahlreichen Unterpunkten enthält. Rund zwei Drittel dieser Aufgaben gehören zu der Gruppe der erwähnten ersten Priorität. Um eine Vorstellung von Art und Umfang solcher Aufgaben zu vermitteln, seien beispielhaft einige von ihnen kurz zitiert.

1. Die Abbrandmessung mit Entwicklung einer Meßmethode zur Bestimmung des Restspaltstoffgehaltes im Hinblick auf die Kritikalitätsüberwachung im Auflöser, Testen eines prototypischen Gerätes in der WAK und Entwicklung des endgültigen Meßgerätes.

2. Die Behandlung von Feedklärschlamm mit Ermittlung von physikalischen und chemischen Charakterisierungsdaten im Hinblick auf Abtrennung, Transportierbarkeit, Zwischenlagerung und Konditionierung, Erprobung von Zentrifugen zur Ermittlung der Feststofftrenngrenze, der Feststoffaustragung, der Dekontaminierbarkeit und der Auswechselbarkeit.
3. Die Auflöserabgasreinigung mit den wesentlichen Einzelschritten Naß- und Trockenaerosolfilterung, Jodfilterung, katalytische NO_x -Entfernung, Entfernung von H_2O und CO_2 und Kryptonabtrennung.
4. Die Tritiumabtrennung im 1. Extraktionszyklus, für welche der bei dem ungünstigen Phasenverhältnis am besten geeignete Apparat im Anlagenmaßstab gefunden werden muß und deren Effektivität zu optimieren ist;

und als ein letztes Beispiel,

5. Die Untersuchungen zur sicheren Lagerung von konzentrierten Hochaktiv-Abfalllösungen mit Untersuchung der Denitrierung durch Radiolyse, Feststellung der Ausfällmechanismen und Bestimmung chemischer und physikalischer Beschaffenheit der Niederschläge sowie Untersuchung von Radiolysegasen und Nachweis ihrer Bildungsdaten.

Wie diese wenigen Beispiele zeigen, ist der Katalog der Aufgaben weder originell noch neu. Immerhin deckt er die Vorstellungen von RSK und SSK zu notwendigen, ergänzenden Forschungs- und Entwicklungsvorhaben ab; eine Feststellung, die indes den für die nächsten Wochen hierzu von beiden Kommissionen geplanten Beratungen nicht vorgreifen soll.

Weder neu noch originell ist der Katalog deshalb, weil er nach seinen Fragestellungen in der überwiegenden Zahl der Punkte seine Entsprechung im PWA-Programm findet. Das ist für beide Seiten nicht nur nicht abwertend, sondern im Gegenteil positiv als eine Bestätigung der bisherigen abgestimmten Zusammenarbeit zu werten. Ein Vergleich der zuvor gegebenen wenigen Beispiele mit den im Rahmen des PWA unternommenen Arbeiten zeigt, daß wichtige Teile der Zielvorgaben bereits angegangen worden sind. Entsprechendes gilt für Untersuchungen der GWK im Rahmen des WAK-Betriebes.

Mit der Erstellung des Kataloges werden im wesentlichen vier Ziele verfolgt, mit denen die Bereiche Forschung/Entwicklung und Planung in ihrer Arbeitsteilung und gegenseitigen Kommunikation bestärkt werden sollen.

1. Die Darlegung der von den Planern für erforderlich gehaltenen Arbeiten, wie zuvor bereits erwähnt.
2. Die Festlegung einer klaren, ablauflogischen Einbindung und Zusammenfassung aller Teilschritte im Sinne einer systematischen Fortführung der Bearbeitung in Labors, Technikum und Pilotanlagen bis hin zur Großkomponenten-Entwicklung.
3. Das Aufzeigen der Maßnahmen und Möglichkeiten, die auch im Falle eines Fehlens von internationaler Zusammenarbeit eine zügige Realisierung aller Teilprojekte gewährleisten, und
4. die Herstellung der notwendigen terminlichen Einbindung der Forschungs- und Entwicklungsarbeiten in die Projektabwicklung des Entsorgungszentrums.

Die zuerst genannte Aufstellung der von den Planern für erforderlich gehaltenen Programme hat mit einer vorurteilslosen und jede Überschätzung der eigenen Fähigkeiten vermeidenden Aufgeschlossenheit, aber auch mit jener gebotenen Nüchternheit zu geschehen, die sich verstiegenen Neuerungsbedürfnissen zu erwehren weiß. Geschehen Zielvorgabe und Verfolgung der Abwicklung von Aufgaben mit einer solchen Einstellung, so dürfte es nicht schwierig sein, das von der Sache her gebotene Primat der Planer für die Vorgaben zu akzeptieren. Man wird bei diesen Gedanken unwillkürlich an den so häufig gebrauchten Hinweis auf die Motivation erinnert. Sicher in vielen Fällen eine allzu billige Entschuldigung, hat sie in der Forderung nach Ernsthaftigkeit und Stetigkeit bei der gemeinsamen Aufstellung und Verfolgung von Forschungs- und Entwicklungsprogrammen ihre tiefe Berechtigung. Wenn ich das hier ausbreite, so in dem Wissen, daß die guten Ansätze aller am Entsorgungskonzept Beteiligten gewiß noch verbessert werden können. Wesentlich dafür ist, daß einmal gemeinsam festgestellte Ziele von beiden Seiten als verbindlich angesehen werden. Das setzt zunächst voraus, daß die vorgeschlagenen Arbeiten von der Sache und den gegebenen Möglichkeiten her machbar sein müssen, es bedeutet aber auch, daß alle verfügbaren Ressourcen vorbehaltlos zur Verfügung gestellt werden und zur Verfügung gestellt bleiben. Die erforderlichen Einrichtungen sind außerordentlich komplex und aufwendig, die Zahl der erfahrenen Fachkräfte begrenzt, und es gibt zur Erzielung der Forschungs- und Entwicklungsergebnisse keine nach jeweiligem Belieben wechselbare, alternative Angebote. Zweierlei sollte stets im Bewußtsein sein, nämlich daß den Forschungseinrichtungen eine zielgerichtete Aufgabe zugewiesen wurde und daß die anwendende Industrie sich nach Zeit und Geld keine Alternative schaffen kann, sondern auf die Erfüllung dieser Aufgabe durch eben diese Forschungseinrichtungen angewiesen ist. Von Zeit zu Zeit aufkommendes Unbehagen berechtigt oder erlaubt keinem, sich davonzustehlen.

Verbindlichkeit bedeutet auch den Anspruch, das nach gemeinsamer Zielsetzung erfolgreich Entwickelte angewendet zu sehen. Freilich ist die Beurteilung dessen, was als erfolgreich abgeschlossen zu gelten hat, keine einfache Angelegenheit und man wird wohl akzeptieren müssen, daß die letzte Entscheidung darüber bei denen liegen muß, die für Errichtung und Betrieb der Anlagen verantwortlich sind. Daß einer solchen Entscheidung eingehende Erörterungen mit denen vorausgehen müssen, die die Entwicklung betrieben haben, muß selbstverständlich sein.

Als erstes der mit dem Aufgabenkatalog verfolgten Ziele habe ich die Darlegung der von den Planern für erfolgreich gehaltenen Arbeiten genannt. Im Sinne der zu Beginn erwähnten konstruktiven Polarität zwischen denen in Forschung und Entwicklung und denen in der Planung bedeutet der Hinweis darauf, daß es sich um eine Darlegung der Erfordernisse aus der Sicht der Planer handelt, ein Eingeständnis der Einseitigkeit und eine Aufforderung zu kritischer Wertung und insbesondere zur Ergänzung.

Unter dem Zwang, Prioritäten setzen zu müssen, stehen in den KEWA-Vorschlägen die sicherheitstechnischen Untersuchungen zur Konzeptbeurteilung und Komponentenauslegung an erster Stelle. Die Aufgaben zur Planungsabsicherung im Sinne erhöhter Anlagenverfügbarkeit und Prozeßoptimierung und die Aufgaben zur Weiterentwicklung der Technologie von Wiederaufarbeitung und Abfallbehandlung haben nachgeordnete Priorität erhalten. Das sollte nicht als kurzsichtige Einseitigkeit gewertet werden, aber in einem Referat, das die Beurteilung der Forschungs- und Entwicklungsvorhaben aus der Sicht der Anlagenplanung behandelt, braucht auf die Bedeutung und Dringlichkeit von zukunftsgerichteter Forschung für die kritische Wertung und Stimulierung der projektbegleitenden Arbeiten nicht näher eingegangen zu werden. Die Tatsache, daß solche Aufgaben auch im Programm der fachtechnisch für die Planung verantwortlichen KEWA als erforderlich aufgeführt sind, zeigt an, daß sie eine kurzfristige Beschränkung auf Tagesprobleme vermieden sehen möchte.

Nicht erst seit Beginn des Genehmigungsverfahrens und nicht nur wegen der in Gang gekommenen Beurteilung der vorgelegten Konzepte besteht eine sehr starke Neigung, Forschungs- und Entwicklungsvorhaben danach zu unterscheiden, ob sie der Verbesserung von Anlagensicherheit und Umweltschutz oder der Verfahrensoptimierung und Weiterentwicklung dienen. Gewiß ist eine solche Klassifizierung für Gutachter und Behörden zweckmäßig, sie ist aber in hohem Maße unbefriedigend, wenn sie als Maßstab für die Bedeutung von Vorhaben und ihrer Förderungswürdigkeit herangezogen wird. Erhöhung der Anlagensicherheit und Verbesserung der Anlagenverfügbarkeit haben den gleichen Effekt, denn eine Anlage mit hoher Verfügbarkeit ist auch eine sichere Anlage.

Wie unzulässig es ist, die erwähnte Prioritäteneinstufung als Maßstab für den Stellenwert von Vorhaben heranzuziehen, mag am Beispiel der mit Erfolg im Institut für Heiße Chemie betriebenen Entwicklung von Verfahren und Apparaten zur direkten elektrolytischen Reduktion und Oxidation dargelegt werden. Natürlich kann im zweiten und dritten Plutoniumzyklus die Reduktion des Plutoniums durch Zugabe von U·IV und die anschließende Rückoxidation mit Stickstoffdioxid betrieben werden. Das ist erprobt entsprechend dem Grundsatz, nur die nach heutigem Stand zuverlässigsten Verfahren und Apparate einzusetzen, wurden diese Schritte auch gewählt. Aber es wäre natürlich wünschenswert, auf die Zugabe von Uran, das in den Plutoniumzyklen ansonsten ein unerwünschtes Fremdion ist, verzichten zu können, und es wäre eine Erleichterung, die zu vermehrten Anfall an rückzuführender Salpetersäure führende Stickstoffdioxidzugabe durch elektrolytische Oxidation zu ersetzen. In noch stärkerem Maße gelten diese Überlegungen für die Lösungsmittelwäsche mit Hydrazin in Verbindung mit elektrolytischer Oxidation des entstehenden Hydrazinnitrats. Wäre der Wegfall der Wäsche mit Natriumkarbonat nur eine Betriebsoptimierung oder ist die damit verbundene drastische Reduzierung der als mittelaktiver Abfall anfallenden Salzfracht nicht auch von erheblicher sicherheitstechnischer Relevanz?

Wenn ich das hier in einigem Detail ausgebreitet habe, so deshalb, um die zu Beginn gemachte Behauptung zu belegen, daß es die Ignoranz der Planer gegenüber Verbesserungen und Neuentwicklungen nicht gibt. In diesem Zusammenhang muß der Erwartung Ausdruck gegeben werden, daß die frühe Konzeptauswahl nicht auch eine endgültige Konzeptfestschreibung zu bedeuten hat, sondern daß angesichts der langen Zeiträume bis zur endgültigen Realisierung verschiedener Einrichtungen des Entsorgungszentrums auch die Genehmigungsbehörden zugehen, daß zunächst ausgewählte Verfahrensschritte durch Neuentwicklungen ersetzt werden dürfen.

Die als zweites Ziel genannte Festlegung einer klaren, ablauflogischen Einbindung und Zusammenfassung aller Einzelaktivitäten in Forschung und Entwicklung zielt auf eine noch höhere Effizienz in der Nutzung vorhandener oder zusätzlich zu schaffender Einrichtungen und auf eine wirkungsvolle Koordinierung aller einschlägigen Aktivitäten über die Institute der GfK und der Arbeiten des PWA hinaus. Dieses Bemühen erhält durch den dritten der angeführten Punkte zusätzliche Dringlichkeit, nämlich durch die Forderung, alles darauf einzurichten, daß auch ohne eine internationale Zusammenarbeit die termingerechte Realisierung des Entsorgungszentrums gewährleistet bleibt. Unser großes Interesse an einem umfassenden internationalen Erfahrungsaustausch und einer weitgehenden Arbeitsteilung bedarf keiner besonderen Erwähnung, nur dürfen Abhängigkeiten das Projektziel nicht gefährden.

Was in diesem Zusammenhang Ausnutzung aller Ressourcen und Koordinierung der Arbeiten bedeutet, kann deutlich werden an den beiden besonders dringlichen Vorhaben der Auflöserabgasreinigung und der Verfestigung hochaktiver Spaltproduktlösungen. Mit dem Aufbau und dem Betreiben von Einzelversuchsständen zur Abgasreinigung und Schadstoffrückhaltung in den Instituten des Kernforschungszentrums wurden die Voraussetzungen für die Auslegung der kompletten Teststrecke AZUR zur aktiven Erprobung bei der WAK geschaffen.

Die Versuchsergebnisse von AZUR sollen nicht nur die grundsätzlich nicht in Frage stehende Machbarkeit der Auflöser-Abgasreinigung demonstrieren, sondern sollen vor allem für die Detailauslegung der entsprechenden Anlagen des Entsorgungszentrums zur Verfügung stehen. Auf dieser Linie zurück ergibt sich der Anspruch der Planung an der Mitwirkung bei der Gestaltung des AZUR-Versuchsbetriebes und im Rahmen der Optimierung dieses Betriebes das Bedürfnis, ergänzende und begleitende Parameterstudien an den Testständen durchzuführen. Es gilt also festzustellen, daß es nicht nur eine sachliche Abfolge Labor, Teststand, Pilotanlage, Großanlage gibt, sondern auch eine Notwendigkeit für parallele Aktivitäten in den verschiedenen Stufen. Ähnliches könnte auch für die Extraktion mit den Einrichtungen Milli, WAK und Uranextraktionszyklus der TEKO aufgezeigt werden.

Die Hochaktiv-Verfestigung zeigt in ganz besonderem Maße das Bedürfnis nach umfassender Koordinierung der vielfältigen intensiven Arbeiten, weshalb in diesen Tagen die Bildung eines bundesweiten Projektes speziell für diese Aufgabe betrieben wird. Sie ist in besonderem Maße geeignet, auf die Zweckmäßigkeit und Legitimität paralleler Entwicklungsarbeiten hinzuweisen, die auch für andere wesentliche Aufgaben in Anspruch genommen werden darf. Das von Gelsenberg in der Kernforschungsanlage Jülich entwickelte PAMELA-Verfahren soll als Pilotanlage für die Verfestigung von Hochaktivabfall-Lösungen der Eurochemic in Mol betrieben werden und für die zur langfristigen Fortführung des Betriebes erforderliche Verfestigung der Spaltproduktlösungen bei der WAK bestehen gute Aussichten, das französische Verglasungsverfahren, bekannt unter dem Namen AVM, einzusetzen. Damit wird nicht nur die Möglichkeit eröffnet, bei diesem für das Entsorgungszentrum so wichtigen Anlagenteil unter verfahrenstechnischen Aspekten die beste Lösung zu wählen, sondern es eröffnen sich aufgrund der unterschiedlichen Art der Entprodukte Vitromet und Borosilikatglasblock zusätzliche Freiheitsgrade bei der Auslegung der Endlager.

Als viertes Ziel des Programmkataloges schließlich war die terminliche Einbindung aller Forschungs- und Entwicklungsarbeiten in die Projektabwicklung genannt worden. Über die Bedeutung dieses Ziels brauchen keine zusätzlichen Worte gemacht zu werden. Vorgabe und Einhaltung von Terminen bestimmen Sinn und Bedeutung aller Vorhaben. Dies erinnert mich aber daran, daß auch mir für dieses Referat ein Termin vor- und einzuhalten gegeben wurde.

Ich möchte daher abschließend nur noch die von mir zu Beginn angeführte Polarität zwischen Planung und Forschung und Entwicklung, wenn nicht aufzulösen, so doch zu relativieren versuchen. Über Forschung und Entwicklung aus der Sicht der Anlagenplanung zu sprechen, heißt auch darauf hinweisen zu müssen, welche Fülle von wertvollen Ergebnissen in den vielen Jahren der Zusammenarbeit, die bis in die frühen Tage der WAK zurückreicht, erarbeitet wurde, ohne die die bisherigen Erfolge und Fortschritte nicht hätten erzielt werden können. Das gilt nicht nur für die mit zahlreichen Berichten übergebenen Dokumente, sondern in gleichem Maße für die kaum meßbare Unterstützung in Diskussionen der Fachleute und der kollegialen Beratung in Einzelfragen. Mag Polarität als konstruktives Element zwischen den Bereichen gelten. Als Motiv für den persönlichen Umgang miteinander hat es sie letztlich in der Vergangenheit nicht gegeben, und ich bin sicher, daß es sie auch in Zukunft nicht geben wird.

Stand der Technik bei der Behandlung des Auflöserabgases einer Wiederaufarbeitungsanlage und Wege der Verfahrensoptimierung

F. Baumgärtner, R. v. Ammon, E. Henrich, E. Hutter, G. Koch, W. Weinländer

Eine kritische Nahtstelle zwischen Wiederaufarbeitungsanlage und Biosphäre bilden die Rückhalteeinrichtungen für die gasförmigen Schadstoffe. Der gesamte radioaktive Inhalt eines Reaktorburnelementes wird im Auflöser aus seiner Umhüllung freigesetzt. In der Abluft des Auflösers treten deshalb alle Radionuklide gleichzeitig auf, die in einer Wiederaufarbeitungsanlage überhaupt gasförmig auftreten können. Im Rückhaltesystem des Auflöserabgases sehen wir deshalb die am meisten belastete Nahtstelle zwischen Wiederaufarbeitungsanlage und Biosphäre.

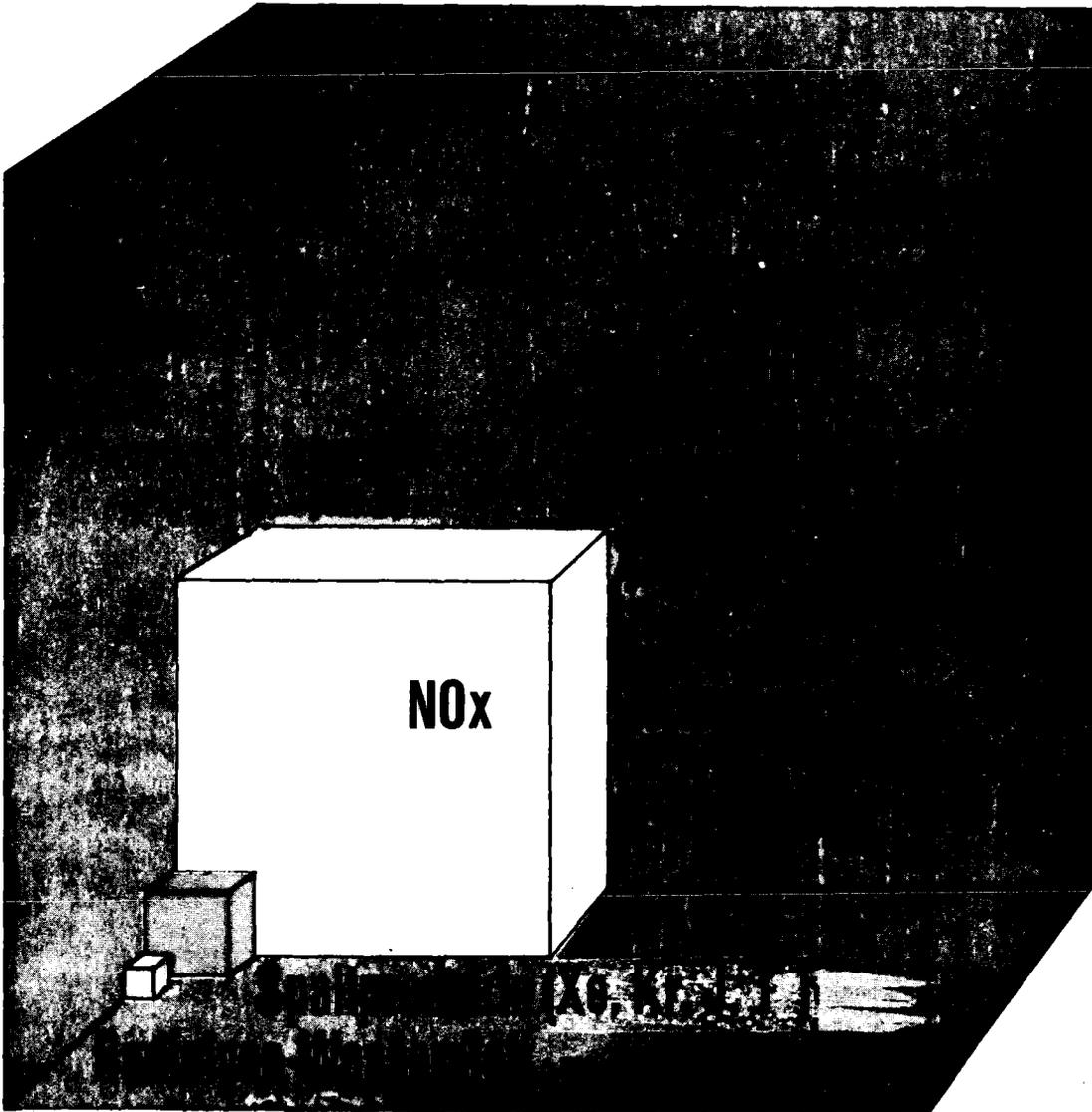
Was die Abgasrückhaltetechnik an dieser Stelle nach dem heutigen Stand der Technik zu leisten vermag und welche Entwicklungsarbeiten noch anstehen, das soll im folgenden erläutert werden.

Die Aufgaben, die an das Abgasreinigungssystem des Auflösers gestellt sind, lassen sich sehr einfach überschauen, wenn getrennt voneinander betrachtet werden

1. die Gasmengen und
2. die potentiellen Strahlungsdosen der einzelnen radioaktiven Komponenten.

1) Die Gasmengen

Die Abgasbestandteile sollen zuerst nach ihrer Herkunft unterteilt werden, Abb. 1. Der geringste Volumenanteil entfällt bei dieser Einteilung auf den Radiolysewasserstoff. Ihm folgen die



Volumenvergleich der Abluftkomponenten

IHCH

Abb. 1

gasförmigen Bestandteile des Kernbrennstoffs, die radioaktive und nicht radioaktive Komponenten enthalten. Den nächst größeren Volumenanteil liefern die Stickoxide. Den größten Volumenanteil nimmt nach dem derzeitigen Planungsstand das absichtlich zugespeiste inaktive Transportgas ein.

a) Die gasförmigen Komponenten des Kernbrennstoffs

bestehen in der Reihenfolge abnehmenden Volumens aus Xenon, Krypton, Tritium und ^{14}C -Kohlendioxid. Dazu kommt noch das Jod, das nicht von vornherein gasförmig ist, unter den Bedingungen des Auflösers aber verflüchtigt werden kann. Die einzelnen Mengen werden von der Vorgeschichte des Kernbrennstoffs bestimmt. Den Angaben in der Tabelle liegt ein Brennstoff mit einem Abbrand von 33000 MWd pro Tonne Uran und zwei Jahre Abklingzeit zugrunde.

Die Tabellenwerte sind berechnet nach dem ORNL-Isotope Generation and Depletion Code "ORIGEN¹⁾".

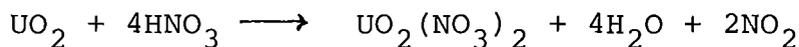
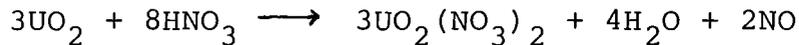
	g/t U	Ci/t U	$10^{-3} \text{ Nm}^3/\text{t U}$
Xenon	5480	$6,58 \cdot 10^{-15}$	~1000
Krypton	368	9920	~100
Jod	271	0,0375	~25
Tritium	0,066	640	~0,50

Für das ^{14}C -Kohlendioxid, das gelegentlich in bedrohlicher Menge angekündigt worden ist, wird hier der gemessene Radioaktivitätswert verwendet²⁾:

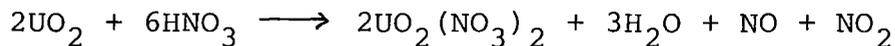
	Ci/t U	$10^{-3} \text{ Nm}^3/\text{t U}$
$^{14}\text{CO}_2$ (33000 MWd/t U)	0,033	~0,01

b) Die Stickoxide

Die Säure zum Auflösen des Brennstoffs ist Salpetersäure. Sie oxidiert das Urandioxid, wodurch Stickstoffmonoxid (NO) und Stickstoffdioxid (NO₂) entwickelt werden:



In welchem Verhältnis die Reaktionen ablaufen, wird von der Temperatur, der Säurekonzentration etc. bestimmt. Im folgenden gehen wir davon aus, daß Stickstoffmonoxid und Stickstoffdioxid zu gleichen Anteilen gebildet werden, wie es die folgende Bilanzgleichung beschreibt:



Die gebildeten Mengen von NO_x sind dann:

$$100 \text{ Nm}^3 \text{ pro } 1 \text{ t Uran}$$

c) Der Radiolysewasserstoff

Die "Beurteilung und Empfehlungen der Reaktorsicherheitskommission und Strahlenschutzkommission vom 20. Oktober 1977 über die grundsätzliche sicherheitstechnische Realisierbarkeit des Entsorgungszentrums" legt für die Berechnung der Wasserstoffbildung durch β und γ -Strahlung einen G(H₂)-Wert von 0,44 Moleküle H₂/100 eV zugrunde. Ein niedrigerer Wert wird nicht ausgeschlossen, wenn dafür ein experimenteller Nachweis gebracht werden kann. G(H₂) = 0,44 bezieht sich auf die γ -Radiolyse von reinem Wasser. Es gibt aber keine Bedingung unter der der Kernbrennstoff und die Spaltprodukte in reinem Wasser gelöst vorliegen könnten. Beim wäßrigen Wiederaufbereitungsverfahren treten nur nitrathaltige Lösungen auf. Hier soll deshalb zur Berechnung der Wasserstoffbildung ein für solche Lösungen gemittelter³⁻¹³⁾ G(H₂)-Wert von 0,1 Moleküle/100 eV

verwendet werden. Wenn die gesamte radioaktive Zerfallsleistung des verbrauchten Brennstoffs in der Lösung absorbiert würde, dann wäre die Wasserstoffbildungsrate auf Grund dieses $G(H_2)$ - Wertes:

$$5,9 \cdot 10^3 \frac{W}{tU} \cdot 6,24 \cdot 10^{18} \frac{eV}{sec \cdot W} \cdot 0,001 \frac{Molek. H_2}{eV} \cdot \frac{1}{6 \cdot 10^{23}} \frac{Mol}{Molek. H_2} \cdot$$

$$3600 \frac{sec}{h} \cdot 22,4 \frac{1}{Mol} \approx$$

$$\approx 5 \frac{Ltr H_2}{h \cdot t U} = 5 \cdot 10^{-3} \frac{Nm^3 H_2}{h \cdot t U}$$

d) Die Transportgasmenge

Durch die Gasfördereinrichtungen im Abgasreinigungssystem herrscht im Auflöser Unterdruck. Als Folge wird durch die Brennelement-Schere und über die davor liegenden Brennstäbe im Scherenmagazin Luft in den Auflöser gesaugt. Für die Großanlage wird derzeit mit einer Scherenspülgasmenge von durchschnittlich 2000 m³ pro 2 t-Charge gerechnet. Diese durch Konstruktionsmerkmale der Zerkleinerungs- und Auflöse-Einrichtungen festgelegte Fremdgasmenge ist in erster Linie für die Kühlung der Brennstäbe und für den Transport des Brennstoff-Staubes hin zum Auflöser gedacht. Er dient aber auch dem Transport des verflüchtigten Jods, des ¹⁴C-Kohlendioxids und der Spaltedelgase zu ihren Abscheidefiltern. Darüberhinaus erleichtert das Transportgas die regeltechnische Steuerung der vorgesehenen Betriebsbedingungen im gesamten Abgassystem.

2. Die potentiellen Strahlungs Dosen der radioaktiven Komponenten

Bei radioaktiven Stoffen ist nicht die Größe der Radioaktivität an sich die Maßzahl für die Strahlenbelastung von Personen, sondern die durch sie hervorgerufene Dosisbelastung der kritischen Körperorgane ist die biologisch bedeutsame Größe.

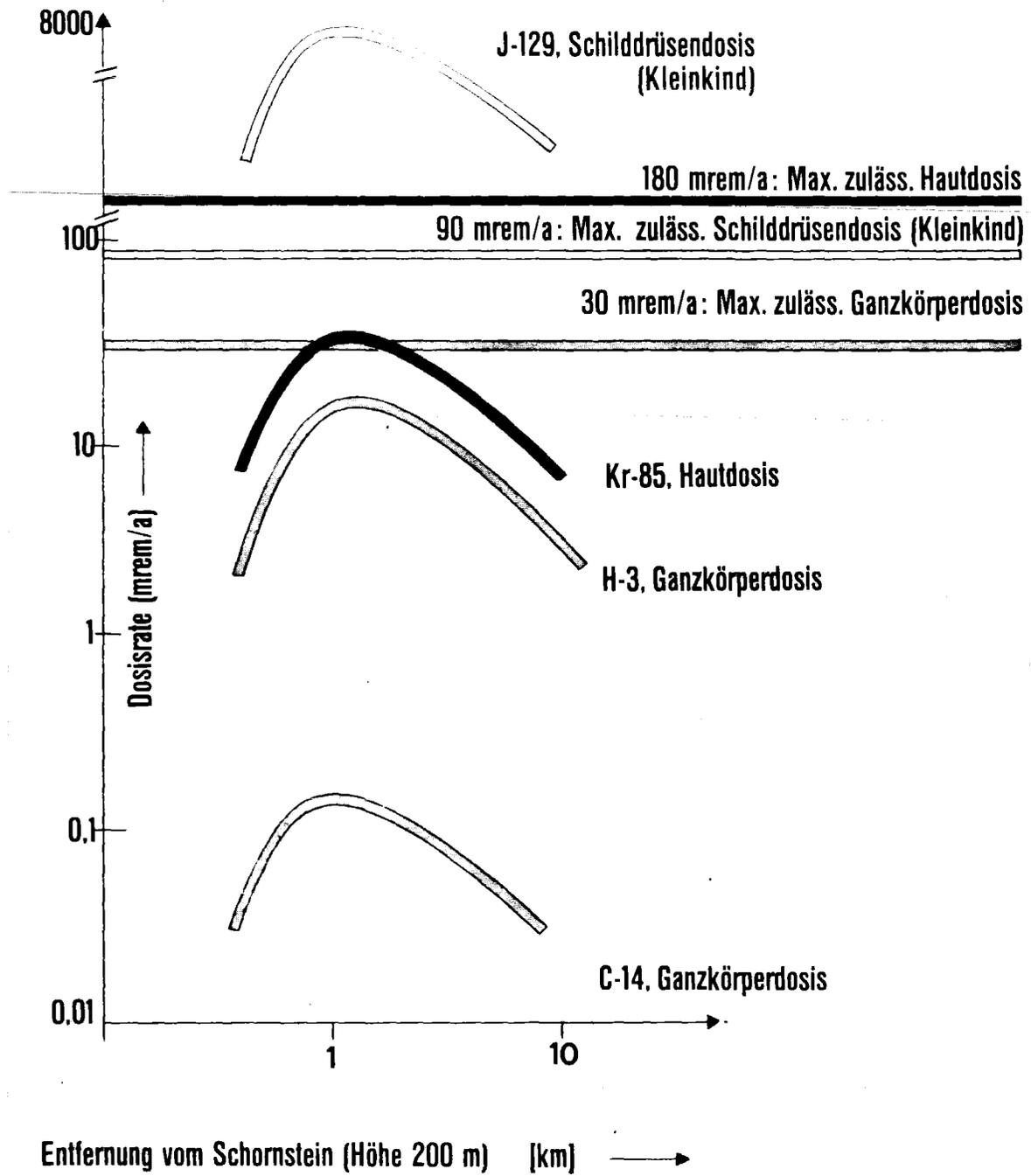
Die Dosisbelastung der kritischen Körperorgane berechnet sich als Produkt aus dem jeweiligen Emissionswert $[Ci/sec]$, dem Ausbreitungsfaktor $[sec/m^3]$ und dem Dosisfaktor für das entsprechende kritische Körperorgan $[mrem a/m^3 Ci]$, wobei die Isotopenverdünnung durch die natürlichen Luftbestandteile zu berücksichtigen ist.

Wenn Krypton-85, Jod-129, Tritium als Wasserdampf und ^{14}C -Kohlendioxid in ihrer Gesamtheit ein ganzes Jahr hindurch von einer 1400 jato Anlage ohne irgendeine Rückhaltung über einen 200 Meter Kamin an die Atmosphäre abgegeben würden, dann wäre durch die einzelnen Radionuklide mit einer Dosisbelastung in der Umgebung zu rechnen, die in Abb. 2 dargestellt ist. (Die Berechnungen werden im Anhang ausgeführt).

Die vom Gesetzgeber in der Strahlenschutzverordnung zugelassenen Maximalbelastungen der kritischen Körperorgane sind ebenfalls eingezeichnet. Wie aus der Abbildung ersichtlich ist, liegt die maximale Dosisbelastung in rund 1 km Entfernung vom 200 Meter Kamin. Wie das Diagramm außerdem zeigt, bleiben die maximalen Dosisbelastungen der kritischen Körperorgane durch Kr-85, HTO-gasförmig und ^{14}C -Kohlendioxid auch bei ungehinderter Emission noch in einem beträchtlichen Abstand von der Zulässigkeitsgrenze.

Die Dosisbelastung der kritischen Körperorgane würde beim Krypton etwa 1/5, bei tritiiertem Wasserdampf 1/4 bis 1/2 und bei $^{14}CO_2$ ca. 5/1000 der vom Gesetz her zulässigen Organbelastung ausmachen.

Jod liegt bei dieser Rechnung, wenn der vom Bundesministerium des Inneren vorgegebene Dosisfaktor zugrunde gelegt wird, um den Faktor 88 über dem für die Schilddrüse eines Kleinkindes zugelassenen Grenzwert. Für Jod ist also wegen der unzulässigen Überbelastung der Schilddrüse von Kleinkindern eine Rückhaltung mit einem Dekontaminationsfaktor von etwa 100 erforderlich.



IHCH

Lokale Strahlenexposition durch die Emissionen einer 1400 t/a-Wiederaufbereitungsanlage ohne Rückhaltung

Abb. 2

Die Rückhaltung von Krypton, tritiiertem Wasserdampf und Kohlendioxid ist dagegen nicht wegen einer unzulässig hohen Dosisbelastung im Einzelfall oder in der Summe über alle erforderlich! Sie ist aber trotzdem vorgesehen, um den allgemeinen Strahlenschutzgrundsatz StrlSchV § 28 zu erfüllen: Wer mit radioaktiven Stoffen umgeht ... ist verpflichtet, jede Strahlenexposition ... unter Beachtung des Standes von Wissenschaft und Technik ... auch unterhalb der festgesetzten Grenzwerte so gering wie möglich zu halten.

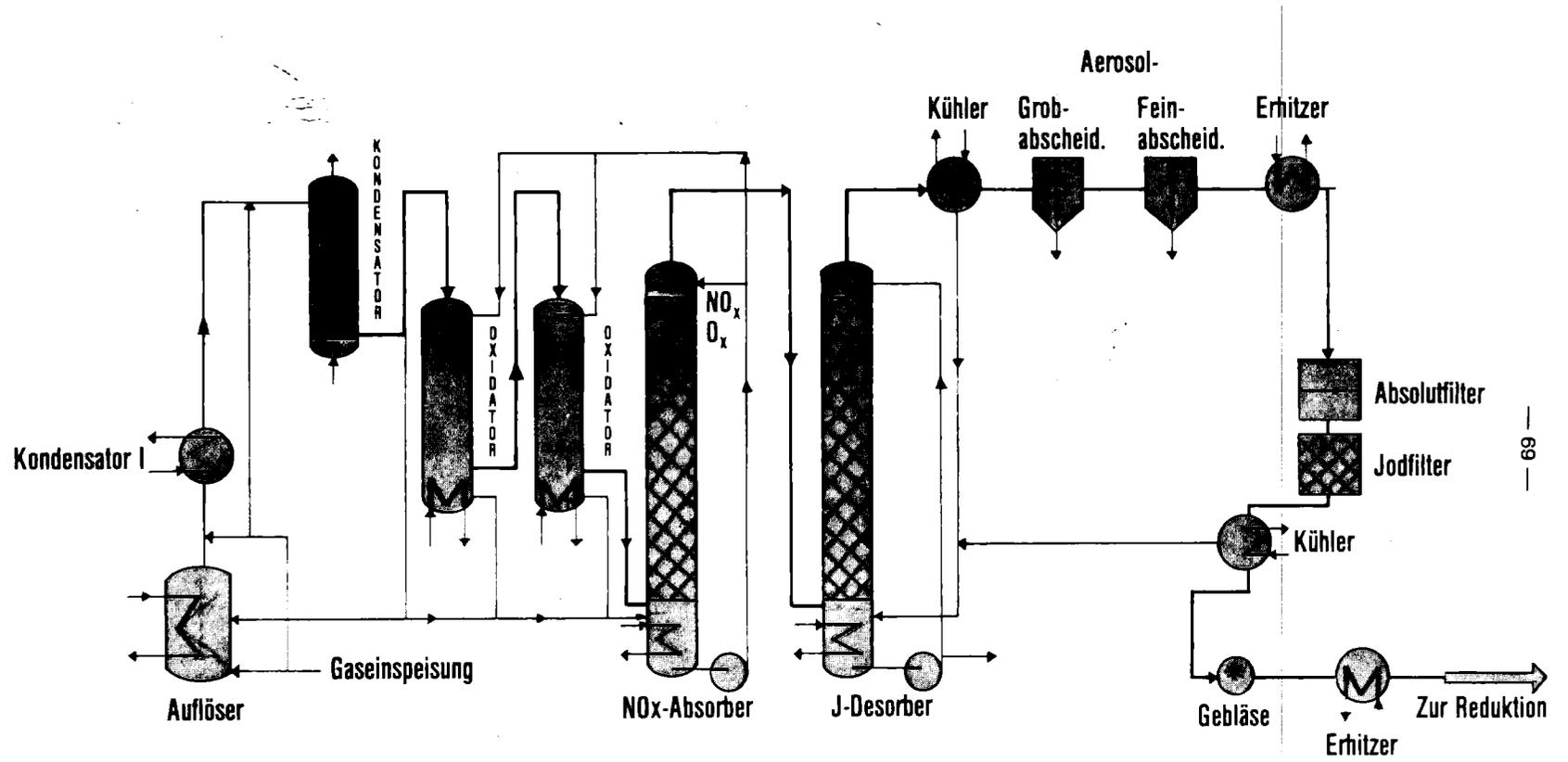
Wo steht nun Wissenschaft und Technik bei der Rückhaltung der radioaktiven Abgase ?

3) Stand der Technik bei der Schadstoffrückhaltung aus dem Auflöserabgas

Aus konventionellen verfahrenstechnischen Einheiten wurden in den vergangenen Jahren im Kernforschungszentrum Karlsruhe drei Teststände aufgebaut und auf ihre Wirksamkeit gegenüber den Schadstoffen des Auflöserabgases geprüft: Die Gründe für den Bau von drei Testständen statt eines zusammenhängenden sind nur räumlicher, nicht sachlicher Natur. Wegen der räumlichen Trennung wurden ihnen eigene apparatebezogene Namen gegeben, nämlich: HET, ADAMO und KRETA.

Abbildung 3 zeigt das Verfahrensfließbild des sog. Head-End-Teststandes HET (Teststand der Prozeß-Eingangsstufe). Er besteht aus einem Auflöser von ca. 400 Liter Fassungsvermögen, einem Kondensator, zwei Sprühkolonnen (0,6 m Querschnitt, Länge 5 m), zwei mit Pallringen gefüllte Kolonnen von je 10 m Höhe für die NO_x -Absorption und Jod-Desorption, einem Satz von je einem Aerosol-Grob-Fein- und Absolutfilter, Typ Euroform Brink und CEAG. Am Ende befindet sich ein Jodrückhaltefilter nach Wilhelm aus dem Labor für Filtertechnik des KfK.

Abbildung 4 zeigt das Verfahrensfließbild der Anlage zur Adsorption an Molekülsieben, abgekürzt: ADAMO. Der Stand besteht aus einem Gaskühlaggregat und drei Filterstrecken aus je einem Silikagel- und einem Molekularsieb-Bett. Die einzelnen Filterbettvolumen betragen je 100 Liter.



69

Verfahrensfließbild Versuchsstand Auflöser und Abgasbehandlung HET

Abb. 3

IHCH

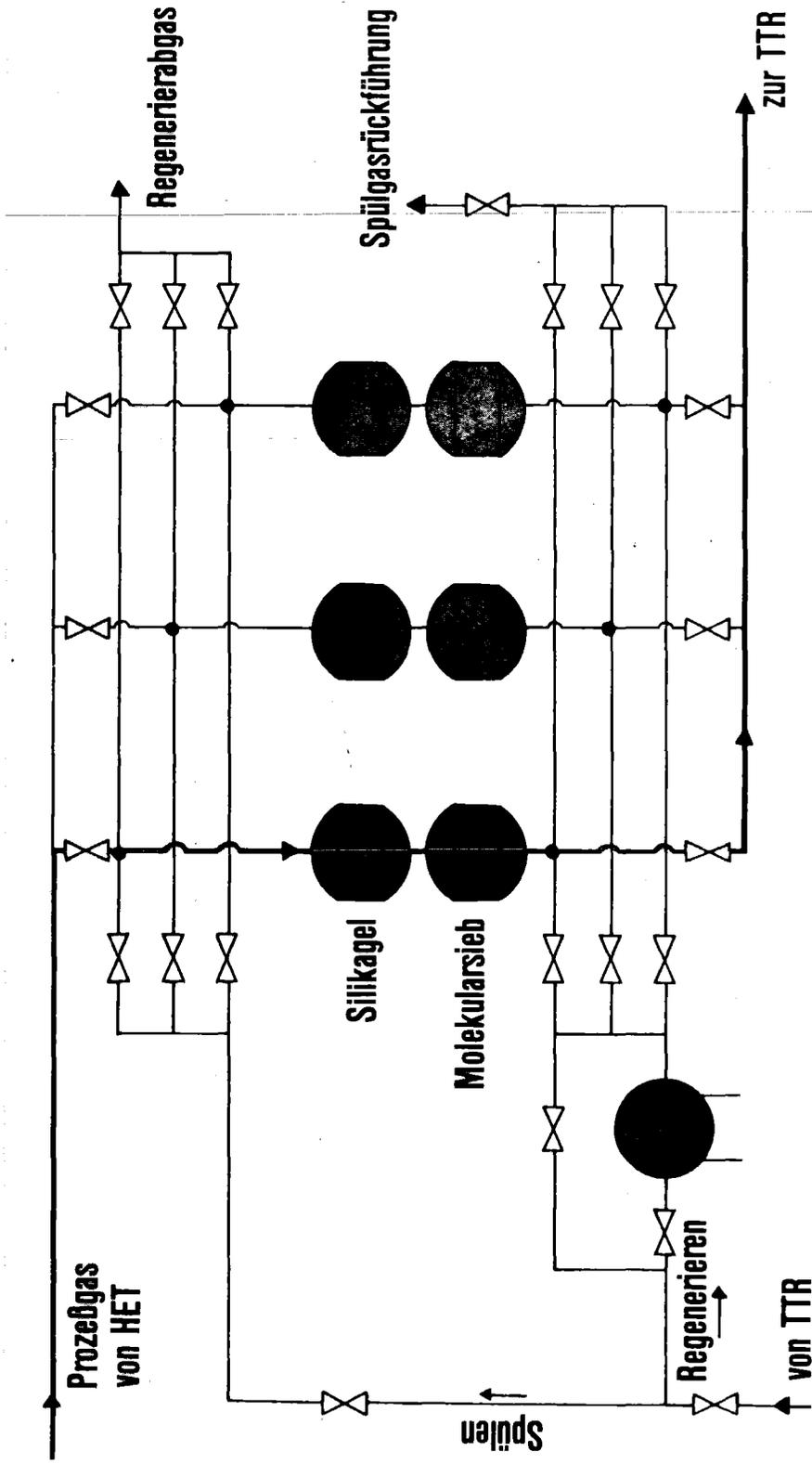
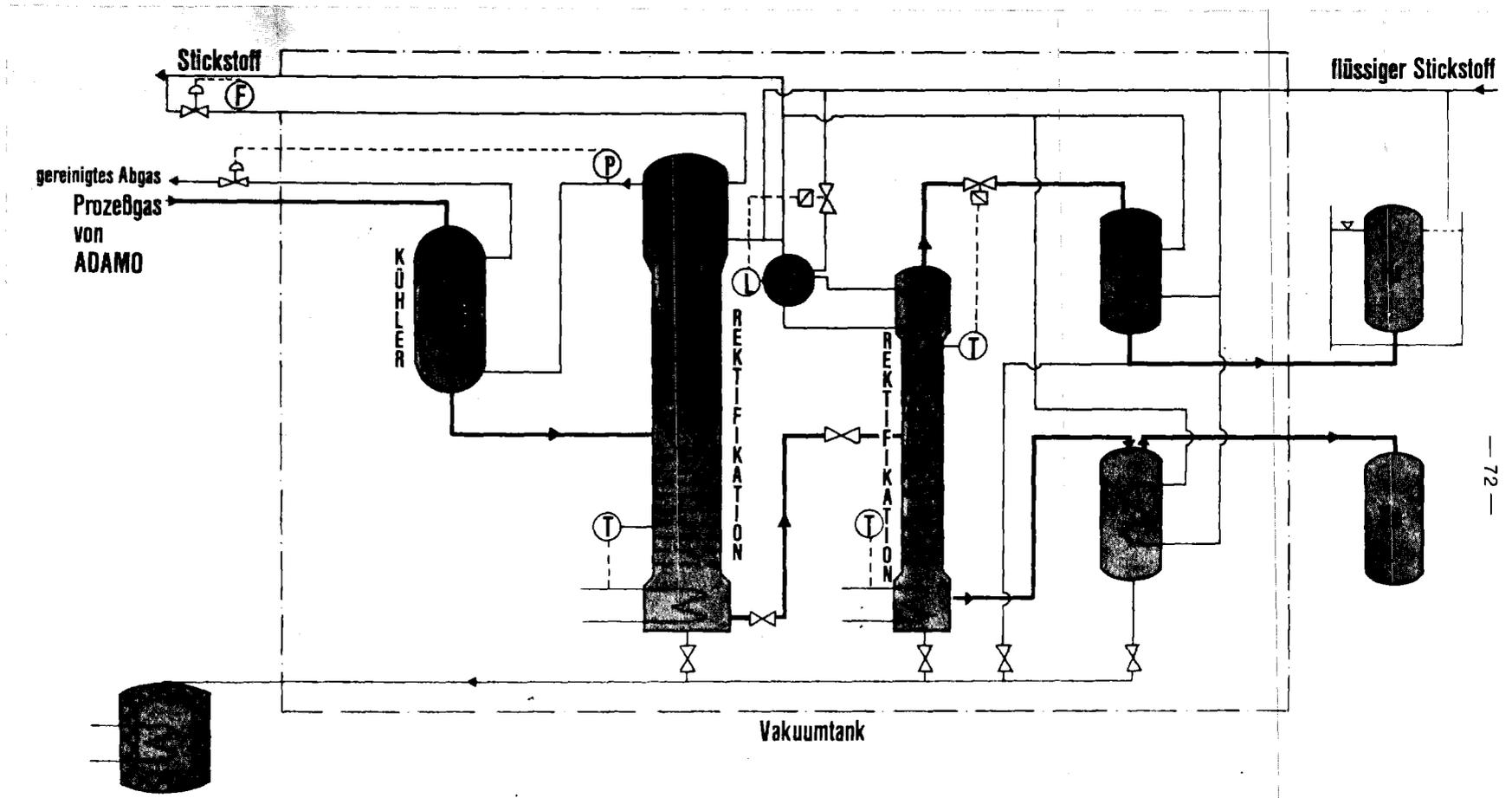


Abbildung 5 zeigt das Verfahrensfließbild der Krypton-Entfernungs-Tieftemperatur-Anlage, abgekürzt KRETA genannt. Diese Einrichtung besteht aus einem Wärmeaustauscher, in dem das anströmende Gas vor Eintritt in die Stickstoff-Rektifikationskolonne auf ca. 135 Kelvin abgekühlt wird. In der Rektifikationskolonne wird dann der Gasstrom etwa in der Mitte eingespeist, während der Kolonnensumpf auf ca. 180 K gehalten wird. Diese Verfahrensweise erlaubt es, daß der leichter siedende Stickstoff vom Einspeisepunkt an nach oben abdestilliert, während die schwerer flüchtigen Komponenten Xenon und Krypton nach unten abfließen und sich im Kolonnensumpf praktisch frei von Stickstoff anreichern können. Die so konzentrierten Edelgase werden, wegen ihrer geringen Menge diskontinuierlich, vom Boden der ersten Kolonne abgezogen und in der Mitte einer Xenon-Krypton-Trennkolonne eingespeist. Das Krypton destilliert nach oben ab und wird nach erneuter Kondensation zwischengelagert, dann in Druckflaschen abgefüllt.

Der Gasdurchsatz aller 3 Anlagen ist gleich und beträgt 50 Nm^3 pro Stunde, das ist etwa ein Drittel bis ein Viertel des derzeit geplanten mittleren Durchsatzes der 1400 jato Anlage.

Abbildung 6 zeigt schematisch die Folge des gesamten Filterkonzeptes und die wichtigsten, damit erreichbaren Dekontaminationsfaktoren. Das integrale Filtersystem ist so angeordnet, daß die Komponenten des Abgases in folgender Reihe zurückgehalten werden:

- 1) die Stickoxide und Wasser einschließlich dem tritiierten Wasser im Kühler und in der Waschkolonne; in diesen Waschkolonnen bleibt darüberhinaus auch ein Teil der Aerosole, Jod und RuO_4 zurück;
- 2) die Aerosole im Aerosolfiltersystem;
- 3) das Jod und Aerosolreste im Jodfilter;
- 4) Sauerstoff nach konventioneller katalytischer Verbrennung mit Wasserstoff zu Wasser durch dessen Kondensation;
- 5) Kohlendioxid (C-14) und noch vorhandene Spuren von NO_x und H_2O auf den Molekularsieben;
- 6) Krypton und Xenon einschließlich aller noch vorhandenen Spurenreste in der Tieftemperatur-Destillationsanlage.

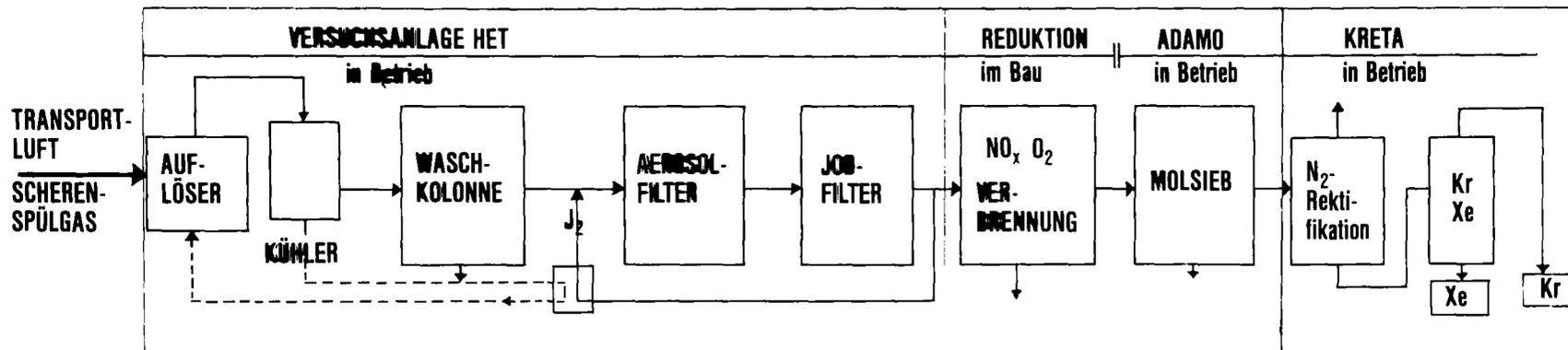


— 72 —

Verfahrensfließbild Tieftemperatur-Rektifikationsanlage KRETA

Abb. 5

IHCN-RBT/IT



Aerosole	$\sim 10^2$	$> 10^2$	+	+	+	abs	+
J ₂	$10^0 \sim 10^2$	1	$> 10^3$	+	+	abs	+
Kr	1	1	1	1	+	$> 10^3$	
HTO	$\sim 10^1$	1	1	1	$\sim 10^5 (< 1\text{ppm})$	abs	+
¹⁴ CO ₂	1	1	1	+	$\sim 10^3 (< 1\text{ppm})$	abs	+

Abb. 6

Es soll nochmals betont werden: alle Filtereinheiten entsprechen konventionellen Filtersystemen, wie sie auch an anderer Stelle in der Technik im Gebrauch sind. Als konventionelles Filtersystem wollen wir hier auch das KfK-Jodfilter nach Wilhelm betrachten, weil es bereits routinemäßig in der WAK zur Jodrückhaltung verwendet wird.

Die derzeit vorliegenden praktischen Ergebnisse, wie sie in Abbildung 6 zu ersehen sind, entsprechen dem Erfahrungsstand vom Oktober 1977. Die Krypton-Abtrennanlage KRETA und ADAMO hatten zu diesem Zeitpunkt 5 Versuchskampagnen mit insgesamt 15 Wochen Betrieb, der Head-End-Teststand einen 15-monatigen Versuchsbetrieb mit ca. 50 % Betriebszeit hinter sich.

Aus den Ergebnissen ist zu schließen, daß der System-DF für jede der genannten Schadstoffkomponenten nach dem Stand der Technik und ohne Optimierung nach Gesichtspunkten der chemischen Reaktionstechnik durch die teilweise mehrfache Wirkung einzelner Filterstufen in dieser Anordnung schon größer ist als 1000.

Aus den hohen DF-Werten der Einzelstufen und der teilweise mehrfachen Absicherung durch die hinterander geschaltete Filtereinheiten kann auch im Falle einer Störung an Einzelfiltern zumindest noch mit einer teilweisen Rückhaltung einzelner Abgaskomponenten gerechnet werden.

Als Folge der hohen Einzelmrückhaltefaktoren ist damit zu rechnen, daß die Leckraten bei der Weiterverarbeitung der zurückgehaltenen Einzelkomponenten möglicherweise größer sind als die Schadstoffabgaben durch das integrierte Filtersystem einschließlich der Gasverflüssigung bei der Edelgasabtrennung.

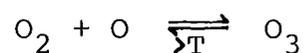
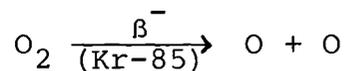
Die weiteren Entwicklungsaufgaben an den Prüfständen zur Schadstoffrückhaltung aus Abgasen liegen also weniger in der Steigerung der Dekontaminationsfaktoren der Einzelfilter, als vielmehr in der Bereitstellung von Auslegedaten und in der Betriebsoptimierung des integrierten Gesamtsystems.

Welche Auslegungsdaten und Optimierungsaufgaben des integrierten Systems stehen nun noch an ?

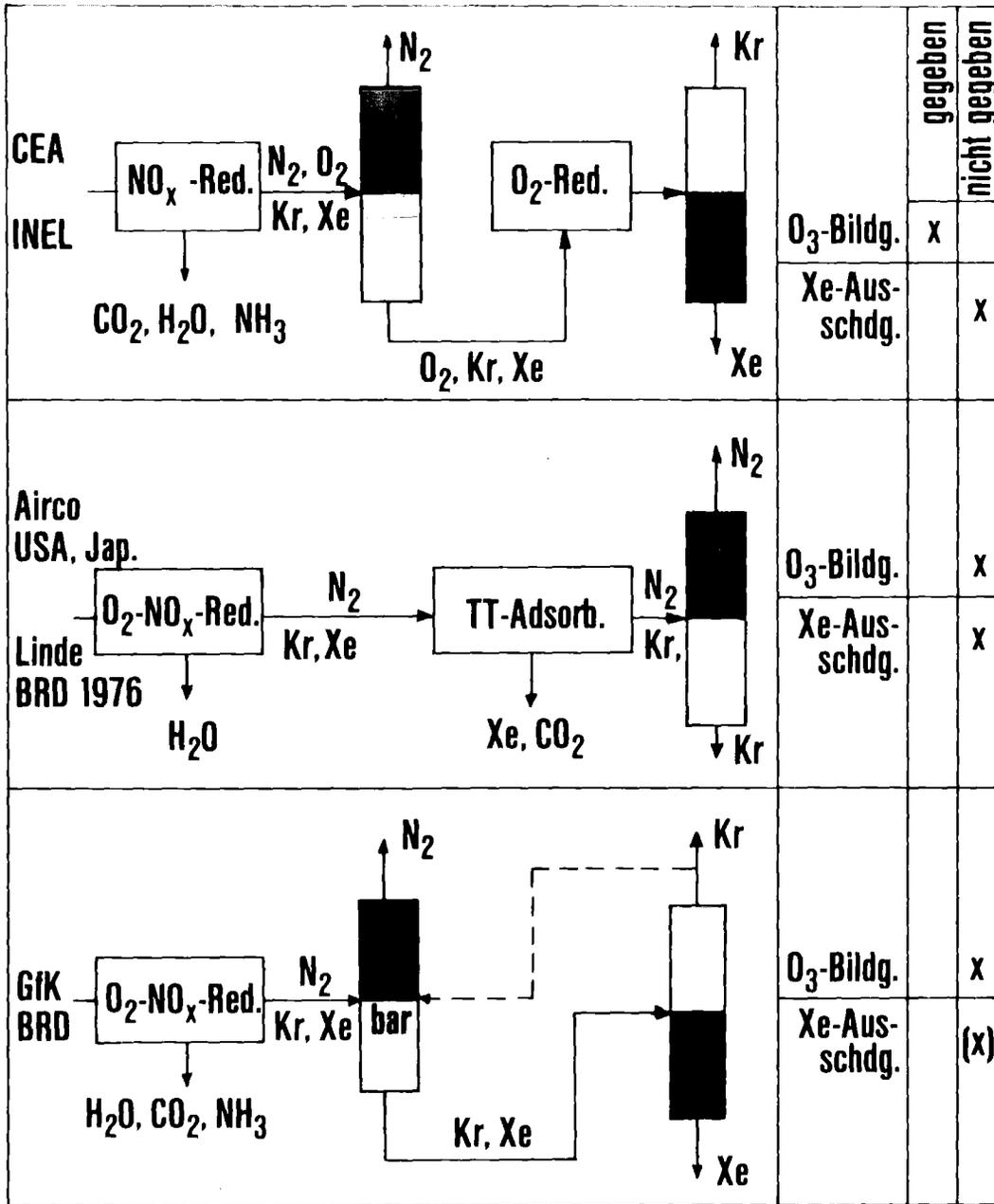
4) Entwicklungsaufgaben zum Abgas-Reinigungssystem

In der Bundesrepublik werden jährlich schätzungsweise 2000 bis 3000 Nm³ Krypton aus Luft gewonnen. Eine 1400 jato Wiederaufarbeitungsanlage wird dagegen nur ca. 140 Nm³ Krypton im Jahr produzieren und dabei vergleichbare Verfahrenseinheiten benützen wie bei der konventionellen Luftverflüssigung. Trotz der erheblich geringeren Krypton-Mengen bei der Wiederaufarbeitungsanlage sind aber noch einige Verfahrensfragen abzuklären:

Durch die ionisierende Strahlung des Krypton-85 kann sich aus dem Luftsauerstoff Ozon bilden, besonders wenn der Sauerstoff verflüssigt ist. Akkumuliertes Ozon wiederum kann sich unter Energieabgabe spontan zersetzen. Betriebsstörungen könnten die Folge sein.



In Abbildung 7 sind die Verfahrensweisen hinsichtlich der Sauerstoffentfernung in verschiedenen Anlagen und verschiedenen Ländern gegenübergestellt. In den Anlagen in Frankreich, Belgien und Idaho (USA) wird das Betriebsrisiko der Ozonbildung so gering eingeschätzt, daß keine besonderen Maßnahmen dagegen ergriffen werden und die Spalteredelgase gemeinsam mit dem Luftsauerstoff verflüssigt werden. Sukzessive werden dort zuerst der Stickstoff und dann der Sauerstoff vom Edelgasgemisch getrennt. Die Ozonbildung wird dabei durch nur kurze Kontaktzeiten vom Krypton und Sauerstoff in der flüssigen Phase so weit zurückgedrängt, daß kein Betriebsproblem daraus entsteht.



Vergleich der Krypton-Rückhalteanlagen

IHCH-RBT/IT

Abb. 7

In der Idaho-Chemical-Processing-Anlage wird seit 1958 nach dieser Verfahrensweise gearbeitet. Diese Anlage ist noch heute in Betrieb. Die Anlage ist allerdings nicht auf eine quantitative Krypton-Rückhaltung zum Umweltschutz ausgelegt, sondern dient der Gewinnung von radioaktivem Krypton als Handelsprodukt. In den deutschen Anlagen wird dagegen unter dem Gesichtspunkt der Risikominimierung von vornherein kein flüssiges Krypton-85-Sauerstoffgemisch erzeugt. Der Luft-sauerstoff im Trägergas wird vor der Verflüssigung durch Reduktion mit Wasserstoff quantitativ beseitigt, in Form von Wasser auskondensiert und der Rest auf dem Molekularsieb gebunden.

Durch diese Verfahrensweise tritt aber eine andere Schwierigkeit auf: die Ausfrierung des Xenons.

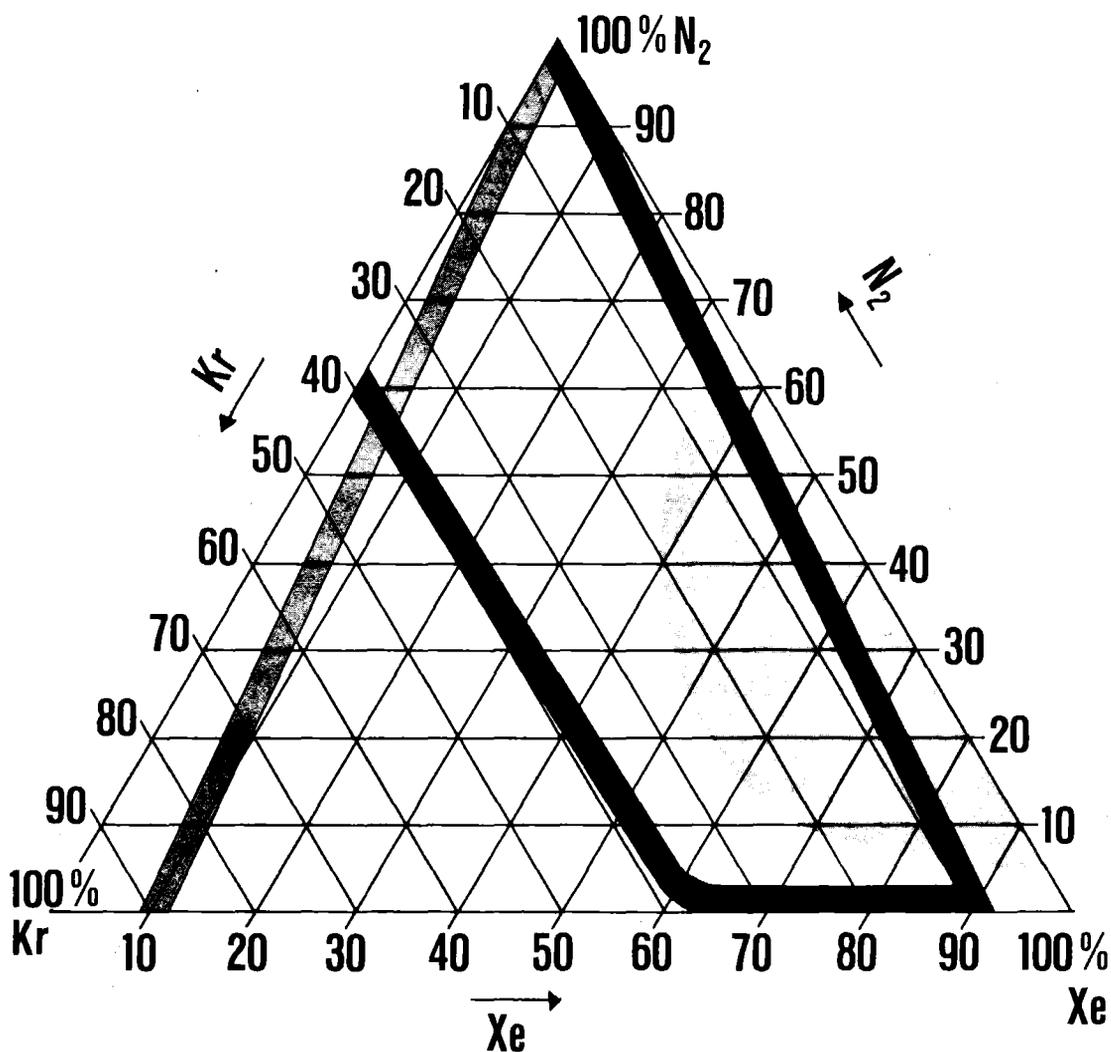
Nach Abtrennung des Sauerstoffs liegt bei der KfK-Verfahrensweise ein Dreikomponentensystem aus Stickstoff, Krypton und Xenon vor. Das Dreistoffdiagramm dieser Gase zeigt im fraglichen Temperaturbereich zwei Phasen, eine feste und eine flüssige mit dem Unlöslichkeitsbereich zwischen Xenon und Stickstoff, Abbildung 8.

Bei der üblichen Luftverflüssigung bedeutet das Unlöslichkeitsgebiet zwischen Stickstoff und Xenon keine Schwierigkeit, weil die Arbeitslinie außerhalb des Unlöslichkeitsbereichs verläuft, wie aus Abbildung 8 (linke Arbeitslinie) zu ersehen ist. Durch den in der Luft vorliegenden 10-fachen Kryptonüberschuß gegenüber Xenon wird der Unlöslichkeitsbereich bei der Luftverflüssigung nicht berührt.

Bei der Abtrennung der Spaltedelgase läßt sich aber nicht in derselben Weise verfahren, weil man durch das umgekehrte Krypton-Xenon-Mengenverhältnis von ungefähr 10 : 1 (das sich bei der Kernspaltung so ergibt) direkt auf den Unlöslichkeitsbereich des Xenons treffen würde, Abbildung 8 (rechte Arbeitslinie).

Verschiedene Fahrweisen

- ohne Kr-Vorlage
- Kr-85 Rückführung
- mit Kr-Vorlage



IHCH-RBT/IT

Verlauf der Sumpfkonzentrationen beim Anfahrvorgang

Abb. 8

Diese Situation läßt sich aber auf mehrere Weise umgehen, Abbildung 8:

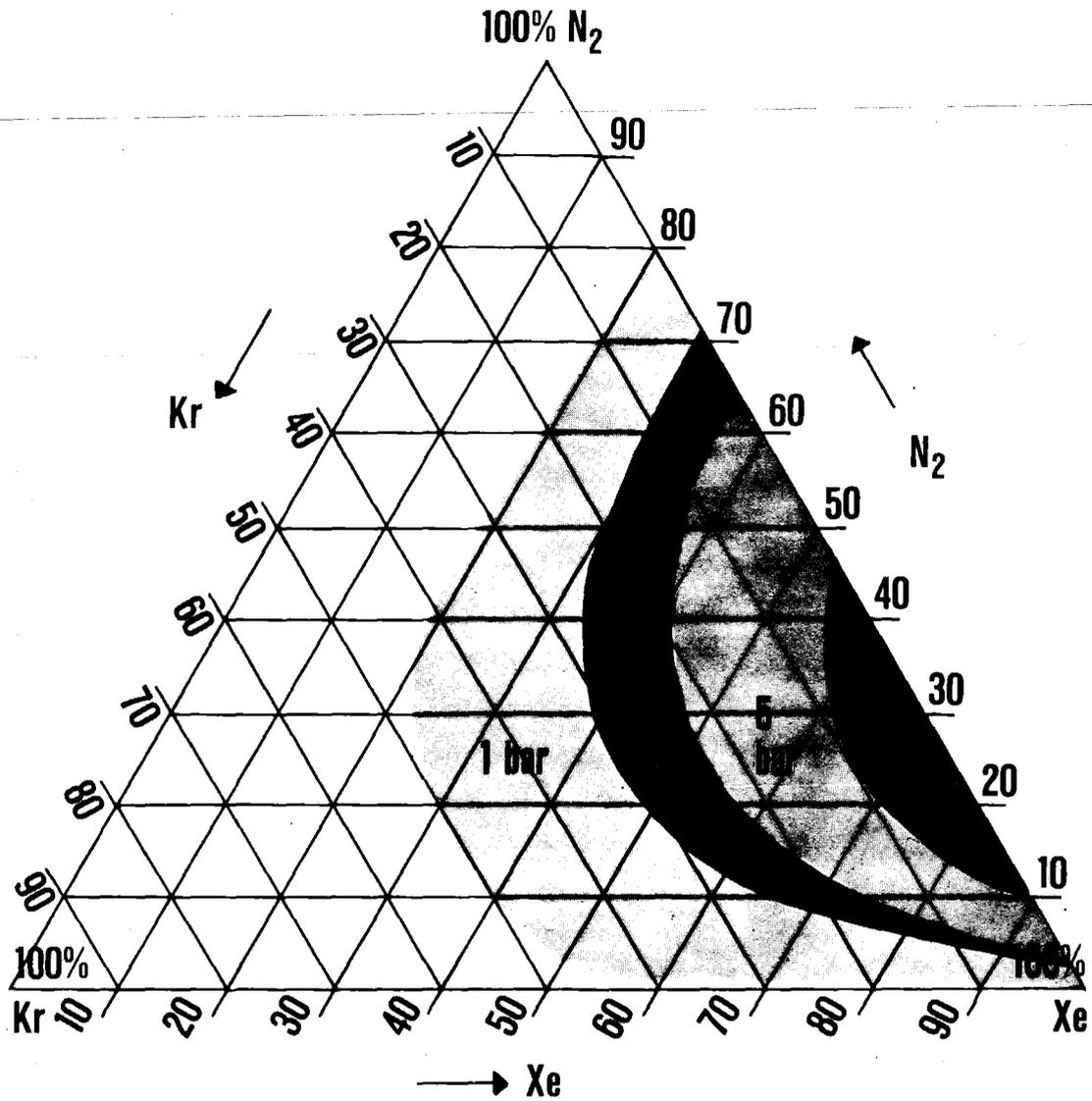
- 1) durch eine Kr-Vorlage
- 2) durch Krypton-Recyclierung
- 3) durch Rektifikation bei höherem Druck (≥ 15 bar)

Wenn beispielsweise von einer Kryptonvorlage im Sumpf der ersten Kolonne ausgegangen wird, dann läßt sich bei der weiteren Abdestillation des Stickstoffs der Xenon-Gefrierbereich umfahren wie in Abbildung 8 (gebogene Arbeitslinie) angedeutet ist.

Ein anderer, aber ähnlicher Weg ist die Rezyklierung des einmal abgetrennten Kryptons. Diese Variante wird bei der im Bau befindlichen AZUR-Anlage bei der WAK eingeschlagen. Durch fortlaufendes Rückführen des abgetrennten Kryptons wird das Krypton-Xenon-Verhältnis allmählich dem in der Atmosphäre und damit den konventionellen Verhältnissen bei der Luftverflüssigung angenähert.

Abbildung 9 zeigt die Siede- und Gefrierflächen bei verschiedenen Drücken¹⁴⁾. Mit steigendem Druck weicht das Unlöslichkeitsgebiet zurück, um bei ca. 15 bar zu verschwinden. Daraus ergibt sich die dritte Möglichkeit, die Xenonausfrierung zu vermeiden, nämlich Rektifikation bei höherem Druck. Der Betrieb einer Rektifikationssäule bei tiefen Temperaturen und bei 15 bis 20 bar ist keine technische Neuerung. Die Eingangsstufen konventioneller Luftzerlegungsanlagen arbeiten in einem Druckbereich von 5 bis 10 bar.

Den optimalen Weg zu finden zwischen Rektifikation bei höherem Druck, Krypton-Vorlage oder Krypton-Rezyklierung ist die Entwicklungsaufgabe der allernächsten Zeit.



IHCH-RBT/IT
**Das Dreistoffdiagramm N₂-Kr-Xe mit dem fest-flüssigen
Zweiphasengebiet bei verschiedenen Drucken**

Abb. 9

Es würde der Versachlichung der Diskussion um die Sicherheit im Brennstoffkreislauf dienen, wenn in Zukunft mehr als bisher beachtet würde, daß diese laufenden Entwicklungsarbeiten zur Krypton-Rückhaltung rein der Betriebsoptimierung dienen. Ein Problem wie das beschriebene, das allein durch einen höheren Betriebskostenaufwand in Form einer Kryptonvorlage aus der Welt geschafft werden kann, sollte nicht als ein Sicherheitsproblem hingestellt werden.

Zum Schluß noch zu den Entwicklungsaufgaben für die Apparateauslegung und Betriebsoptimierung im Auflöser-nahen Filterbereich HET.

Schon eine flüchtige Betrachtung des Mengenfließbildes der Abgasbehandlung (Abbildung 10) zeigt, daß im bisherigen Verfahrenskonzept das radioaktive Gasvolumen, das eigentlich die Ursache des Aufwandes ist, nur noch Promille des zu filternden Abgasvolumens ausmacht. Es besteht gegenüber der eigentlichen Absicht der Abgasbehandlung eine auf den Kopf gestellte Situation: Das absichtlich zugeführte, inaktive Transportgas nimmt einen so großen Umfang ein, daß von ihm die Apparatedimensionen bestimmt werden und damit die Anlagenkosten und auch die als Restkonzentration ausgetragene, absolute Menge der Schadstoffe.

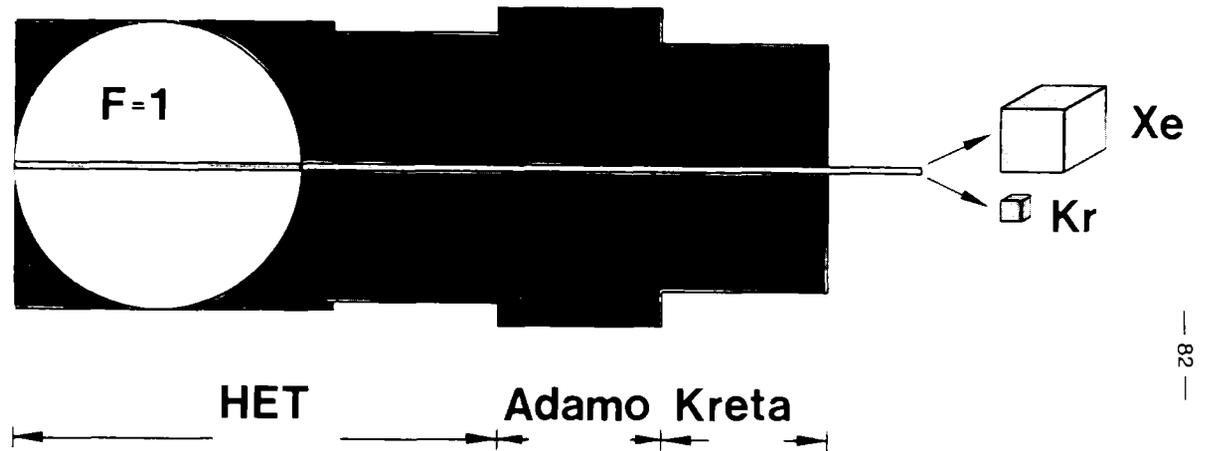
Damit wird man auf die Frage gestoßen, in welchem Umfang das Transportgas im Auflöserabgas überhaupt erforderlich ist.

Das Transportgas leitet seine Daseinsberechtigung ab zum einen vom Radiolysewasserstoff und zum anderen vom geringen Dampfdruck des Jods bei niederen Temperaturen.

Um die Explosionsgrenze des Wasserstoffs in Luft zu unterschreiten (das sind 4,1 % H_2 in Luft), genügt es, ihn um das 50 bis 100-fache seines Volumens zu verdünnen.

Von Wasserstoff bilden sich 10 Liter pro Stunde und Doppeltonne Brennstoff unter den Bedingungen, die am Anfang genannt worden sind. Um diese Wasserstoffmenge sicher handhaben zu können,

Stand der Planung



Mindestvolumen für
 H_2 -Verdünnung



Abgas-Volumenströme aus Auflöser

IHCH

Abb. 10

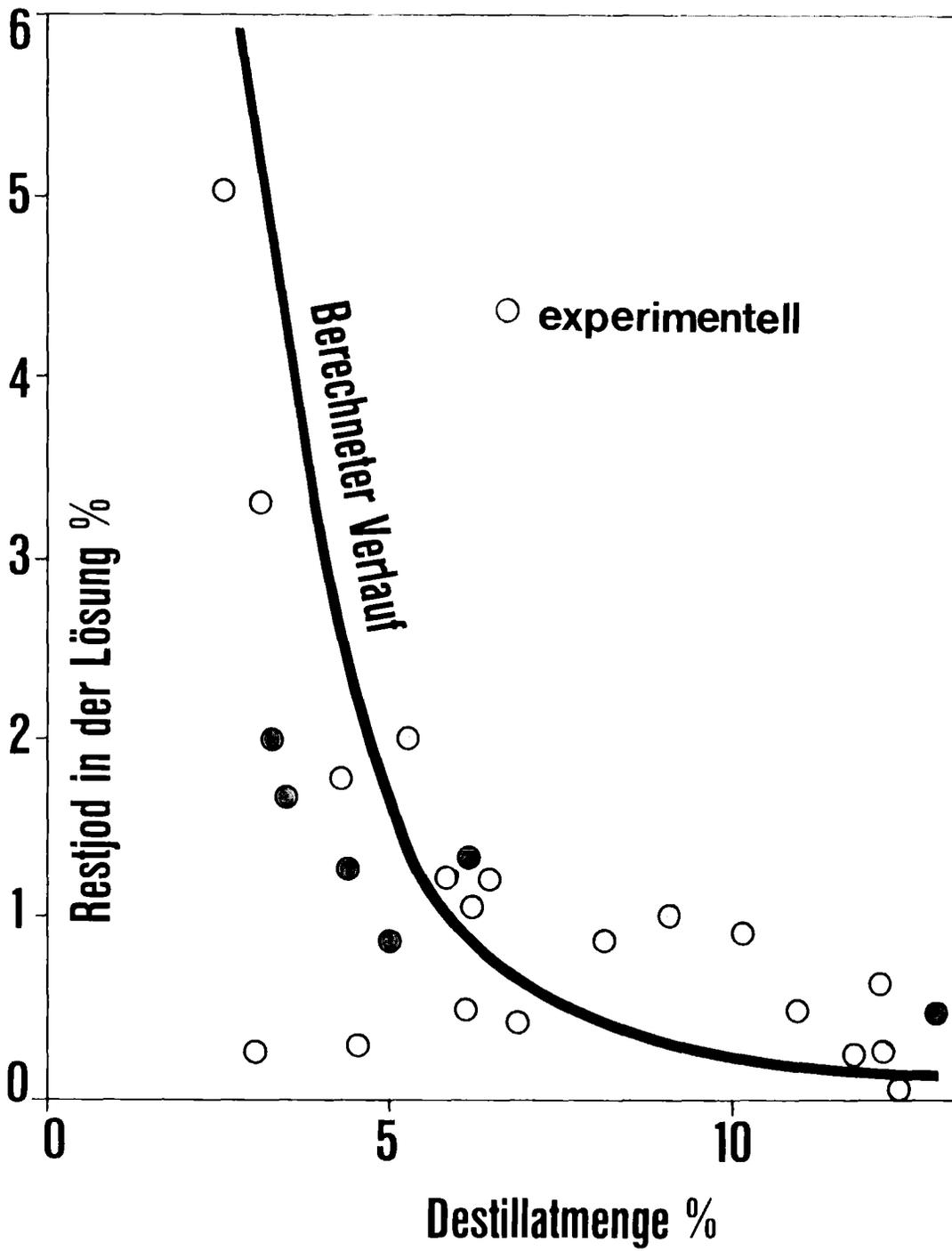
werden rund 1 m^3 Luft pro Stunde zur Verdünnung benötigt. Das ist etwa ein tausendstel der gegenwärtig noch vorgesehenen Transportgasmenge.

Eine gewisse Menge an Transportgas wurde bisher aber auch für den Abtransport des Jods aus dem Auflöser für notwendig erachtet. Die möglichst vollständige Verflüchtigung des Jods aus dem Auflöser ist ein Ziel, das auch unter dem Gesichtspunkt der Transportgasminimierung nicht aufgegeben werden sollte. Andernfalls würde das Jod in den Extraktionsteil der Anlage überführt werden und sich dort auf das organische Lösungsmittel und andere Prozeßströme verteilen.

Dieses Ziel der möglichst vollständigen Jodaustreibung aus dem Auflöser kann aber durch Destillation allein auch erreicht werden, wie Abbildung 11 zeigt. Wie aus dem Verlauf der Restjodkonzentrationen in einem Auflöser extrapoliert werden kann, sollte das Jod bei Abdestillation von 10 % des Lösevolumens auf rund 1 Promille abgereichert werden. In der Praxis zeigt sich dagegen bei einem Restjodgehalt um etwa 1/2 bis 1 % eine nur schwer unterschreitbare Grenze. Die Ursache dafür liegt u.a. darin, daß sich in der kochenden Salpetersäure höhere, nicht flüchtige Oxidationsstufen des Jods bilden.

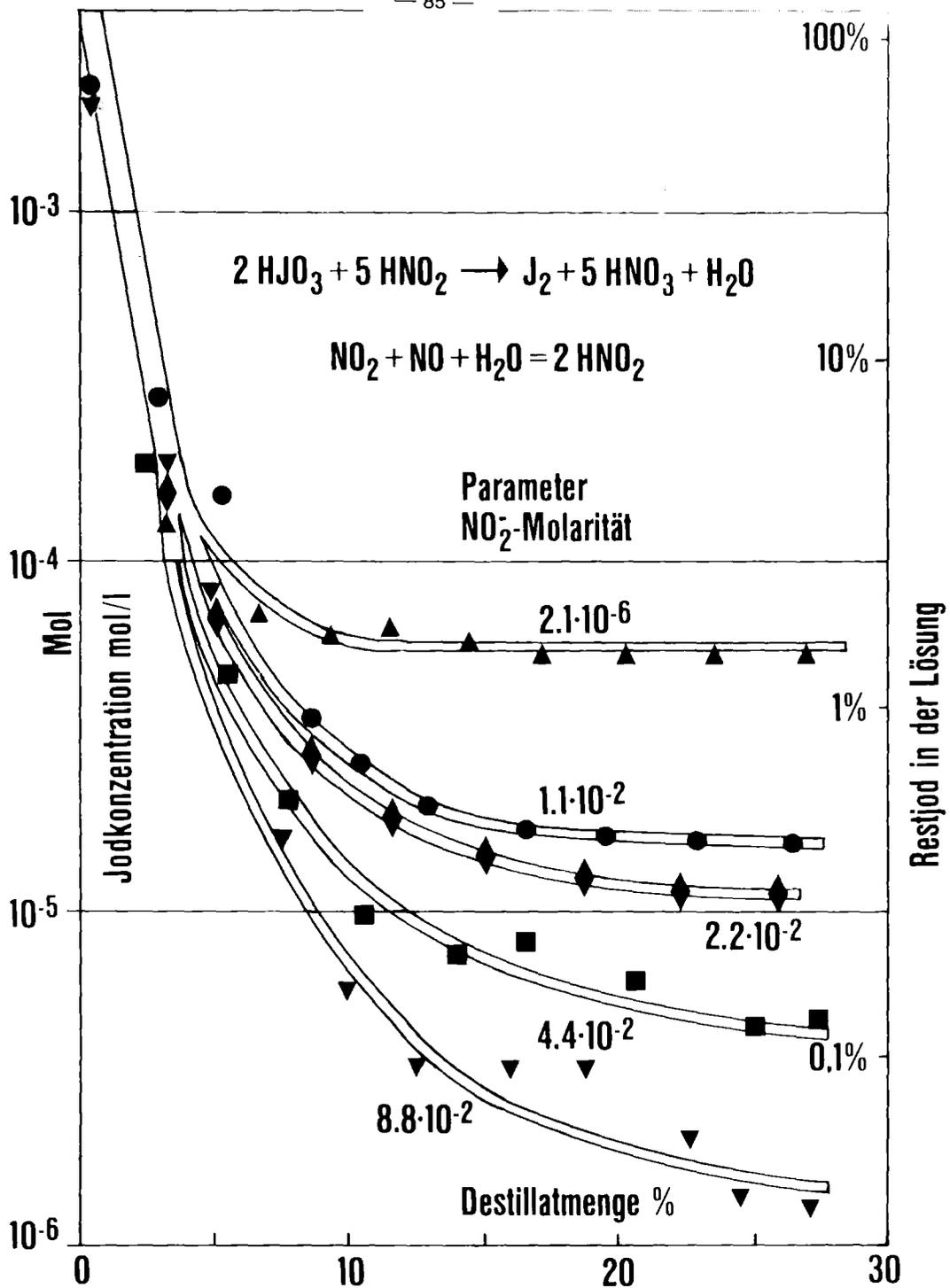
Abbildung 12 zeigt Versuchsergebnisse, wie die Restjodschwelle von 1 % durch chemisch reduzierende Zusätze noch weiter herabgesetzt werden kann. Das Reduktionsmittel läßt sich in Form von NO_x auch in salzfreier Form und als prozeßeigene Chemikalie zuführen.

An diesem Beispiel dürfte ersichtlich sein, daß auch die Jodaustreibung aus dem Auflöser nicht transportgasbestimmend ist. Für die Transportgasminimierung gibt es aber auch noch andere Möglichkeiten. Wie weit die einzelnen Wege beschritten werden können, hängt insbesondere von der Scheren- und Auflöserkonstruktion ab. Auf die Möglichkeiten und Vorteile der Gasrezyklierung wurde hier - mit Ausnahme der kurz erwähnten Kryptonrezyklierung - nicht eingegangen.



**Abnahme der Jodkonzentration
bei der Destillation simulierter Brennstofflösung**

IHCH
Abb. 11



Verbesserung der Joddestillation durch zusätzliche chemische Behandlung

Abb. 12

Dieser Bericht soll abgeschlossen werden mit einer zusammenfassenden Bemerkung über die Forderung von minimaler Umweltbelastung durch die radioaktiven Abgase und über die sich daraus ergebenden Entwicklungsaufgaben.

Wenn als Stand der Technik das verstanden wird, was ohne Rücksicht auf Kosten erreichbar ist, dann dürften die hier vorgeführten Beispiele aus der Abgasbehandlung gezeigt haben, wie praktisch alle Sicherheitsforderungen - einschließlich der nicht mehr sinnvollen - erfüllbar sind, ohne daß dabei in technologisch unbekanntes Neuland vorgestoßen werden müßte - so wie es beispielsweise noch bei der Weltraumfahrt notwendig gewesen ist. Diese Tatsache gibt uns die Gewißheit, daß die große Wiederaufarbeitungsanlage entgegen einer verbreiteten Meinung sicherlich im Rahmen konventioneller Risiken wahrscheinlich sogar mit geringeren Risiken als den alltäglichen, an die wir uns gewöhnt haben, betrieben werden kann.

Wenn dabei so wie heute oft verfahren wird, die Forderungen zur Erhöhung der Sicherheit bereits im ersten Planungsdurchgang, fast ohne Rücksicht auf die Kosten erfüllt werden, dann ist die technologische Nachlese für Forschungs- und Entwicklungsgruppen eine besonders lohnende Arbeit.

Was ich hier vorgetragen habe sind die Ergebnisse der Arbeiten von 2 GfK-Arbeitsgruppen: von der Projektgruppe Kryptonabtrennung aus der Abteilung Reaktorbetriebe und vom Bereich KRETA und HET aus dem Institut für Heiße Chemie.

- 1) M.J. Bell, ORNL-4628 (1973)
- 2) H. Schüttelkopf, G. Herrmann, Int.Symp. Monit. Radioact. Airborne on Liquid Releases from Nuclear Facilities, Portoroz, Sept. 1977, IAEA-SM-217/23
- 3) Mahlmann, J. Chem. Phys. 35, 936 (1961)
- 4) Kazanjian et al., Trans. Farad. Soc. 66, 2192 (1970)
- 5) Sauer et al., ANL-76-46
- 6) Bakh et al., Proc. 1st All Union Conf. Rad. Chem. 39, (1957), CA 53, 12021 (1959), zitiert in: F.J. Miner, J.R. Seed, Chem. Rev. 67, 229 (1967)
- 7) J.C. Sheppard, Report BNWL-751 (1968).
- 8) C.E. Pietri und A.W. Wengel, Report NBL-242 (1968)
- 9) A.R. Kazanjian und D.R. Horrell, Rad. Effects 13, 277-280 (1972)
- 10) J.R. Weiss und Ch.E. Pietri, Rad. Effects 19, 191-193 (1973)
- 11) R.F. Bradley, Report DP-1264 (1971)
- 12) N.E. Bibler, J. Phys. Chem. 78, 211 (1974) und Report DP-MS-72-68 (1968)
- 13) V.M. Byakov, F.G. Nichiporov und L.T. Bugaenko, Proc. 3. Tihany Symp. Radiat. Chem. 1972, 1141-9
- 14) Neffe, interne KFK-Notiz

Anhang: Berechnung der Dosisbelastung von Personen am intensivsten Aufpunkt bei vollständiger gasförmiger Emission von Krypton-85, Jod-129, tritiiertem Wasserdampf und $^{14}\text{CO}_2$ über einen 200 Meter Kamin ohne Rückhaltung.

Nach dem Entwurf des Bundesinnenministeriums vom 12.6.1977: "Allgemeine Berechnungsgrundlagen für die Bestimmung der Strahlenexposition durch Emission radioaktiver Stoffe mit der Abluft" (Abbildung 13) errechnet sich der maximale Langzeitausbreitungsfaktor für einen 200 Meter Kamin, wie er im Entsorgungszentrum vorgesehen ist, zu $0,64 \cdot 10^{-7} \text{ sec/m}^3$. Dieser Wert stellt sich bei gleichmäßiger Emission in etwa 1000 m Entfernung vom Kamin ein, wenn die Windrichtungshäufigkeit 15 % für einen 30° Sektor ausmacht.

a) Krypton-Emission ohne Rückhaltung

Im Jahresmittel beträgt die Radioaktivität des Kr-85 am intensivsten Aufpunkt, wenn keine Kryptonrückhaltung wirksam sein sollte:

$$9,92 \cdot 10^3 \frac{\text{Ci}}{\text{tU}} \cdot 1400 \frac{\text{tU}}{\text{a}} \cdot \frac{1}{3,1558 \cdot 10^7} \frac{\text{a}}{\text{sec}} \cdot 0,64 \cdot 10^{-7} \frac{\text{sec}}{\text{m}^3} =$$
$$= 2,8 \cdot 10^{-8} \frac{\text{Ci}}{\text{m}^3}$$

Der Dosisfaktor der Kryptonstrahlung für die Haut, dem kritischen Körperorgan des Kryptons, beträgt nach Regulatory Guide 1,109 (S. 41) $1,34 \cdot 10^9 \text{ mrem m}^3/\text{Ci a}$.

Die somit zu erwartende Dosisbelastung der Haut bei vollständig emittiertem Kr-85 während eines ganzen Jahres aus dem 200 Meter Kamin einer 1400 jato Anlage ergibt sich daraus zu:

$$2,8 \cdot 10^{-8} \frac{\text{Ci}}{\text{m}^3} \cdot 1,34 \cdot 10^9 \frac{\text{m}^3}{\text{Ci}} \frac{\text{mrem}}{\text{a}} = 37,5 \text{ mrem/a}$$

b) Jod-Emission ohne Rückhaltung

Nach 2 Jahren Abklingzeit der Brennelemente liegt die Radioaktivität des Jods nur noch im Jod-129. Ohne Rückhaltung des Jods würde die Jod-129 Aktivität unter den Bedingungen wie bei a) am intensivsten Aufpunkt betragen:

$$37,5 \cdot 10^{-3} \frac{\text{Ci}}{\text{tU}} \cdot 1400 \frac{\text{tU}}{\text{a}} \cdot \frac{1}{3,1558 \cdot 10^7} \frac{\text{a}}{\text{sec}} \cdot 0,64 \cdot 10^{-7} \frac{\text{sec}}{\text{m}^3} =$$

$$= 1 \cdot 10^{-13} \frac{\text{Ci}}{\text{m}^3}$$

Das kritische Organ für Jod ist die Schilddrüse. Vom Bundesministerium des Inneren wird der Dosisfaktor des Jod-129 für Kleinkinder, der alle Belastungspfade einschließt, mit $2,552 \cdot 10^6 \text{ rem m}^3/\text{sec Ci}$ angegeben.

Bei Kleinkindern, falls deren Milch von der Weide am stärksten Abgas-Aufpunkt der 1400 jato Anlage gewonnen werden sollte, wäre somit bei vollständiger Emission des Jods während eines ganzen Jahres eine maximale Dosisbelastung der Schilddrüse zu erwarten von:

$$1 \cdot 10^{13} \frac{\text{Ci}}{\text{m}^3} \cdot 2,552 \cdot 10^6 \frac{\text{m}^3}{\text{Ci}} \frac{\text{mrem}}{\text{sec}} \cdot 3,1558 \cdot 10^7 \frac{\text{sec}}{\text{a}} = 8,0 \text{ rem/a}$$

c) Tritium-Wasserdampf-Emission ohne Rückhaltung

Die Erfahrung lehrt, daß nur 50 bis 90 % des Tritiums als HTO in der Lösung des Brennstoffs auftreten. Der Rest bleibt in den Zircaloy-Hülsen gebunden und wird mit diesen beseitigt. Als tritiiertes Wasser treten deshalb statt 640 Ci nur 320 bis 580 Ci/t U in Erscheinung. Wenn die gesamte Tritium-Menge die in der Brennstofflösung enthalten ist, über einen 200 Meter Kamin an die Atmosphäre abgegeben würde, dann ergäbe sich am intensivsten Aufpunkt eine Tritium-Konzentration von:

$$(320 \text{ bis } 580) \frac{\text{Ci}}{\text{tU}} \cdot 1400 \frac{\text{tU}}{\text{a}} \cdot \frac{1}{3,1558 \cdot 10^7} \frac{\text{a}}{\text{sec}} \cdot 0,64 \cdot 10^{-7} \frac{\text{sec}}{\text{m}^3} =$$

$$(9 \text{ bis } 16) \cdot 10^{-10} \frac{\text{Ci}}{\text{m}^3}$$

Der tritierte Wasserdampf vermischt sich dabei vollständig mit dem natürlichen Wasserdampf der Atmosphäre. Bei einer mittleren Feuchtigkeit von $10 \text{ g H}_2\text{O}/\text{m}^3$ Luft resultiert daraus eine spezifische Tritium-Aktivität von $(9 \text{ bis } 16) \cdot 10^{-11} \frac{\text{Ci}}{\text{gH}_2\text{O}}$.

Tritium in Form von Wasser verteilt sich über den ganzen Körper. Deshalb gibt es kein kritisches Organ für Tritium, sondern es zählt die Gesamtkörperbelastung. Die "Referenz-Person" von 70 kg Gewicht besteht zu 42 kg aus H_2O . Bei vollkommenem Gleichgewicht des Körperwassers mit dem atmosphärischen Wasserdampf und dem daraus kondensierten Wasser ergäbe sich eine Gesamtkörperbelastung durch Tritium zu:

$$(9 \text{ bis } 16) \cdot 10^{-11} \frac{\text{Ci}}{\text{gH}_2\text{O}} \cdot 3,7 \cdot 10^{10} \frac{\text{Zerf.}}{\text{Ci sec}} \cdot 3,1558 \cdot 10^7 \frac{\text{sec}}{\text{a}} \cdot$$

$$6880 \frac{\text{eV(mittel)}}{\text{Zerf.}} \cdot 1,6 \cdot 10^{-12} \frac{\text{erg}}{\text{eV}} \cdot \frac{42000}{70000} \frac{\text{gH}_2\text{O}}{\text{g Ref.Pers.}} \cdot \frac{1}{100}$$

$$\frac{\text{rad g Ref.Pers.}}{\text{erg.}}$$

$$= 6,9 \text{ bis } 12,3 \text{ mrem/a}$$

d) ^{14}C -Kohlendioxid-Emission ohne Rückhaltung

Das $^{14}\text{CO}_2$ aus einer 1400 jato Anlage erreicht bei unbehinderter Emission während eines Jahres am intensivsten Aufpunkt eine Radioaktivität von

$$0,033 \frac{\text{Ci}}{\text{tU}} \cdot 1400 \frac{\text{tU}}{\text{a}} \cdot \frac{1}{3,1558 \cdot 10^7} \frac{\text{a}}{\text{sec}} \cdot 0,64 \cdot 10^{-7} \frac{\text{sec}}{\text{m}^3} =$$

$$9,4 \cdot 10^{-14} \frac{\text{Ci}}{\text{m}^3}$$

Für Radiokohlenstoff gibt es kein kritisches Organ. Deshalb wird die Gesamtkörperdosis berechnet. Die "Referenz-Person" von 70 kg Gewicht enthält 16 kg Kohlenstoff. Wie beim Tritium treffen wir die Annahme, daß der Kohlenstoffgehalt der Referenz-Person dieselbe Konzentration an Radiokohlenstoff besitze wie am intensivsten Aufpunkt in der Umgebung der Wiederaufarbeitungsanlage.

Die Strahlendosisbelastung dieser Referenz-Person durch das $^{14}\text{CO}_2$ würde dann betragen:

$$9,4 \cdot 10^{-14} \frac{\text{Ci}}{\text{m}^3} \cdot \frac{1}{0,5} \frac{\text{m}^3}{\text{g}^{12}\text{CO}_2} \cdot \frac{44}{12} \frac{\text{g}^{12}\text{CO}_2}{\text{g}^{12}\text{C}} \cdot \frac{16000}{70000} \frac{\text{g}^{12}\text{C}}{\text{g Ref.Pers.}} \cdot$$

$$\cdot 3,7 \cdot 10^{10} \frac{\text{Zerf.}}{\text{Ci sec}} \cdot 3,1558 \cdot 10^7 \frac{\text{sec}}{\text{a}} \cdot 57700 \frac{\text{eV(mittel)}}{\text{Zerf.}} \cdot$$

$$\cdot 1,6 \cdot 10^{-12} \frac{\text{erg}}{\text{eV}} \cdot \frac{1}{100} \frac{\text{rad g Ref.Pers.}}{\text{erg}}$$

$$= 0,17 \text{ mrem/a}$$

TIEFLAGERUNG RADIOAKTIVER ABFÄLLE IM SALZ

- Erreichtes und Geplantes -

F. Perzl

Gesellschaft f. Strahlen- u. Umweltforschung mbH. München

1. Einleitung

Die sichere Beseitigung radioaktiver Abfälle gewinnt in letzter Zeit insbesondere in der öffentlichen Diskussion immer mehr an Bedeutung.

Zum Teil wird bezweifelt, daß es grundsätzlich möglich ist, diese potentiell gefährlichen Stoffe überhaupt sicher zu handhaben und anschließend zu beseitigen, u. a. mit dem Argument, daß diese Abfälle über Jahrhunderte bzw. Jahrtausende bewacht werden müssen. Eine Bewachung über derartige Zeiträume ist jedoch nicht erforderlich, wenn wir uns Methoden bedienen, die uns von der Natur vorgemacht wurden.

2. Salzgestein als Lagermedium und Sicherheitsbarrieren

Folgende Voraussetzungen müssen an eine endgültige sichere Entfernung radioaktiver Abfälle aus der Biosphäre bei einer Lagerung in tiefen geologischen Formationen erfüllt sein:

- Abschluß von der Biosphäre bis zum Zerfall der radioaktiven Stoffe
- dichter Einschluß in geologisch stabile Formation
- kein Auftreten von Spalten und Klüften, die Wasserzutritt ermöglichen

- einige hundert Meter Tiefe, lange Diffusionswege und Rückhaltevermögen von Gesteinsschichten für radioaktive Stoffe wird wirksam
- keine Zerstörung der dichten geologischen Schicht durch Erwärmung bei Einlagerung hochradioaktiver Abfälle

Diese Voraussetzungen werden durch Salzgestein in hervorragender Weise erfüllt. Norddeutsche Salzstöcke in ihrer jetzigen Form sind vor etwa 120 Millionen Jahren entstanden und haben sich nur unwesentlich geändert, obwohl die Salzstöcke inzwischen durch hunderte von Metern Ablagerungen (Gestein, Sande, Kiese) überdeckt wurden. Bei Hohlräumen im Salzgestein ist jedoch zu beachten, daß lokale Auflösungen von Salz durch eindringendes Wasser möglich wären; in diesem Fall würde sich eine gesättigte Salzlauge bilden, die schwerer als Wasser ist (Dichte 1,2 - 1,3). Als Transportmedium aus einer Lagerstätte für radioaktive Abfälle aus einigen hundert Meter Tiefe kommt im wesentlichen nur Grund- bzw. Tiefenwasser in Frage. In Abbildung 1 sind schematisch verschiedene Sicherheitsbarrieren dargestellt, die eine Freisetzung radioaktiver Abfälle verhindern.

Die erste Sicherheitsbarriere besteht aus dem verfestigten radioaktiven Abfall. Der radioaktive Stoff ist in Stahlbehältern mit Bindemitteln (z. B. Bitumen, Zement, Glas) fixiert. Teilweise liegen die radioaktiven Stoffe in einer Form vor, die in den betrachteten Zeiträumen als fast unlöslich bezeichnet werden können (z. B. Aktivierungsprodukte). Die Fixierung bei hochaktiven Abfällen in Gläsern ist so gut, daß nur ein geringer Bruchteil bis zum Zerfall der Masse der Spaltprodukte überhaupt in Wasser bzw. Salzlauge gelöst werden kann.

Die zweite Sicherheitsbarriere besteht aus dem einige hundert Meter dichten Salzgestein. Am Ende der Einlagerung werden alle Hohlräume mit Salz oder einem anderen Versatzstoff gefüllt,

um einen Zustand des Gebirges wieder herzustellen, der möglichst dem ursprünglich vorhandenen nahe kommt. Auch alle Zugänge zu den radioaktiven Abfällen, wie Strecken, Schächte, Bohrungen, usw., werden verfüllt. Der Salzstock selbst wird von wasserundurchlässigen Schichten abgedichtet; diese bilden die äußere Schutzhülle gegenüber den Deckgebirgsschichten.

Die dritte Sicherheitsbarriere bilden einige hundert Meter Deckgebirgsschichten zwischen dem Salzstock und der Erdoberfläche. Falls radioaktive Stoffe tatsächlich aus dem Salzgestein in die Deckgebirgsschichten gelangen sollten, müßten diese dort noch einige hundert Meter Deckgebirgsschichten überwinden, um an die Erdoberfläche zu gelangen. Zwischen den verschiedenen Tiefenwasserschichten findet nur ein sehr geringer Austausch statt, da keine nach oben gerichtete Strömung vorhanden ist. In den Gesteinsschichten kann man außerdem mit einer Adsorption der radioaktiven Stoffe rechnen, da die Gesteine ähnlich wie ein Filter wirken, von dem die radioaktiven Stoffe festgehalten und nur sehr langsam wieder freigegeben werden.

Aus diesen allgemeinen Sicherheitsüberlegungen, die für einen bestimmten, als Endlager vorgesehenen Salzstock im einzelnen konkretisiert werden müssen, ergibt sich, daß es nicht möglich ist, daß radioaktive Stoffe in nennenswertem Umfang in die Biosphäre gelangen.

Aus diesem Sicherheitsbarrierenmodell kann man auch das für eine Tieflagerung radioaktiver Stoffe notwendige Forschungs- und Entwicklungsprogramm ableiten.

Aus der dritten Sicherheitsbarriere, den Deckgebirgsschichten, ergibt sich die Notwendigkeit, die Wasserverhältnisse um einen wege kennen zu lernen. Dazu müssen die Grund- u. Tiefenwasserverhält-

nisse in der Umgebung eines Endlagersalzstockes eingehend studiert werden. In der Umgebung des Salzbergwerkes Asse wurden im Rahmen des hydrogeologischen Forschungsprogrammes etwa 20 Bohrungen niedergebracht. Es werden laufend hydrologische Messungen durchgeführt, um die Grundwasserverhältnisse zu erkunden und zu überwachen.

Die zweite Sicherheitsbarriere, der Salzstock, muß ebenfalls genau erkundet werden, wobei die Eigenschaften der verschiedenen vorkommenden Salzarten eingehend untersucht werden müssen. Für die Einlagerung großer Mengen hochradioaktiver Gläser ist das Verhalten des Salzes bei Wärmezufuhr besonders wichtig; außerdem muß das Gesamtverhalten des Salzstockes bei großer Wärmezufuhr im Verlauf der ersten Jahrzehnte nach der Einlagerung erforscht werden.

Auf die erste Sicherheitsbarriere, den verfestigten radioaktiven Abfall wird sehr viel Mühe verwandt, wie z. B. die Veranstaltung dieses Tages zeigt. Auch bei den wichtigen hochradioaktiven Gläsern verfügt man bereits heute über Verfahren im Labor- und im technischen Maßstab, bei denen man alle wichtigen Parameter variieren kann, um ein gutes, wenig auslaugfähiges Endprodukt zu erhalten.

Diese grundsätzlichen Überlegungen führten dazu, daß in Deutschland 1964, auf Empfehlungen der Bundesanstalt für Bodenforschung (jetzt BGR) mit den Arbeiten zur sicheren Lagerung von radioaktiven Stoffen im Salzgestein begonnen wurde.

3. Wesentliche bisherige Ergebnisse

GfK und GSF arbeiten seit 1964 bei der Tieflagerung radioaktiver Abfälle im Salzbergwerk Asse zusammen, wobei eine Arbeitsteilung bestand, nach der von der GfK vor allem kerntechnische und von der GSF geowissenschaftliche und bergtechnische Fragen bearbeitet wurden.

Seit 1967, also nunmehr seit 10 Jahren, werden in der Versuchsanlage Asse großtechnische Einlagerungsversuche mit echten Abfällen durchgeführt, die zum Ziel haben, die Einlagerungstechnologie zu erproben, um sie beim Bau von Endlagern anzuwenden. Die wesentlichen Ergebnisse dieser zehnjährigen großtechnischen Versuche und ihre Erfahrungen lassen sich wie folgt zusammenfassen:

1. Umrüstung eines stillgelegten Salzbergwerkes in eine Versuchsanlage für die Einlagerung radioaktiver Abfälle

Hierfür waren zunächst die Herrichtung des Bergwerkes, einschließlich der oberirdischen Gebäude, die Sicherung des Schachtes durch Einbau einer Vorbausäule und die Herstellung eines modernen Transportsystems in der Grube, erforderlich. Diese Maßnahmen haben ca. 35 Mio DM gekostet. Das Salzbergwerk Asse besaß ursprünglich nur einen Schacht. Ein zweiter Schacht wurde in Verbindung mit der Prototypkavernenanlage als Bohrschacht geschaffen. Hierfür werden bis zur Fertigstellung 1979 ca. 50 Mio DM aufgewendet werden. Erwähnt werden soll auch noch der Bau eines Anschlußgleises an das Bundesbahnnetz, der 1978 abgeschlossen sein wird, um die angrenzenden Bundes- und Landstraßen von den Schwerttransporten zu entlasten. Die Gesamtbauinvestitionen des Bundes in die Versuchsanlage Asse werden sich nach Fertigstellung all dieser Baumaßnahmen auf ca. 100 Mio DM belaufen, wofür als Gegenwert eine universell verwendbare Versuchsanlage zur Verfügung steht.

2. Zehn Jahre Erfahrung mit der Einlagerung schwachradioaktiver Abfälle

Seit 1967 werden schwachradioaktive Abfälle in verschiedenen Versuchsphasen in das Salzbergwerk Asse eingelagert. Zunächst wurde eine Kammer mit Fässern gefüllt, die in vier Lagen stehend übereinander gestapelt wurden, mit Kontroll-

gängen dazwischen. Im nächsten Versuch wurden Fässer liegend bis unter die Decke der Kammer eingelagert. Im letzten Versuch wurden Fässer aus einem Schaufellader abgekippt und danach mit Salz verfüllt, so daß sich Lagen von Fässern - Salz - Fässern - Salz abwechseln. Das nächste Ziel ist die Einlagerungskammer völlig zu verfüllen.

Als Nebeneffekt wurde ein Großteil der in der Bundesrepublik angefallenen schwachradioaktiven Abfälle als Versuchsmasse bei diesen Versuchseinlagerungen beseitigt, sofern die Abfälle den Einlagerungsbedingungen entsprachen.

3. Fünf Jahre Erfahrung mit der Einlagerung mittelradioaktiver Abfälle

Fässer mit mittelradioaktivem Abfall müssen wegen der hohen Dosisleistung in Abschirmbehältern transportiert und manipuliert werden. Hierzu mußte ein Abschirm- und Transportsystem vom Entstehungsort bis zum Bergwerk entwickelt werden. Neben Einzelbehältern wurden aus Kostengründen auch Mehrfachbehälter entwickelt. Aus dem 5 bzw. 10 t Abschirmbehälter heraus wird das genormte 200 l-Abfallfaß in eine spezielle allseits dicht abgemauerte, nicht begehbare Lagerkammer abgesenkt.

4. Entwicklung von Einlagerungsbedingungen

Für schwach- und mittelradioaktive Abfälle wurden spezielle Einlagerungsbedingungen für die Versuchsanlage Asse entwickelt. Während mittelradioaktive Abfälle nur in genormten 200 l-Fässern angenommen werden können, gibt es für schwachradioaktive Abfälle verschiedene Behältertypen (200 l-, 400 l-Fässer, betonummantelte 200 l-Fässer, sogenannte verlorene Betonabschirmungen, um die Dosisleistung an der Oberfläche für das Bergwerkspersonal zu verringern). Der Inhalt der Fässer muß verschiedenen Anforderungen genügen, die in den jeweils gültigen Einlagerungsbedingungen festgelegt sind. Es werden nur feste Abfälle angenommen,

flüssige, gär-, faulfähige und explosible Stoffe sind ausgeschlossen. Außerdem gibt es für verschiedene Radionuklide (z. B. gasförmige, α -Strahler und Kernbrennstoffe) besondere Bedingungen.

Für die Annahme der radioaktiven Abfälle sind Kosten zu entrichten. Die Annahmebedingungen zusammen mit der Kostenregelung haben es möglich gemacht, daß die Belegschaft des Salzbergwerkes Asse die Abfallbehälter gefahrlos, ohne nennenswerte Dosisbelastung handhaben kann, da eine hohe Dosisleistung der Behälter einen wesentlich höheren Preis erforderlich macht.

5. Bau einer Prototypkavernenanlage für schwach- und mittelradioaktive Abfälle

Um von dem komplizierten Umlademechanismus, insbesondere der mittelaktiven Abschirmbehälter wegzukommen, wurde Anfang der 70er Jahre der Entschluß gefaßt, eine Kavernenanlage zu bauen, bei der die Abfallfässer direkt, ohne Abschirmung von übertage bis in etwa 950 m Tiefe transportiert werden. Innerhalb des Kavernenhohlraumes, der die Form eines Rotationsellipsoides hat, fallen die Abfallfässer dann zu Boden. Die Anlage ist derzeit in der Endmontage.

6. Versuche zur Wärmeausbreitung für spätere Versuche mit hochaktiven verglasten Abfällen

Versuche mit elektrischen Erhitzern zur Simulation der Wärmeentwicklung von hochaktiven Gläsern in sogenannten Temperaturversuchsfeldern wurden durchgeführt, deren Ergebnisse mit theoretischen Wärmeberechnungen verglichen wurden. Eine gute Übereinstimmung zwischen Theorie und Praxis konnte festgestellt werden.

Außerdem wurden Untersuchungen zum Verhalten von Bohrlöchern im Salz bei hohen Temperaturen vorgenommen.

7. Befürwortung des Endlagerkonzeptes durch RSK und SSK

Die Befürwortung des Konzeptes eines Endlagers im Salzstock Gorleben durch die Reaktorsicherheitskommission und die Strahlenschutzkommission erfolgte auch unter Hinweis auf den langjährigen Versuchs- und Demonstrationsbetrieb im Salzbergwerk Asse.

Dies sollte eine kurze Zusammenfassung der wesentlichen Ergebnisse der letzten Jahre sein.

4. Gründung der Entwicklungsgemeinschaft Tieflagerung

GfK und GSF haben im Hinblick auf die zunehmende Bedeutung der Entwicklung von Methoden zur sicheren Endlagerung radioaktiver Abfälle beschlossen, ihre bisherige Zusammenarbeit auf diesem Gebiet zu formalisieren und sich zur Durchführung eines gemeinsamen FE-Programmes als "Entwicklungsgemeinschaft Tieflagerung radioaktiver Abfälle (EGT)" zusammenschließen. Hierdurch sollen die wissenschaftlichen und technischen Voraussetzungen für die Errichtung und den Betrieb von Bundesendlagern für radioaktive Abfälle durch die Physikalisch-Technische Bundesanstalt, Braunschweig, innerhalb eines abgestimmten Fristenplans geschaffen werden.

Nach Zustimmung der verschiedenen Aufsichtsgremien wird noch in diesem Jahr der Vertrag über die "Entwicklungsgemeinschaft Tieflagerung" abgeschlossen werden. Bevor ich nun auf Organisation, Aufbau und Struktur dieser Arbeitsgemeinschaft eingehe, möchte ich Ihnen anhand eines Bildes zeigen, wieviele Mitarbeiter in den letzten Jahren zur Lösung dieser wichtigen Probleme tätig waren (Abb. 2).

Wie Sie aus der Abbildung entnehmen können, waren bis 1975 nicht einmal 30 Mitarbeiter mit FE-Aufgaben beschäftigt;

hinzu kommen 50 Mitarbeiter, die den Betrieb und die Bau-
maßnahmen des Salzbergwerkes Asse durchführen. Seit 1975 ist
ein Personalzuwachs auf Zeitvertragsbasis durch die Übernahme
von Forschungsaufträgen festzustellen. Um alle an uns herange-
tragenen Terminwünsche rechtzeitig erfüllen zu können, wäre
es erforderlich, das Personal entsprechend der obersten Kurve
aufzustocken. In dieser Kurve sind auch erforderliche fremde
FE-Aufträge sowie notwendiges Personal für die Infrastruktur
mit enthalten.

Wie man hieraus unschwer ersehen kann, klafft eine bedeutende
Lücke zwischen dem erforderlichen und dem tatsächlich vorhande-
nen Personal. Wir glauben, daß wir in einigen Jahren über eine
diesem wichtigen Problem entsprechende Mannschaft verfügen
werden, um den größten Teil der anstehenden Aufgaben zu bear-
beiten. Ich möchte mit diesem Bild nicht erreichen, daß sich
der Geldgeber angegriffen fühlt, sondern ihn eher ermuntern,
auf einem so wichtigen Gebiet mehr und schneller etwas zu tun,
als in der Vergangenheit.

Bevor ich zum künftigen FE-Programm komme, möchte ich Ihnen
in Abb. 3 einen Überblick über den Organisationsaufbau der
Entwicklungsgemeinschaft Tieflagerung geben. Der wissenschaft-
lich-technische Beirat soll die EGT insbesondere beim FE-Pro-
gramm beraten.

5. Künftiges FE-Programm der EGT

1. Betrieb des Salzbergwerkes Asse als Versuchsanlage.

Durchführung von Versuchseinlagerungen und Betrieb
von Versuchsfeldern zur Komponentenerprobung, z. B.
Wärmeversuche, Verhalten von Bohrlöchern,
Durchführung der Umgebungsüberwachung, insbesondere
des hydrogeologischen Meßprogrammes zur Erforschung
der Grundwasserverhältnisse an dem Salzstock Asse,
als Modelluntersuchung für spätere Endlager an anderen
Stellen.

2. Entwicklung, Erprobung und Demonstration von Methoden und Verfahren für eine sichere Endlagerung radioaktiver Abfälle in Salzformationen.

2.1 Weiterentwicklung und Optimierung von Einlagerungsverfahren für schwach- und mittelradioaktive Abfälle. Dies bedeutet z. B.:

- Verminderung der Dosisbelastung des Betriebspersonals,
- Auswahl geeigneter Materialien zur Verfüllung der Hohlräume zwischen den Fässern (Zwickelfüllung),
- Sicherer Endverschluß von Kammern und Sohlen,
- Prüfung der Eignung verschiedener Fixierungsmaterialien,
- Erprobung der für das Endlager im Entsorgungszentrum vorgesehenen Lagermethoden, (Form der Kammer, u. ä.)
- Prüfung der Möglichkeiten, spezifische Abfälle an besonders hergerichteten Lagerorten zu lagern.

2.2 Bau einer neuen Einlagerungskammer für mittelradioaktive Abfälle.

Unter weitgehender Berücksichtigung der bisher gemachten Erfahrungen soll eine neue Einlagerungskammer mit allen technischen Einrichtungen gebaut werden. Hiermit soll eine im Endlagerbergwerk des Entsorgungszentrums einsetzbare Methode entwickelt werden, wobei von Anfang an die Verfülltechnik mit erprobt werden soll.

2.3 Prototypkavernenanlage im Salzbergwerk Asse.

Die jetzige Einlagerungstechnik für mittelradioaktive Abfälle in der Versuchsanlage Asse hat den Nachteil eines stark begrenzten Durchsatzes, da jedes Faß mit seinem Abschirmbehälter einzeln über den Hauptschacht nach untertage und dort bis zur Lagerkammer transpor-

tiert werden muß. Nach der Einlagerung des Abfallfasses muß der Abschirmbehälter auf gleiche Weise wieder zurückbefördert werden.

Bei der neuen Einlagerungstechnik, die in der Prototypkavernenanlage erprobt werden soll, werden die Fässer übertage aus ihrer Abschirmung ausgeschleust, durch einen eigenen Förderschacht bis zur Lagerkaverne gefördert und dort abgeworfen. Diese neue Einlagerungstechnik muß im Hinblick auf Sicherheit, Zuverlässigkeit und Wirtschaftlichkeit im technischen Maßstab getestet werden. Dabei wird das Versuchsprogramm in mehreren Stufen - Funktionsprüfungen, inaktiver Betrieb, Verwendung von schwachaktiven, danach von mittelaktiven Abfällen - durchgeführt werden.

Zur Beschaffung der für die Auslegung von späteren Kavernenprojekten an anderen Standorten notwendigen Daten und zur Überwachung der eingelagerten Abfälle sind geeignete Meß- und Überwachungsprogramme zu erstellen und durchzuführen.

2.4 Absenkung von mittelradioaktiven Abfällen in Bohrlöchern (sogenannte AVR-Einlagerung).

- Erprobung einer Einlagerungstechnologie, bei der mittelradioaktive, in Stahlbehältern verpackte Abfälle mit hohen Aktivitätswerten jedoch noch ohne Wärmeentwicklung nicht in Kammern oder Kavernen, sondern in Bohrlöchern eingebracht werden;
- Untersuchung des Langzeitverhaltens des Steinsalzes und der Stahlbehälter bei hoher Strahleneinwirkung;
- Überprüfung des Druckverhältnisses in den Lagerbohrungen und der Standfestigkeit der Bohrlöcher, sowie deren Versiegelung;

- Erprobung der Einlagerungstechnik und Überprüfung der Übertragbarkeit auf zukünftige Endlagerungsvorhaben.

2.5 Vorbereitende Versuche für hochradioaktive Abfälle
Bisher wurde bereits in mehreren Temperaturversuchsfeldern die Wärmeentwicklung hochradioaktiver Abfälle durch elektrische Erhitzer simuliert. Die Übereinstimmung mit theoretischen Berechnungen war zufriedenstellend.

Seit 1976 können diese Arbeiten durch einen Vertrag mit den Europäischen Gemeinschaften verstärkt durchgeführt werden.

Das weitere FE-Programm sieht vor, später, nach Klärung aller Parameter, eine Anzahl stahlummantelter, hochradioaktiver Gläser in z. T. verrohrten Lagerbohrungen in rückholbarer Form während eines längeren Zeitraumes (ca. 10 Jahre) zu lagern.

Technische Geräte und Einrichtungen für Transport und Einlagerung, Kontroll- und Überwachungsgeräte müssen erprobt und später im aktiven Betrieb demonstriert werden. Außerdem soll der Nachweis erbracht werden, daß sich das Gesamtsystem (Abfälle, Bohrlochausstattung und umgebendes Salz) entsprechend der Vorhersage verhält.

Folgende Parameter müssen vorerst noch ermittelt werden:

- Folgeerscheinungen von Strahlung und Wärmefreisetzung im Salz
- Erprobung aller technischen Geräte und Anlagen
- Projektierung eines Versuchsfeldes
- Sicherheitsstudien für eine Genehmigung

Ziel ist, Anfang bis Mitte der 80er Jahre einen ersten aktiven Versuch mit Gläsern durchzuführen, um auch für diese Abfälle dem Endlagerbergwerk im Entsorgungszentrum eine Modellösung anbieten zu können.

2.6 Verfestigung und Lagerung radioaktiver Abfälle in untertägigen Hohlräumen.

Ein Verfahren für die behälterlose Einlagerung und Verfestigung von in flüssiger Form anfallenden schwach- und mittelradioaktiven Abfällen in untertägigen Hohlräumen eines Salzstockes soll entwickelt werden.

Hierzu müssen gebirgsmechanische, kerntechnische und sicherheitstechnische Fragen in Theorie und Praxis geklärt werden.

3. Entwicklung von Methoden und Verfahren für die Endlagerung radioaktiver Abfälle in nicht salinaren geologischen Formationen.

3.1 Beurteilung der Eignung der Schachtanlage Konrad.

In einer Studie soll bis Ende 1979 festgestellt werden, ob das stillgelegte Eisenerzbergwerk Konrad auf Grund seiner geologischen und bergtechnischen Gegebenheiten mit einem vertretbaren Aufwand zur Endlagerung radioaktiver Abfälle geeignet ist und die erforderliche langfristige Sicherheit bietet. Die einlagerbaren Abfälle sind zu definieren.

3.2 Beseitigung tritiumhaltiger Abwässer in porösen Speichergesteinen.

Demonstration eines einfachen und sicheren Verfahrens zur Beseitigung von tritiumhaltigen Abwässern durch ihre Einleitung in isolierte poröse Speichergesteine des tiefen geologischen Untergrundes, am Beispiel einer erschöpften Erdöllagerstätte.

4. Erarbeitung von sicherheitstechnischen Anforderungen an Abfälle und Endlager

4.1 Quantitativer Anforderungskatalog für Abfallprodukte. Quantitative Festlegung der Anforderungen an die Qualität der Abfälle in Abhängigkeit von den Gegebenheiten der Versuchsanlage Asse. Übertragung der Ergebnisse auf das Endlager im Entsorgungszentrum.

4.2 Entwicklung von Meßsystemen zur Produkteingangskontrolle.

Entwicklung geeigneter Kontrollsysteme zur Überprüfung der Angaben über die zur Versuchseinlagerung angelieferten Abfälle.

Dies war eine sehr kurz gefaßte Darstellung der Aufgaben der nächsten Zukunft, die alle zum Ziel haben, für das geplante Endlagerbergwerk im Entsorgungszentrum rechtzeitig geeignete Methoden zur Verfügung zu stellen.

6. Künftige Aufgabenstellung der Versuchsanlage Asse und Zusammenarbeit mit anderen Stellen

Durch das 4. Gesetz zur Änderung des Atomgesetzes (AtG) vom 01.09.1976 sind für das Salzbergwerk Asse einige zusätzliche Probleme entstanden.

In § 23 AtG wird die Physikalisch-Technische Bundesanstalt als die für die Endlagerung zuständige Stelle benannt. Außerdem ist für ein Endlager gemäß § 9b ein Planfeststellungsverfahren erforderlich.

Einige Bürger haben im August vor dem Verwaltungsgericht Braunschweig gegen die Einlagerung von 100 Stahlbehältern mit jeweils 1 000 AVR-Brennelementgraphitkugeln in 4 Bohrlöchern im Salzbergwerk Asse ein Verwaltungsgerichtsverfahren beantragt, mit dem Ziel, daß noch ein Planfeststellungsverfahren nach

§ 9b AtG durchgeführt werden soll. Das Gericht hat den Antrag auf Erlass einer einstweiligen Anordnung abgelehnt. Inzwischen wurde gegen die gültige Einlagerungsgenehmigung Widerspruch beim Bergamt eingereicht. Ein längeres Verfahren ist abzusehen. In Übereinstimmung mit dem Bundesminister des Innern sind wir jedoch der Ansicht, daß die von GSF und GfK im Salzbergwerk Asse durchgeführten FE-Arbeiten nach wie vor keines Planfeststellungsverfahrens bedürfen und von der Neuregelung nicht betroffen sind, weil die Versuchsanlage Asse kein Endlager nach dem AtG ist.

Auf einige wichtige Unterschiede zwischen der Forschungs- und Entwicklungstätigkeit der GSF und dem Auftrag der PTB nach dem Atomgesetz wird in der Abbildung 4 hingewiesen.

Mit der PTB, als der für Endlager zuständigen Stelle, arbeiten wir eng zusammen.

Die EGT bemüht sich weiterhin, die Zusammenarbeit im nationalen und internationalen Bereich gut zu gestalten.

Die Abstimmung im nationalen Bereich geschieht durch:

1. Abstimmung des FE-Programmes durch den wissenschaftlich-technischen Beirat.
(BMFT, BMI, PTB, BGR, INDUSTRIE, Sonstige)
2. Zusammenarbeit mit den Forschungszentren.
(GfK, KFA, HMI)
3. Verträge mit großen Abfallerzeugern.
(Kernkraftwerken, Sammelstellen, Kerntechnische Industrie)
4. Verträge zur Durchführung des FE-Programmes.
(speziell bei hochradioaktiven Abfällen)

Im internationalen Bereich besteht ein allgemeiner wissenschaftlicher Erfahrungsaustausch. Mit den Europäischen Gemein-

schaften ist das Forschungsprogramm ebenfalls abgestimmt, da speziell zur Einlagerung hochaktiver Abfälle im Salz ein Forschungsvertrag abgeschlossen ist.

Im Rahmen des Europäischen Forschungsprogrammes auf dem Gebiet der Tieflagerung radioaktiver Abfälle wurde folgende Arbeitsteilung vorgenommen:

	Lagermedium
Deutschland	Salz
Holland	Salz
Italien	Ton
Belgien	Ton
Frankreich	Granit
England	Granit

Mit den USA und Kanada besteht ebenfalls ein intensiver Erfahrungsaustausch, der mit den USA in einem Zusammenarbeitsvertrag zwischen US-ERDA und BMFT geregelt ist.

7. Schlußbemerkungen

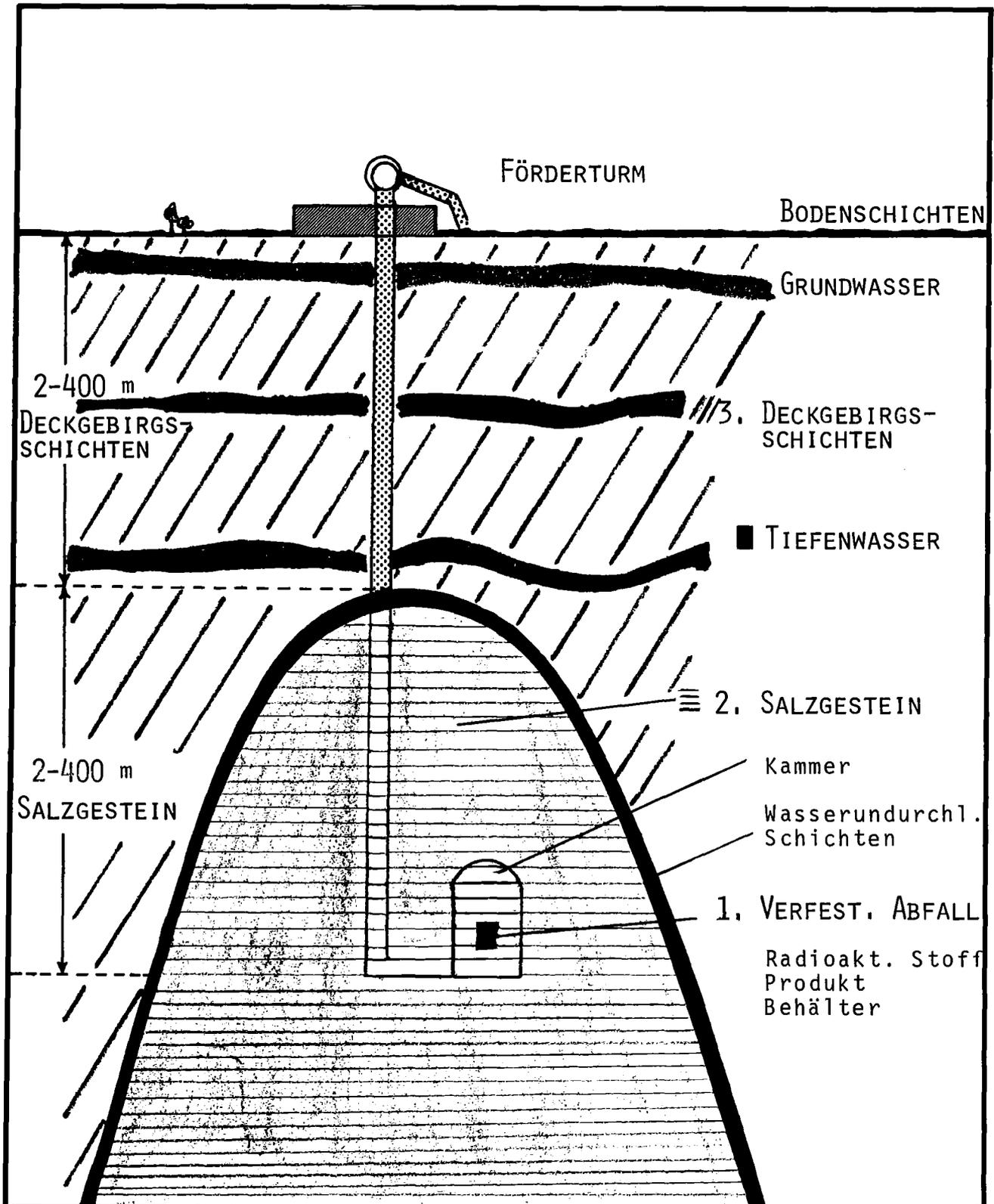
Wir glauben, daß wir durch die organisatorische Zusammenfassung der Aktivitäten von GfK und GSF auf dem Gebiet der Methodenentwicklung zur sicheren Endlagerung radioaktiver Abfälle in der EGT einen entscheidenden Schritt getan haben, um dieses wichtige Ziel rechtzeitig erreichen zu können.

Wir sind überzeugt, daß wir auch Erfolg haben werden und bitten Sie, uns dabei zu unterstützen.

Der Dank für das bisher Erreichte gebührt zuerst unseren Mitarbeitern, die in den vergangenen Jahren, teilweise in einer "Außenseiterposition", als das Problem der radioaktiven Abfälle noch nicht so aktuell war wie heute, Wertvolles geleistet haben.

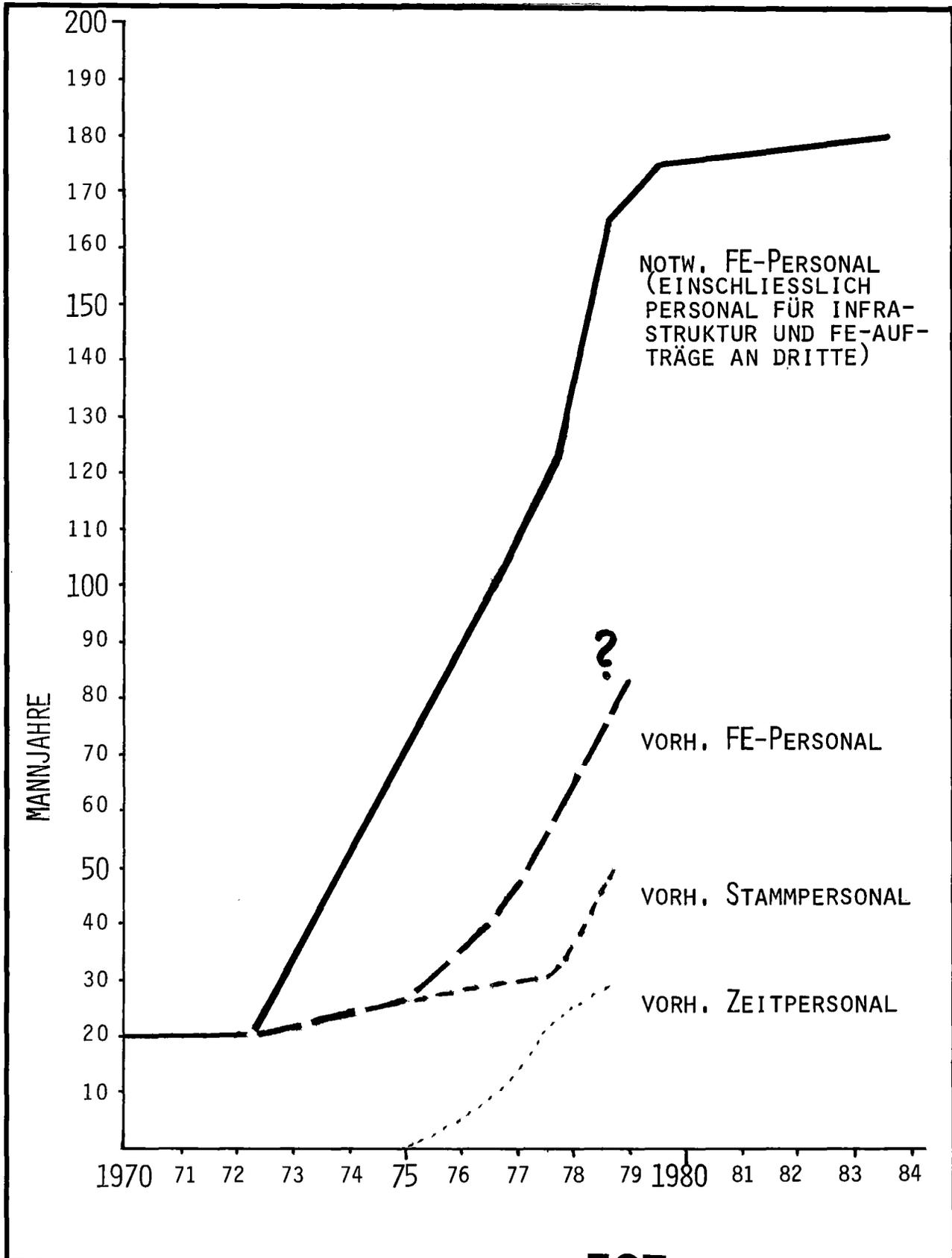
Die Behörden, hier besonders das Bergamt Goslar und das Oberbergamt Clausthal-Zellerfeld, haben uns immer fair behandelt, wofür ich Ihnen an dieser Stelle einmal öffentlich danken möchte.

An die Adresse des Geldgebers Bund richtet sich meine Bitte, uns auch materiell und personell so auszustatten, daß wir in die Lage versetzt werden, unsere erweiterte Aufgabenstellung erfüllen zu können.



EGT

<p>GSF+GfK 2 - 77</p>	<p>SICHERHEITSBARRIEREN VERHINDERN FREISETZUNG RAD. STOFFE IN DIE BIOSPHERE</p>	<p>ENTWICKLUNGSGEM. TIEFLAGERUNG Abbildung 1</p>
---------------------------	---	--

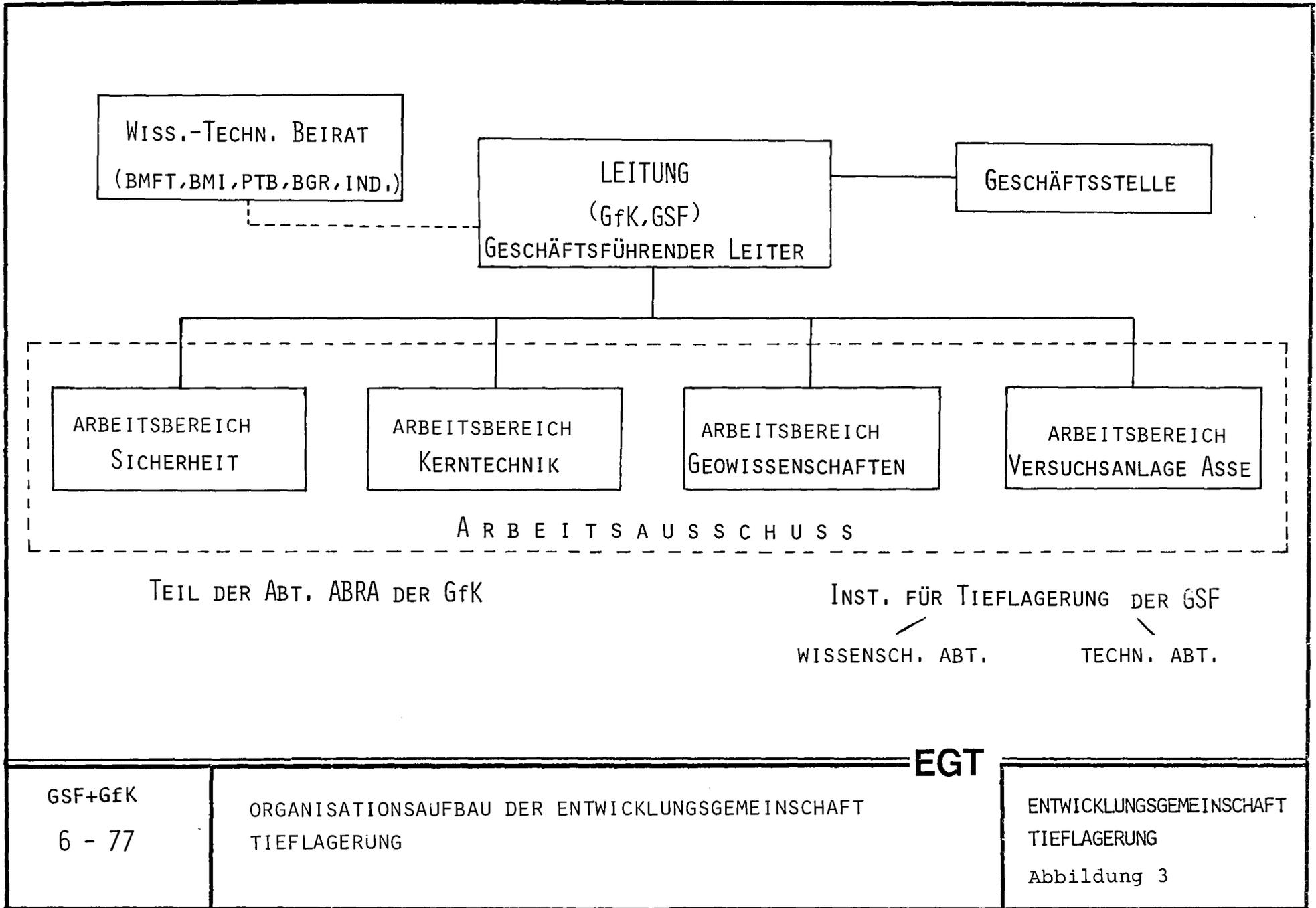


EGT

GSF+GfK
3 - 77

FÜR FE-ARBEITEN ZUR TIEFLAGERUNG ERFORDERLICHES PERSONAL IM VERGLEICH ZUM VORHANDENEN PERSONAL (ohne 50 Mann Betriebspersonal für Versuchsanlage Asse)

ENTWICKLUNGSGEM. TIEFLAGERUNG
Abbildung 2



AUFGABENSTELLUNG BETREIBER	VERSUCHSANLAGE ASSE GSF	ENDLAGER (Z.B. GORLEBEN) PTB
GESETZLICHE GRUNDLAGEN	StrlSchV	§ 9 AtG UND StrlSchV
ZUSTÄNDIGKEIT: BUND LAND GENEHMIGUNGS- BEHÖRDE	BMFT NIEDERS. WIRTSCHAFTSMINISTER BERGBEHÖRDE	BMI (+ BMFT) NIEDERS. SOZIALMINISTER
TÄTIGKEIT	METHODENENTWICKLUNG FÜR SICHERE EINLAGERUNG RADIOAKTIVER ABFÄLLE	ROUTINEMÄSSIGE INDUSTRIELLE ENDLAGERUNG NACH BEWÄHRTEN METHODEN
ABNAHMEPFLICHT FÜR RAD. ABFÄLLE (MENGE UND ART)	NEIN NUR IM AUSMASS DES FE-PROGR. WERDEN RAD. ABF. BENÖTIGT	JA ALLE RADIOAKT. ABFÄLLE

EGT

GSF+GfK 7 - 77	ABGRENZUNG DER TÄTIGKEIT DER GSF IM SALZBERGWERK ASSE VOM GESETZLICHEN AUFTRAG DER PTB NACH DEM ATOMGESETZ	ENTWICKLUNGSGEMEINSCHAFT TIEFLAGERUNG Abbildung 4
-------------------	---	---

KEWA Kernbrennstoff-Wiederaufarbeitungs-Gesellschaft m. b. H. Leopoldshafen, den 17. Nov. 1977
WI/as/77/1117c

2. Statusbericht des Projektes Wiederaufarbeitung und
Abfallbehandlung der Gesellschaft für Kernforschung
am 18. November 1977

Auslegungsstörfälle in den Einrichtungen des Entsorgungszentrums und die geplanten Maßnahmen zu ihrer Beherrschung

W. Issel, K.P. Schulze, KEWA

Sehr geehrte Damen und Herren!

In meinem Vortrag möchten wir die Frage

"Ist Sicherheitstechnik und Störfallbeherrschung in einer großen Wiederaufarbeitungsanlage eine Aufgabe für das Forschungs- und Entwicklungsprogramm?"

etwas betrachten.

1. Sicherheitstechnische Fragen im Forschungs- und Entwicklungsprogramm

Zunächst möchte ich auf zwei Fragen eingehen, die sich bei der Formulierung eines F+E-Vorhabens bzw. bei der Beurteilung von F+E-Arbeiten immer wieder stellen und zwar auf die erste Frage:

1.1 Genehmigungsfähigkeit entwickelter Prozesse

Ist das von der Entwicklungsseite für projektbezogene F+E-Arbeiten vorgeschlagene Konzept überhaupt genehmigungsfähig, d.h. besteht überhaupt eine Realisierungsmöglichkeit für das angestrebte Ergebnis?

Hierzu stellt sich natürlich sofort die Frage, welches sind die Kriterien für die Genehmigungsfähigkeit. Daß diese Frage nur sehr schwer vollständig zu beantworten ist, zeigen die heute laufenden langwierigen Genehmigungsverfahren.

Zur Genehmigung eines kerntechnischen Bauprojektes ist eine Sicherheitsbetrachtung erforderlich bzw., wie leider immer wieder bevorzugt ausgedrückt, eine Störfallbetrachtung.

Es erscheint daher sinnvoll, in jegliche projektbezogenen F+E-Vorhaben möglichst frühzeitig die sicherheitstechnischen Anforderungen einfließen zu lassen, bzw. störfallbezogene Vergleiche und Bewertungen anzustellen, um Störfälle weitestgehend auszuschließen, so daß das entwickelte Verfahren nach Vorliegen entsprechender Resultate in die Genehmigungspraxis übernommen werden kann.

1.2 Verbesserung der Genehmigungsfähigkeit des Projektes

Eine weitere Frage stellt sich bei F+E-Vorhaben, die speziell dem Zweck der Verbesserung der Sicherheitstechnik und Störfallbeherrschung dienen, und zwar:

1.2.1 Anpassung der F+E-Arbeiten an die Planung

Ist das ausgewählte F+E-Vorhaben den Fragen zur Sicherheit einer großtechnischen industriellen Anlage richtig angepaßt?

1.2.2 Vermeidung und Beherrschung von Störfällen

Können durch F+E-Vorhaben eventuell denkbare Störfälle weitestgehend ausgeschlossen und gegebenenfalls sicher beherrscht werden?

Mit beiden Fragen ist der enge Bezug zwischen den Anforderungen und Aufgaben für das F+E-Programm zu den sicherheitstechnischen Belangen in einer großen Wiederaufarbeitungsanlage deutlich hergestellt.

1.2.3 Abstimmung zwischen F+E-Arbeiten und Planung

Zur Beantwortung dieser Fragen nach Genehmigungsfähigkeit und Störfallbeherrschung sollen Betrachtungen aus genehmigungstechnischer Sicht herangezogen werden, wobei ich ihren möglichen Einfluß auf F+E-Arbeiten aufzeigen möchte. Gleichzeitig können damit Möglichkeiten zur Verbesserung der F+E-Entscheidungen abgeleitet werden.

Im Rahmen dieser sicherheitstechnisch wichtigen Überlegungen zeigt es sich immer wieder, daß die zum Bauprojekt des Entsorgungszentrums gehörenden

diese Vorsorge insbesondere dann als getroffen ansehen, wenn der Antragsteller bei der Auslegung der Anlage die Störfälle zugrunde gelegt hat, die nach den Sicherheitskriterien und Leitlinien für Kernkraftwerke die Auslegung eines Kernkraftwerkes bestimmen müssen.

Angewendet auf die Wiederaufarbeitungsanlage heißt das heute, daß für die gegen Störfallauswirkungen zu treffenden Schutzmaßnahmen solche Störfälle zugrunde gelegt werden, die von dem Gutachter als bestimmend für die Auslegung angesehen werden sollten.

Nicht angesprochen werden hier für die Festlegung der Sicherheitskriterien die probabilistischen Betrachtungen, wohl aber diejenigen sicherheitstechnischen Maßnahmen, die das Eintreten des jeweiligen Störfalles hinreichend unwahrscheinlich machen sollen.

2.1 Störfalldefinition

Allgemeinhin unterscheiden wir heute für die Planung zwei Kategorien von Störfällen, die insbesondere die Kriterien: "Auswirkungen auf den Betrieb, auf das Betriebspersonal bzw. auf die Umgebung" berücksichtigen und die sicher beherrscht werden müssen. Wir nennen die einen "anlagenbegrenzte Störfälle" und die anderen "Auslegungsstörfälle".

Als Störfälle werden somit Ereignisse bezeichnet, Abb. 2

- gegen deren Auswirkungen Schutzeinrichtungen oder redundante Schutzvorkehrungen in dem Maße vorhanden sind, daß die Folgen mit Sicherheit unterhalb bestimmter festgelegter Grenzen bleiben, eine in Grenzen erhöhte Dosisbelastung des Betriebspersonals kann jedoch nicht ausgeschlossen werden.
- bei denen Freisetzungen von Aktivität in die Umgebung auftreten, die jedoch so beschränkt werden, daß die Gesamtkörperdosis am ungünstigsten Aufpunkt unterhalb des gesetzlichen Grenzwertes von 50 mJ/kg/Störfall (5 rem/Störfall) bleibt (StrlSchV § 28(3)).
- nach deren Eintreten eine Stilllegung des betreffenden Anlagenteils aus sicherheitstechnischen Gründen mit umfangreichen Überprüfungs- und Reparaturarbeiten erforderlich werden kann.

2.2 Störfallabgrenzung

Diese Störfälle sind einerseits abzugrenzen gegenüber den Betriebsstörungen die zwar einen gegenüber dem bestimmungsgemäßen Betrieb anomalen Betriebszustand darstellen, die Folgen derartiger Betriebsstörungen sind aber im Rahmen vorhandener Reparatur- und Betriebsanweisungen beherrschbar. Auswirkungen auf den Betrieb der gesamten Anlage, das Betriebspersonal und die Umgebung treten nicht auf.

Die Abgrenzung der Störfälle hat andererseits gegenüber hypothetischen Ereignissen zu erfolgen, die jedoch auf der Basis sicherheitsphilosophischer Annahmen zu definieren wären und im Rahmen der hier betrachteten F+E-Programme keine aufgabenrelevante Rolle spielen.

3. Störfallverhinderung und -beherrschung

Für die weitere Betrachtung möchte ich die anfangs vorgenommene Trennung in der Betrachtung von einerseits Schutzmaßnahmen zur Beherrschung von Störfällen und von andererseits sicherheitstechnischen Maßnahmen, die das Eintreten eines Störfalles verhindern sollen vertiefen. Das erscheint zunächst nicht unwichtig, da sich die F+E-Arbeiten vorzugsweise mit Maßnahmen zur Vermeidung eines Störfalles befassen. Der Entwicklung der Sicherheitstechnik zur Störfallvermeidung ist von allen Beteiligten eine dominierende Rolle zugewiesen. Die Gründe dafür sind, wie sich zeigen wird, auch leicht einzusehen.

Die unter die Kategorie "Störfälle" fallenden Ereignisse werden festgelegt, einmal nach der Eintrittswahrscheinlichkeit und zum andern nach den radiologischen Auswirkungen.

Dabei sind die schädlichen Belastungen im Einzelfall als auch die Gesamtbelastung für die Auswahl entscheidend.

3.1 Störfallverhinderung

Somit ergibt sich zwangsläufig, daß zunächst durch sicherheitstechnische Vorsorgemaßnahmen die Eintrittswahrscheinlichkeit so gering wie möglich zu halten ist.

Zur Verhinderung eines Störfalleintritts sind die zahlreichen

- administrativen
- kontrollierenden und
- konstruktiven

Maßnahmen mit den daraus resultierenden Anforderungen an Material, Qualität und Zuverlässigkeit, konstruktive Ausführung und Herstellung, Meßtechniken mit entsprechenden Steuerungen und Verriegelungen, redundante Maßnahmen und Betriebsvorschriften für die maschinentechnischen und apparativen Einrichtungen sowie an die Gebäudeausführung hinreichend bekannt. Die verbliebenen Lücken und noch zu lösenden Aufgaben treten deutlich hervor und sind somit im Rahmen eines F+E-Programmes hinreichend leicht und klar definierbar.

Einige markante Beispiele aus Vergangenheit und Gegenwart der Sicherheitstechnik der großen Wiederaufarbeitungsanlage mögen dies verdeutlichen: Abb. 3

Die Anstrengungen auf dem Gebiet der Filtertechnik haben zur erfolgreichen Entwicklung und zum Einsatz von Jodfiltern geführt, zunächst in der Verfahrenseinheit der Auflöserabgasreinigung. Auch die Entwicklung von Schwebstofffiltern mit der Möglich-

keit einer Dichtheitsprüfung während des Betriebes kann als wesentlicher Beitrag zur Verbesserung der Sicherheitstechnik von Abluftreinigungssystemen angesehen werden. Die Verfahren zur Rückhaltung von Krypton über eine Teiftemperaturrektifikation befinden sich derzeit noch in der Entwicklung. Die bisherigen Vorarbeiten lassen positive Resultate erwarten, so daß dieses System in der Planung der großen Wiederaufarbeitungsanlage bereits berücksichtigt werden konnte.

Umfangreiche Daten und Berechnungen zur Kritikalität, Meßdaten zur Radiologie aus der Umgebungsüberwachung sowie die Erarbeitung von meteorologischen Ausbreitungsmodellen mit Angaben zur Dosisbelastung in der Umgebung der großen Wiederaufarbeitungsanlage sind als wesentliche Beiträge zur Sicherheitstechnik in die Planung eingeflossen. Einen bedeutsamen Platz nehmen die kontrollierenden Maßnahmen für den Umwelt- und Anlagenschutz ein.

Eine spezielle Entwicklungsaufgabe kommt hierbei den Meßgeräten und daher vor allem den in-line-Meßgeräten zu, die zur Verhinderung von Störfällen an vielen geeigneten Stellen im Prozeßsystem eingesetzt werden können. Hier sind insbesondere Neutronenmonitore zur Detektion von Spaltstoffansammlungen zu nennen.

Es ist wichtig, daß die Entwicklung von in-line-Meßgeräten konsequent fortgesetzt wird. Hierbei kommt einer meßtechnischen Abbrandbestimmung im Rahmen der Kritikalitätssicherheit der gesamten Anlage eine besondere Bedeutung zu.

Darüber hinaus sollten genauere Daten zur Bildung von Radiolyseprodukten, wie z.B. Wasserstoff und Kohlenwasserstoffe, aus radioaktiven Lösungen ermittelt werden, da die sicherheitstechnische Auslegung der Abgassysteme hierdurch optimiert werden kann. Schließlich sollte man auch die C-14-Rückhaltung im Auge behalten, auch wenn die derzeitige sicherheitstechnische Auslegung der großen Wiederaufarbeitungsanlage hiervon in der laufenden Planung keinen Gebrauch machen muß.

3.2 Störfallbeherrschung

Da nun das Eintreten des Störfalles nicht völlig ausgeschlossen wird, werden Maßnahmen zur Beherrschung des Störfalles vorgesehen. Diese Maßnahmen werden bestimmt durch den jeweiligen Störfallablauf und durch das sich im Einzelfall ergebende Modell für die Freisetzung von zur Gefährdung führenden Aktivitäten und die gegebenenfalls auftretende Direktstrahlung.

Anhand einiger bekannter Störfallmodelle möchte ich Maßnahmen zur Störfallbeherrschung aufzeigen.

Zunächst sind von außen einwirkende Störfälle mit ihren Folgewirkungen zu betrachten. Ursachen für diese Störfälle können:

- Flugzeugabsturz,
 - Erdbeben,
 - Flächenbrand und
 - Druckwellen aus einer Gaswolkenexplosion
- sein.

Abb. 4

Weiterhin möchte ich kurz auf die Ursachen einiger in der Anlage zu betrachtender Störfälle eingehen wie

- Kritikalität
- größere Leckage aus dem Prozeßbehältersystem
- Brände und Explosionen mit aktivitätsbeladenen Lösungen.

Die Sicherheitssysteme sind nun in der Weise auszulegen, daß sie den angenommenen Störfall auch dann beherrschen, wenn unabhängig vom Störfallergebnis der Ausfall einer beliebigen Komponente einschließlich Folgefehler auftritt. Dieses Kriterium muß auch während der Reparatur und Prüfung von Komponenten unter Berücksichtigung der Reparaturzeit und der erforderlichen Eingriffszeit erfüllt sein.

Welche Maßnahmen kommen nun für die geforderte Störfallbeherrschung infrage?

Zu unterscheiden ist bei der Auswahl von Maßnahmen immer, ob der Störfall direkt zu einer unzulässigen Belastung an einem repräsentativen Aufpunkt in der Umgebung führt oder aber möglicherweise daraus resultierende Folgeereignisse derartige Belastungen bewirken können.

Lassen Sie mich zur Verdeutlichung auf einige charakteristische Merkmale der genannten Störfälle und die wichtigsten Maßnahmen zu ihrer Beherrschung eingehen.

3.2.1 Störfälle durch Einwirkungen von außen

Zunächst einige Anmerkungen zu den Störfällen durch Einwirkungen von außen (EVA).

Abb. 5

Ein Flugzeugabsturz auf Gebäude ist zu betrachten, da deren Beschädigung ohne Sondermaßnahmen zu einer unmittelbaren Freisetzung von Aktivität führen könnte.

Diesem Störfall wird in der Regel durch eine flugzeugabsturzsichere Bauweise des Gebäudes begegnet, womit gewisse potentielle Schadensmechanismen von vornherein ausgeschlossen sind.

Gebäude, deren Beschädigung zu einer Beeinträchtigung sicherheitstechnisch wichtiger Systeme, wie Strom- und Wasserversorgung, meßtechnische Einrichtungen oder ähnlichem führen könnte und damit über Folgeereignisse zu Aktivitätsfreisetzungen führen würde, kann man ebenfalls durch flugzeugabsturzsichere Bauweise schützen. Eine andere Möglichkeit besteht darin, derartige Einrichtungen redundant auszuführen.

Sofern die Auswirkungen von außen nicht von lokaler Art sind, sondern global wirken, wie z.B. Erdbeben, müssen sicherheitstechnisch wichtige Gebäude und Einrichtungen direkt gegen Erdbeben ausgelegt werden, womit ebenfalls gewisse potentielle Schadensmechanismen von vornherein ausgeschlossen werden können. Ähnliche Überlegungen gelten auch für die global wirkenden Druckwellen, gegebenenfalls auch für toxische oder explosive Gase, die über Öffnungen in die Gebäude eindringen könnten.

Die Maßnahmen zur Beherrschung derartiger Einwirkungen von außen sind also insbesondere von bautechnischer Art, womit sich für das Fachgebiet der Baudynamik eine Fülle von neuen Problemen und Aufgaben stellen. So ist z.B. die Größe derartiger Gebäudekomplexe und damit die Frage der Spannweite freitragender Decken von entscheidender Bedeutung für die Anordnung der prozeßtechnischen Verfahrenslinien. Die induzierten Erschütterungen, die sich auf die empfindlichen verfahrenstechnischen Komponenten und Apparate übertragen könnten, müssen durch geeignete Maßnahmen, z.B. eine weitgehend schalenartig entkoppelte Bauweise, gedämpft werden.

Um das Eindringen toxischer oder explosibler Gasgemische in die Anlagen zu verhindern, bedarf es zunächst der Entwicklung entsprechend empfindlicher und spezifisch messender Geräte. Die Verfügbarkeit geeigneter Detektoren ist bestimmend für die zu treffenden Schutzmaßnahmen, wie z.B. Verschließen von Zuluftklappen.

3.2.2 Störfälle anlageninternen Ursprungs

Bei der Betrachtung von Störfällen anlageninternen Ursprungs (EVI) und den zu treffenden Maßnahmen zu ihrer Beherrschung war zuvor bereits gesagt worden, daß vornehmlich drei Gruppen von Störfällen hierbei zu berücksichtigen sind.

Unter die erste Gruppe fallen

- größere Leckagen im aktivitätsführenden Prozeßsystem,

als zweite Gruppe gelten

- Brände und Explosionen mit aktivitätsbelastenden Lösungen,

und in eine dritte Gruppe fallen

- Kritikalitätseignisse, d.h. die Ansammlung von Spaltstoff und Bildung einer kritischen Konfiguration.

Für alle Störfälle anlageninternen Ursprungs sind folgende Parameter zu beachten:

- Bereits vorhandene oder sich bildende Aktivität kann freigesetzt werden, z.B. aus einem Behälter aufgrund der Veränderung des Aggregatzustandes durch das Auftreten z.B. flüchtiger Nuklide oder infolge eines Brandes.
- Die Freisetzungsrates und die insgesamt freigesetzten Mengen sind hierbei von der Art und Zeitdauer der chemisch-physikalischen Voraussetzungen abhängig.
- Die Freisetzung kann grundsätzlich in die Richtungen Boden und Grundwasser sowie Atmosphäre erfolgen und unterliegt den hierfür jeweils spezifischen Ausbreitungsparametern.

Für die Beherrschung, aber auch den völligen Ausschluß dieser Störfälle sind Auslegungskriterien allgemeiner Art zu beachten. Dazu gehören:

- Ein mehrfaches Barrierenprinzip, d.h.
radioaktive Substanzen werden in mehreren unabhängig voneinander vorgesehenen Einschlüssen gelagert oder verarbeitet, z.B. Behälter für Pu-Nitrat/Prozeßzelle/Gebäudeeinschluß, ohne daß im einzelnen jeweils nach Höhe des Aktivitätsinventars oder des Gefährdungspotentials differenziert wird.
- Dazu gehören hohe Anforderungen an die Sicherung von Qualität und Zuverlässigkeit
für die Einrichtungen der Aktivitätseinschlüsse und die zugehörigen Sicherheitseinrichtungen. Die Anforderungen sind in umfangreichen technischen Regeln und speziellen Richtlinien ausführlich dargelegt.
- Für einen völligen Ausschluß potentieller Schadensabläufe können z.T. inhärente Sicherheitsvorbedingungen bei Prozeß-, Anlagen- und Gebäudegestaltung vorgesehen werden, wie z.B.
 - . Vermeidung, Reduzierung oder Vereinfachung von Transportstrecken,
 - . Kritikalitätssicherheit durch Handhabung unterkritischer Massen oder konstruktive Maßnahmen zur Verhinderung kritischer Spaltstoffansammlungen,

- . Vermeidung oder Reduzierung chemisch reaktiver Substanzen oder brennbarer Stoffe,
- . Vermeidung von hohem Druck und hohen Temperaturen in den Prozeßverfahren. Räumliche Trennung von Apparaturen von anderen Einrichtungen zur Vermeidung gegenseitiger Beeinflussung.

Anhand der postulierten Versagensmechanismen sind dann die Schadensauswirkungen hinsichtlich

- Höhe der Aktivitätsfreisetzung
- Rückwirkungen auf andere Einrichtungen
- Strahlenbelastung in Anlage und Umgebung zu betrachten.

Durch die vorgenommene Auswahl der zu betrachtenden Störfälle ist gewährleistet, daß die getroffenen Maßnahmen den gesamten Bereich der erforderlichen Störfallbeherrschung abdecken, wie an einigen wesentlichen Beispielen gezeigt werden soll:

- Größere Leckagen im aktivitätsführenden Prozeßsystem aus Behältern und Rohrleitungen werden durch die weitere direkte Umschließung, in Art einer heißen Zelle, ausgestattet mit hochwertigen Bodenwannen aus Edelstahl und angeschlossen an ein Abluftreinigungssystem beherrscht. Das Abluftreinigungssystem ist hierbei in wesentlichen Komponenten redundant ausgeführt, so daß der für die Aktivitätsrückhaltung erforderliche Mindestrückhaltefaktor erhalten bleibt.

- Brände und Explosionen im Prozeßsystem durch Druckentwicklung oder exotherme Vorgänge bei chemischen Reaktionen mit Freisetzung von radioaktiven Stoffen aus der ersten Umschließung werden als Störfall angenommen.

In diese Störfallgruppe sind Brände von Zr-Pulver und Lösungsmittelbrände einzuordnen, aber auch Explosionen von Wasserstoff-Luftgemischen oder von TBP Uranyl Nitratgemisch bei erhöhten Temperaturen. Die chemisch-physikalischen Randbedingungen für das Eintreten derartiger Störfälle sind äußerst komplex und können im Rahmen dieses Vortrages nicht behandelt werden.

Diese Störfälle werden beherrscht durch die druckfeste und auch für hohe Temperaturen geeignete Ausführung der umschließenden heißen Zellen.

Sie bestehen aus Stahlbeton mit Wandstärken von zumeist über einen Meter Dicke und sind in die baustatische Funktion der tragenden Wände und Decken eingebunden. Eine überragende Bedeutung kommt jedoch der Filtertechnik des jeweiligen Zellenabluftsystems zu, welches in ähnlicher Weise den Forderungen nach Druck- und Temperaturbeständigkeit genügen muß. Dies ist nach heutigem Kenntnisstand durch den Einsatz entsprechend ausgebildeter Sandbettfilter in verlässlicher Weise erreichbar. Mit ihren wesentlichen Eigenschaften der Temperatur- und Druckbeständigkeit, verbunden mit einem

geeigneten Mindestrückhaltefaktor, auch bei Beladung mit großen Rußmengen, sind sie in hervorragender Weise geeignet, zur Beherrschung der oben genannten Störfälle eingesetzt werden zu können. Diese Filter sind bekannt aus amerikanischen Anlagen, aber auch für deutsche Anlagen sind sie bereits vorgesehen. Ihrer weiterführenden Entwicklung als Störfallfilter sollte im Rahmen der F+E-Programme eine besondere Priorität eingeräumt werden. Der industrielle Anwender erwartet von dieser Entwicklung spezifisch einsetzbare, dem jeweiligen Anwendungszweck optimal angepaßte Sandbettfilter. Die Entwicklung derartiger Filter sollte auch Konstruktionsvorschläge, die die Handhabung und das Auswechseln einbeziehen, mit beinhalten.

Es soll auch an dieser Stelle vielleicht noch angemerkt werden, daß bei den Maßnahmen zur Störfallbeherrschung, auch für selbsterhitzende radioaktive Spaltproduktlösungen, geeignete und befriedigende ähnliche Systeme eingeplant wurden, so daß sich Betrachtungen einer sich selbst überlassenen Spaltproduktlösung erübrigen.

- Kritikalitätsereignisse können in Abhängigkeit von der Zahl der Spaltungen zur Bildung radioaktiver Spaltprodukte, die zum Teil auch flüchtig sind, sowie zu einer erheblichen γ - und Neutronenstrahlung führen. Letztere wird durch den Einschluß des Prozeßsystems in einer Heißen Zelle in den Betonwänden weitge-

hend absorbiert. Eine besondere Gefährdung des Betriebspersonals ist somit ausgeschlossen. Die entstandenen Spaltprodukte, insbesondere die flüchtigen oder in Aerosolform vorliegenden, müssen nun von dem Abgasreinigungssystem in geeigneter Weise zurückgehalten werden. Derartige Systeme bestehen daher in der Regel aus einer Hintereinanderschaltung mehrerer verschiedenartiger Filter. Als wesentliche Komponente sind Schwebstoff-Filter vorhanden, die einen erheblichen Anteil der Aktivität aufnehmen können. Der Möglichkeit des Versagens von Komponenten des Abgasreinigungssystems wird durch entsprechende redundante Auslegung begegnet.

Neben diesen wesentlichen Auslegungsstörfällen sind auch andere Störfälle für die Auslegung in Betracht zu ziehen, welche aber durch die gleichen Maßnahmen beherrscht werden können.

Darüber hinaus wird in die Störfallbetrachtung auch das Versagen von Hilfssystemen, wie z.B. Strom- oder Kühlwasserversorgung einbezogen. Die Beherrschung derartiger Versagensmechanismen erfolgt durch den Aufbau entsprechender Notsysteme, so z.B. für eine Notstromversorgung oder Notkühlwasserversorgung. Im allgemeinen sind diese Systeme mehrfach redundant vorhanden. Der totale Ausfall dieser Hilfssysteme kann somit als praktisch ausgeschlossen betrachtet werden.

4. Sicherheitstechnische Bedeutung der Forschungs- und Entwicklungsarbeiten

Wie nun diese Übersicht über Störfallverhinderung und Störfallbeherrschung zeigen sollte, sind Störfälle gegen die die Planung einer Anlage Vorkehrungen zu treffen hat, weitestgehend zu verhindern und sicher zu beherrschen.

- Forschungs- und Entwicklungsarbeiten zur Prozeßoptimierung sollten immer das Ziel haben den erreichten Stand sicherheitstechnischer Zuverlässigkeit zu erreichen oder zu verbessern, so daß sie im betrachteten Sicherheitsrahmen genehmigungsfähig sind.
- Forschungs- und Entwicklungsarbeiten zur Optimierung sicherheitstechnisch wichtiger Komponenten nehmen im Zusammenhang mit der sicherheitstechnischen Auslegung einer Anlage eine bevorzugte Stellung ein.
- Forschungs- und Entwicklungsarbeiten sollten die Kenntnisse über die Störfallablauf- und Freisetzungsmechanismen dort vertiefen, wo ein Störfall durch geeignete Maßnahmen oder bessere Kenntnisse des Vorganges völlig ausgeschlossen werden könnte und hierfür entsprechende Berechnungsmethoden und Daten ermitteln.

Abb. 5

Hierzu gehören vertiefte Kenntnisse, z.B.

- . über das Entzündungsverhalten von Zircaloy und über
- . die Entwicklung von Radiolysewasserstoff

- . über die Daten für genauere Kritikalitätsberechnungen sowie Daten über den Chemismus für die Ansammlung größerer Spaltstoffmengen oder bestimmter Spaltprodukte an bestimmten Anlageteilen. Sie sollten vervollständigt werden und letztlich könnten weiterentwickelte Meß- und Kontrollsysteme Störfalleintritt und unzulässige Folgen verhindern.

Bereits heute haben die Resultate aus den abgeschlossenen bzw. laufenden F+E-Programmen wesentlich dazu beigetragen, daß eine sicherheitstechnisch auch die hohen in der Bundesrepublik geltenden Anforderungen berücksichtigende Planung für die große deutsche Wiederaufarbeitungsanlage begonnen werden konnte.

Ein gezielt angesetztes, fortführendes F+E-Programm sollte mithelfen, daß die Genehmigung, der Bau und Betrieb der Anlage erleichtert werden.

Störfälle (Auswirkung , Ursache , Beherrschung)

2

Definition

- Schutzeinrichtungen oder redundante Schutzvorkehrungen
- Dosisbelastung des Betriebspersonals
- Freisetzung von Aktivität in die Umgebung
- Stilllegung eines Anlagenteiles aus sicherheitstechnischen Gründen

Störfälle (Auswirkung , Ursachen , Beherrschung)

Sicherheitskriterien und Leitlinien

- Einwirkungen von außen (EVA)
 - Flugzeugabsturz
 - Erdbeben
 - Druckwellen
- Einwirkungen von innen (EVI)
 - Explosionen und Brand
 - Kritikalität
 - Große Undichtheiten im Prozeßsystem

Störfälle

(**Auswirkung** ,

Ursache , Beherrschung)

Strahlenschutz - Verordnung § 28, Absatz 3, Anlage X

Körperbereich

Körperdosen
im Kalenderjahr

- | | | |
|---|---|--------|
| - Ganzkörper, Knochenmark, Gonaden, Uterus | ≅ | 5 rem |
| - Hände, Unterarme, Füße, Unterschenkel,
Knöchel einschl. der dazugehörigen Haut | ≅ | 60 rem |
| - Haut | ≅ | 30 rem |
| - Knochen, Schilddrüse | ≅ | 30 rem |
| - andere Organe | ≅ | 15 rem |

Wesentliche F & E - Arbeiten zur Sicherheitstechnik

Filtertechnik

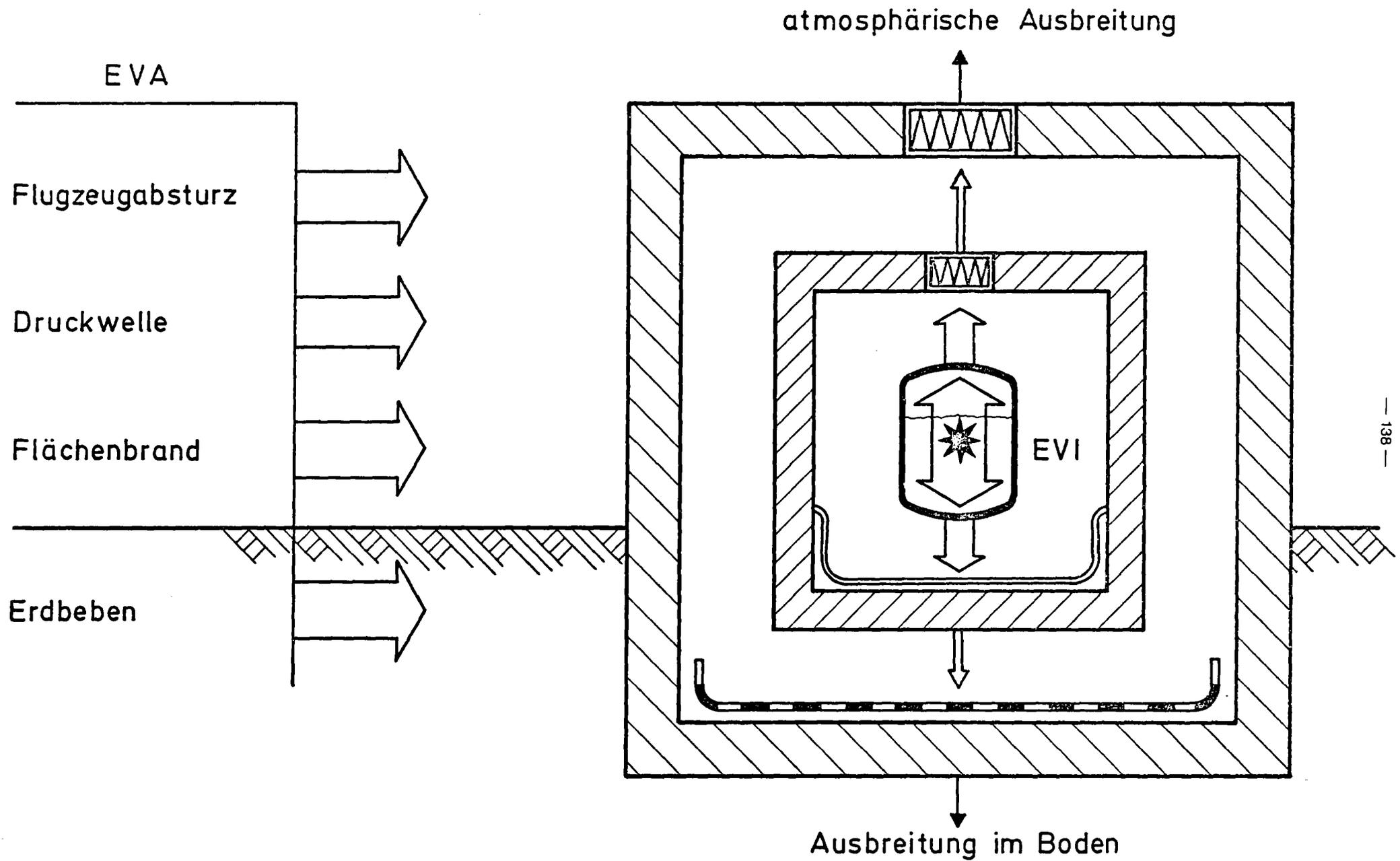
- Jodfilter
- Schwebstofffilter
- Rückhaltung von Krypton
- Sandbettfilter

Berechnungsmethoden
und Daten

- Kritikalität
- Radiolyse
- Verhalten von Zirkaloy
- Umgebungsüberwachung
- meteorologische Ausbreitung

Meßtechnik
(in - line - Meßgeräte)

- Neutronenmonitor
- Abbrandmonitor
- Detektion explosibler und toxischer Gasgemische



KEWA	Mehrschaliger Aktivitätseinschluß
-------------	-----------------------------------

Neue Ergebnisse in der Versuchsanlage MILLI aus Experimenten zur Wiederaufarbeitung von Kernbrennstoffen

W. Ochsenfeld, H.-J. Bleyl

Seit der heißen Inbetriebnahme der Versuchsanlage MILLI im Jahre 1971 sind in dieser eine Reihe von Untersuchungen zur Wiederaufarbeitung hochabgebrannter Leichtwasser- und Schnellbrüter-Kernbrennstoffe durchgeführt worden. An Brennstoffen aus dem Kernreaktor Obrigheim mit Abbränden bis zu 37000 MWd/t und Kühlzeiten bis herunter auf 250 Tagen und Schnellbrüter PuO_2/UO_2 Brennstoffen aus Dounreay mit 61000 MWd/t Abbrand wurde die Anwendbarkeit des Purex-Verfahrens für hochabgebrannte Brennstoffe nach gewissen Modifikationen des Verfahrens bewiesen.

MILLI ist eine hochabgeschirmte, geometrisch kritikalitätssichere Versuchsanlage mit einem Tagesdurchsatz von 1 kg Brennstoff pro Extraktionszyklus des Instituts für Heiße Chemie des Kernforschungszentrums. Ein Auflöser und Filter, der erste "Kodekontaminations"- und der zweite "Trennzyklus" sind in zwei heißen Zellen untergebracht. Der dritte Extraktionszyklus in einem gasdichten Handschuhkasten ist nur mehr teilweise abgeschirmt. Das Schema der Wiederaufarbeitungsversuche mit Pu/U-Trennung im 1. Extraktionszyklus zeigt Abb. 1.

Von den Ergebnissen des letzten Jahres mit UO_2 LWR- und Pu-recycle-Brennstoff möchte ich heute aus Zeitmangel schwerpunktmäßig über zwei Fragen berichten, die in letzter Zeit besonders wichtig erschienen:

1. Über die Auflösung abgebrannter, insbesondere von PuO_2/UO_2 Brennstoffen;
2. Über das Verhalten des Neptuniums im Extraktionsprozeß.

In der Fachliteratur sind keine experimentellen Daten über die Auflösung und Wiederaufarbeitung von Plutonium recycle Brennstoffen zu finden.

Über das Verhalten des Neptuniums hochabgebrannter Brennstoffe, insbesondere im 1. hochaktiven Extraktionszyklus, liegen keine Ergebnisse vor. In Fachkreisen hielt man es bisher für fraglich, ob die Spezifikationen der Endprodukte Uran und Plutonium bezüglich Neptunium erfüllt werden können.

1. Auflösung abgebrannter Brennstoffe

Aus den auf 5 cm lange Stücke geschnittenen Brennstäben wurde der Brennstoff in siedender Salpetersäure gelöst. Die Lösung wurde über Sintermetallfilter mit Porengrößen von $<14 \mu\text{m}$ oder $<1 \mu\text{m}$ filtriert. Die ungelösten Rückstände wurden getrocknet, gewogen und auf Pu und U analysiert.

UO₂ enthaltende Brennstoffe aus Obrigheim (KWO) und Kahl (VAK) mit Abbränden bis zu 37000 MWd/t wurden von 6 M HNO₃ innerhalb von 2 bis 4 Stunden gelöst. Der ungelöste Rückstand betrug 0,2 bis 0,3 Gew.-% des abgebrannten Brennstoffes mit 0,2 bis 0,35 % Pu, entsprechend einem Verlust von 0,05 bis 0,1 % des gesamten Plutoniums.

UO₂/PuO₂ Brennstoffe zeigen je nach Herstellungsart verschiedene Lösbarkeit.

Wir wollen zuerst die Auflösung von Pu-recycle Brennstoffen betrachten.

Tabelle 1 gibt einen Auszug aus etwa 50 Löseversuchen an unbestrahlten und bestrahlten Pu-recycle Brennstoffen. Die Brennstoffe waren durch mechanisches Mischen von UO₂ und PuO₂ Pulver hergestellt worden. Der Brennstoff der KWO-Fertigung 1976 war ohne weitere Vorbehandlung, der neuere rss-Brennstoff von Alkem nach einem anderen Verfahren mit einer zusätzlichen Vorbehandlung gefertigt worden. Der deutliche Unterschied im Gewicht der Auflöserückstände der unbestrahlten Proben von 0,9 % gegenüber 0,06 %, beziehungsweise des ungelösten Plutoniums

von 15,5 % gegen <2,5 % des gesamten Plutoniumgehaltes der Brennstoffe zeigt eine deutliche Verbesserung der Lösbarkeit.

Das Löseverhalten des ersten Brennstoffes nach der Bestrahlung zeigt der untere Teil der Tabelle. Während bis zu einem Abbrand von 1,5 % (wir hatten Abbrände ab 0,7 % untersucht) keine merkliche Änderung der Lösbarkeit gefunden wurde, zeigte sich bei 2 % Abbrand und darüber eine bedeutende Verbesserung der Lösbarkeit. Bei 2,1 % bzw. 2,6 % Abbrand wurde nur noch 5,5 % bzw. 2,0 % des Plutoniums nicht gelöst.

Innerhalb einer Brennstoffsorte ist die Rückstandsmenge und der Plutonium-Anteil im Rückstand vom Abbrand, d.h. von der Brennstableistung und im Endeffekt von der Brennstofftemperatur abhängig. Höhere Temperaturen des Brennstoffes über längere Zeit haben bessere Löslichkeiten zur Folge.

Daten über die mittlere Brennstableistung und Temperaturen im Zentrum der drei Brennstäbe im 1. und 2. Bestrahlungszyklus zeigen einen Anstieg dieser Werte mit steigendem Abbrand:

	1. Zyklus		2. Zyklus	
KWO 249/133	128 W/cm	655-695 ^o C	196 W/cm	880-895 ^o C
251/296	178	795-800	219	
251/493	220	950-985	265	

Das ungelöste Plutonium in den Rückständen kann mit <0,1 M HF enthaltender 10 M HNO₃ nahezu vollständig gelöst werden. Eine mögliche, aber unerwünschte technische Lösung wäre die Auflösung in zwei Stufen. Zuerst die Auflösung der Hauptmenge mit Salpetersäure, Filtration und danach Lösen des Rückstandes mit Salpetersäure und Fluorwasserstoff. Diese Verfahrensweise erfordert geringere Fluorid-Mengen als eine sofortige Zugabe

des Fluorids. Infolge der bekannten Schwierigkeiten, die HF verursacht, ist für die Auflösung in der WAK und dem geplanten Entsorgungszentrum nur Salpetersäure vorgesehen.

PuO₂-UO₂ Schnell-Brüter Brennstoffe verschiedener Herstellungsart wurden auf ihr Auflöseverhalten untersucht. Das Löseverhalten der durch Kopräzipitation von Uran und Plutonium hergestellten Brennstoffe unterscheidet sich sehr von dem der durch mechanisches Mischen hergestellten PuO₂/UO₂ Brennstoffe (Tab. 2). 5 - 6.1 % abgebrannter, durch Kopräzipitation hergestellter Brennstoff aus Dounreay über 9 Stunden in 10 M HNO₃ gelöst, gab einen Rückstand von 0,5 Gew.-% des Brennstoffes, in dem 0,04 % des ursprünglichen Plutonium-Gehalts gefunden wurde. Eine Anreicherung von Plutonium gegenüber Uran wurde im Rückstand nicht beobachtet, das Verhältnis Pu/Pu+U im Rückstand entsprach dem des ursprünglichen Brennstoffes.

Bei denselben Auflösbedingungen verblieb von den mechanisch gemischten Brennstoffen nach einem Abbrand von 5,1 % im DFR ein Rückstand von 3 Gew.-% des Brennstoffes, der 4,5 % des gesamten Plutoniums enthielt. Nach 9,5 % bzw. 9,3 % Abbrand im Reaktor Rapsodie, von zwei verschiedenen Herstellern angefertigter Brennstoffe, wurde praktisch dieselbe Menge von 1,8 bzw. 1,9 Gew.-% nicht gelöst und darin 1,7 bzw. 1,4 % des gesamten Plutoniums gefunden. An ähnlich hergestellten und in Rapsodie auf 9 % abgebrannten Brennstoffproben wurde die Menge des Ungelösten mit 2,2 Gew.-% von CEN-Belgien angegeben. Aus diesen Rückständen konnte das Plutonium mit siedender 0,1 M HF - 10 M HNO₃ in 8 Stunden bis auf einen Rest von 0,02 bis 0,09 % in Lösung gebracht werden.

Alle diese Experimente, die fortgesetzt werden, zeigen, daß auch nach lang andauerndem Kochen mit 10 M HNO₃ die durch mechanische Mischung hergestellten Brennstoffe sogar nach Abbränden von ca. 9 % nicht vollkommen löslich sind.

In dem Rückstand des kopräzipitierten Brennstoffes wurde mittels Röntgenfluoreszenz-Analyse außer Uran und Plutonium in abnehmender Reihenfolge Mo, Ru, Fe, Ni, Tc, Rh, Pd, Sn und Zr gefunden. Fe und Ni sind auf die Stahlhülle zurückzuführen.

Die Verminderung der Plutonium-Verluste in den Rückständen der Auflösung ist das Ziel einer Kooperation zwischen Brennstoffhersteller und GfK. Das in der ersten Tabelle gezeigte günstigere Auflösungsverhalten der unbestrahlten rss-Alkem Proben von Pu-recycle Brennstoff, wobei nach höheren Abbränden (>20 MWd/kg) eine weitere Verbesserung der Lösbarkeit des Plutoniums erwartet werden kann, zeigt, daß der Brennstoffhersteller auf dem richtigen Wege zum gesetzten Ziel ist. Erste Bestrahlungsproben dieses Brennstoffes sind in KWO eingesetzt. Das Herstellungsverfahren der Brennstoffe wird weiter verbessert. Nach neuesten Versuchen von Alkem kann der ungelöste Anteil des Plutoniums auf <0.1 % reduziert werden.

2. Extraktion

Im Laufe der extraktiven Reinigung wurde dem 1. hochaktiven Zyklus besondere Aufmerksamkeit gewidmet. Die im 1. Extraktionszyklus auftretenden Schwierigkeiten infolge der Bildung von Niederschlägen und Emulsionen ("Crud") konnten in den Versuchen mit hochabgebrannten LWR-Brennstoffen durch die von uns vorgeschlagene Verfahrensweise - hohe Sättigung des Extraktionsmittels TBP und hohe 3-4 M HNO_3 Konzentrationen - zurückgedrängt werden. Die obere Grenze der zulässigen Sättigung wird durch einen darüber eintretenden Anstieg der Pu-Verluste gegeben. Bei Plutonium-recycle Brennstoff mit ~ 3 % Pu war, wie dies Abb. 2 zeigt, bei einer Beladung des 30 % TBP/Alkan von rund 80 %, d.h. 100 g U+Pu/l, der Plutonium-Verlust im wäßrigen Raffinat $< 0,05$ %. Es ist aber auch zu sehen, daß bei dieser Sättigung mehr Extraktionsstufen als im Normalfall erforderlich waren. Für die Praxis wird man mit mehr Sicherheit arbeiten wollen und deswegen eine 5 - 10 % geringere Beladung (d.h. 90 - 95 g U+Pu/l) vorziehen.

In keiner Kammer des Extraktors ist jedoch auch in diesem Falle eine Anhäufung des Plutoniums gemessen worden. Die Konzentrationen lagen unter der kritikalitätssicheren Grenze von 7 g Pu^{239} pro Liter.

3. Neptunium

Infolge der eingeschränkten Redezeit kann ich jetzt nur noch auf unsere Ergebnisse über das Verhalten des Neptuniums bei der Wiederaufarbeitung hochabgebrannter LWR-Brennstoffe eingehen.

Bei Abbränden von 33 bzw. 36 MWd/kg im Kernreaktor Obrigheim (Tab. 3) war gegenüber dem errechneten Np-Gehalt von 440 bzw. 460 mg/kg Brennstoff nach der Auflösung 410 bzw. 430 mg/kg gefunden worden.

Um die Produktspezifikationen zu erfüllen, muß das Neptunium bis auf

1 ppm Np im Uran, und

1000 ppm Np im Plutoniumprodukt

entfernt werden. Infolge der angestrebten Abbrände von bis zu 40 MWd/kg Brennstoff sind für Neptunium Dekontaminationsfaktoren zu erreichen, die

>500 im Uranprodukt, und

>50 im Plutoniumprodukt

sind.

Das Verhalten des Neptuniums im 1. hochaktiven Extraktionszyklus wurde zuerst in mehreren Versuchen verfolgt, ohne Eingriffe um für das Neptunium optimale Lösungen zu finden. Aus drei Versuchen der Tab. 4 ist zu sehen, daß der überwiegende Teil des Neptuniums extrahiert wird, nur etwa 10 % gelangt in den hochaktiven Abfall. Die Streuung der Versuchsergebnisse kann auf den sehr empfindlichen Einfluß der Nitrit-Konzentration auf die Einstellung der verschiedenen extrahierbaren Np(VI)- und Np(V)-Verbindungen zurückgeführt werden.

Bei der Trennung von Plutonium und Uran mittels U(IV) als Reduktionsmittel verteilt sich Np auf beide Ströme. 50 bis 85 % des Neptuniums verblieb im Uranstrom. In "kalten" Gegenstromversuchen war etwa 70 % des Neptuniums im Uranstrom und

etwa 30 % im Plutoniumstrom gefunden worden. Die hier und in den nächsten Tabellen aufgeführten Werte sind Durchschnittswerte aus den Analysen der Behälterinhalte jeweils einer Kampagne.

Das Verhalten des Neptuniums bei der Reduktion mit U(IV) ist darauf zurückzuführen, daß Np(VI) schnell zum schlecht extrahierbaren Np(V) und dann langsam zum gut extrahierbaren Np(IV) reduziert wird.

Neptunium muß sowohl in den Uran als auch in den Plutonium-Reinigungszyklen gezielt entfernt werden.

Neptunium in den Uran-Reinigungszyklen

Der 2. Uran-Zyklus dient in erster Reihe zur Entfernung des Plutoniums aus dem Uranstrom (Abb. 3). Plutonium wird mit hydrazinstabilisiertem U(IV)-Nitrat reduziert, wobei bis zu 99,9 %, in diesem Versuch 99,4 % (DF-Pu = 150), des Plutoniums in den wäßrigen Raffinat, den mittelaktiven Abfall, gelangen. Gleichzeitig wird auch Neptunium zu Np(V) reduziert und mit einem DF = 125 vom Uran getrennt. Eine Verbesserung dieses Ergebnisses wurde bei geringerer Säurekonzentration (Tab. 5) erreicht. Die Daten der Tabelle 5 ermöglichen den Vergleich eines "verdünnten" Fließschemas, d.h. Feedkonzentration ca. 50 g U/l und org./wsg. Flußverhältnis 0,6 in der Extraktion mit Durchschnittswerten $DF(Np) = 100$ bis 200 und einem "konzentrierten" Fließschema mit 293 g U/l und Flußverhältnis org./wsg. = 2, bei dem wiederholt nur $DF(Np) = 10$ gefunden wurden.

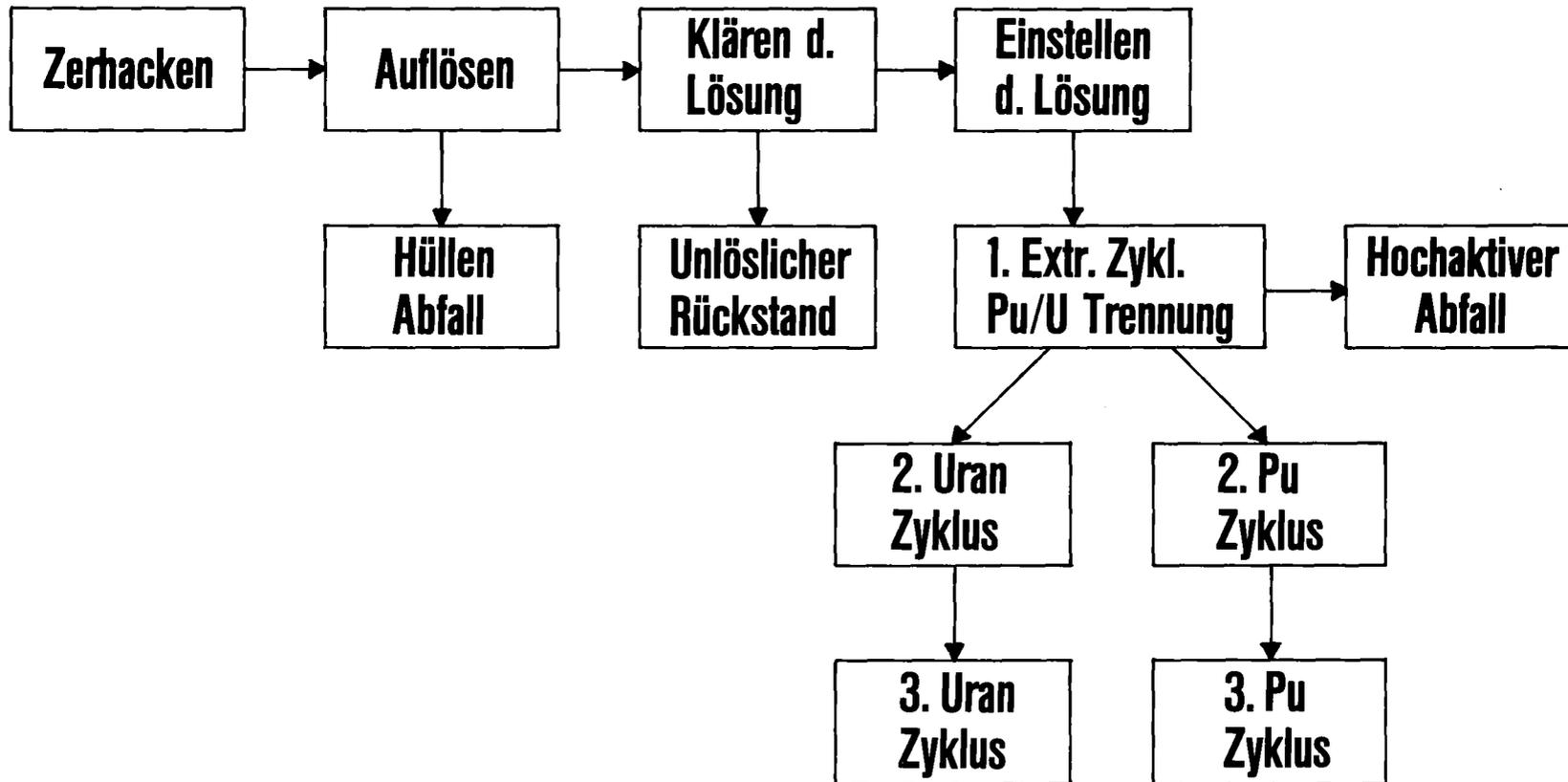
Die Entfernung des restlichen Neptuniums wird im 3. Uran-Zyklus durch gezielte Einstellung ausreichender Nitrit-Konzentrationen erreicht, die zur Einstellung des nicht extrahierbaren Np(V) erforderlich sind (Abb. 4). Mit Nitrit-Konzentrationen von 0,04 bis 0,1 M pro Liter TBP wurden für Np DF's bis zu 10^3 erhalten (Tab. 6). Die geforderten Spezifikationen im Uranprodukt wurden in beiden Fällen weit überboten.

Plutonium-Reinigungszyklen

Die Zugabe von Nitrit hatte schon in einem Plutonium-Extraktionszyklus eine ausreichende Reinigung des Plutoniums von Neptunium ergeben, wenn die als optimal gefundenen Bedingungen - (Tab. 7) geringe HNO_3 -Konzentration ($< 2 \text{ M HNO}_3$ in der wäßrigen Phase) und ausreichende Nitrit-Konzentration im TBP - eingehalten wurden.

Das Konzentrationsprofil von Np, Pu, U und HNO_3 im 2. Plutonium-Zyklus ist in der Abb. 5 dargestellt. Bei den bisher gefundenen optimalen Bedingungen 0.08 M HNO_2 im 30 % TBP/Alkan und $< 2 \text{ M HNO}_3$ in der wäßrigen Phase wurde eine Abnahme des Neptunium-Gehalts von 1.8 % auf 55 ppm im Plutonium in der Extraktion und Wäsche, entsprechend einem $\text{DF} = 330$, erreicht.

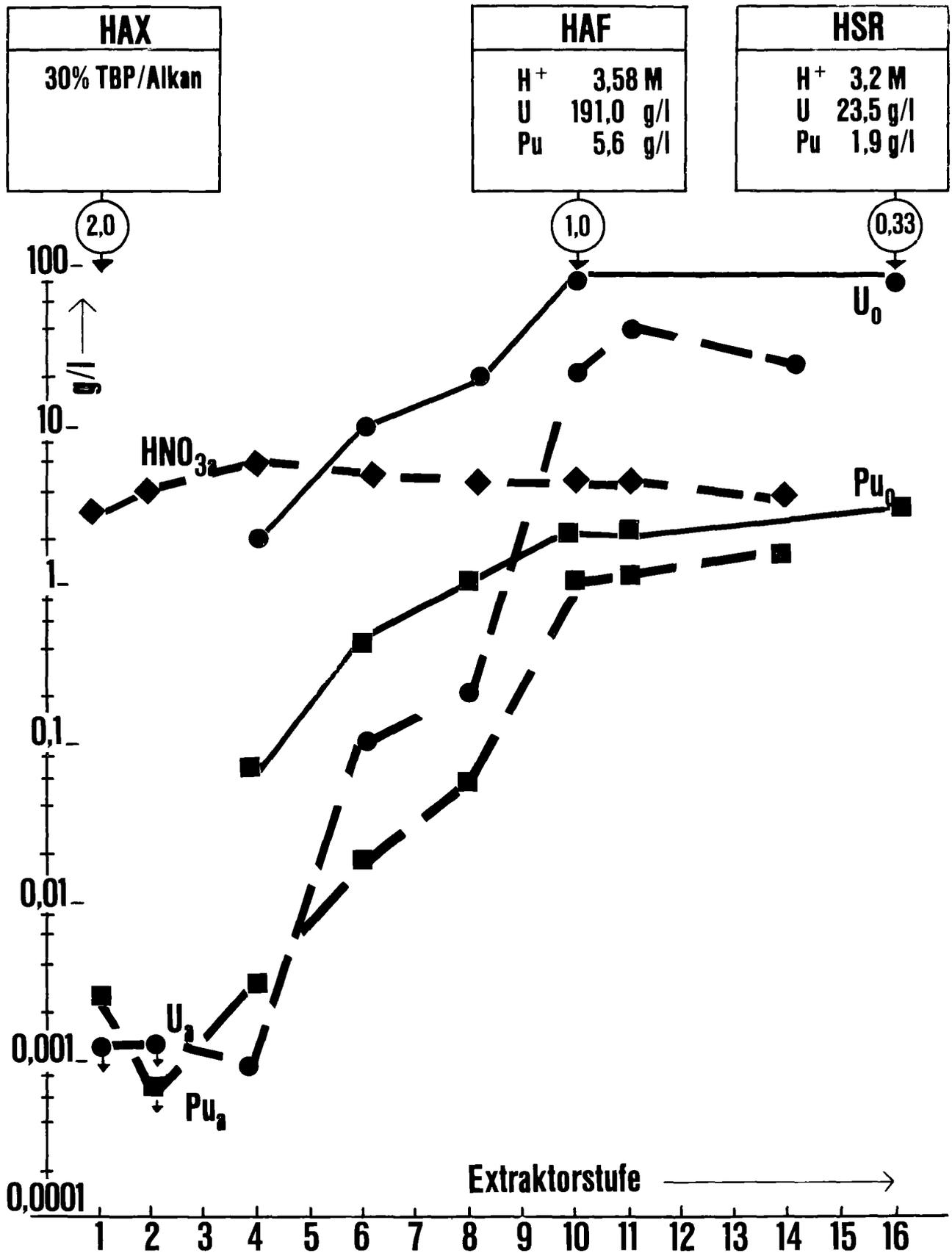
Die Frage, ob die Produktspezifikationen bezüglich Neptunium nach hohen Abbränden der Brennstoffe erfüllt werden, kann aufgrund unserer Versuchsergebnisse positiv beantwortet werden. Jedoch wäre es wünschenswert, das Neptunium sofort in die hochaktive Abfallösung (HAW) des 1. Extraktionszyklus zu führen. Dies ist das Ziel unserer weiteren Versuche bezüglich Neptunium.



**Schema der Wiederaufarbeitung.
Pu/U-Trennung im 1. Zyklus**

IHCH

Abb. 1

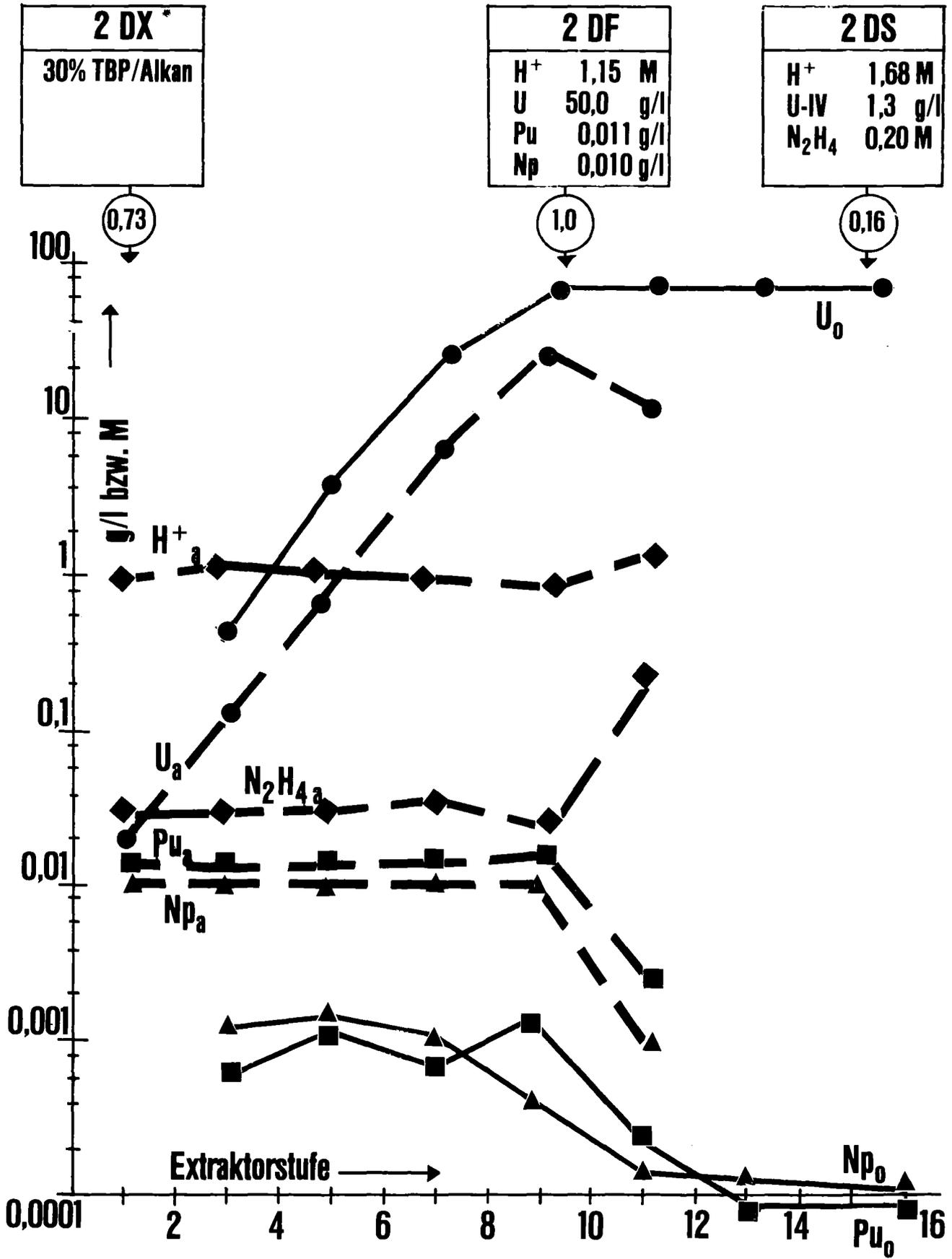


1. Zyklus mit Pu-recycle-Brennstoff

Extraktion + Wäsche

Abb. 2

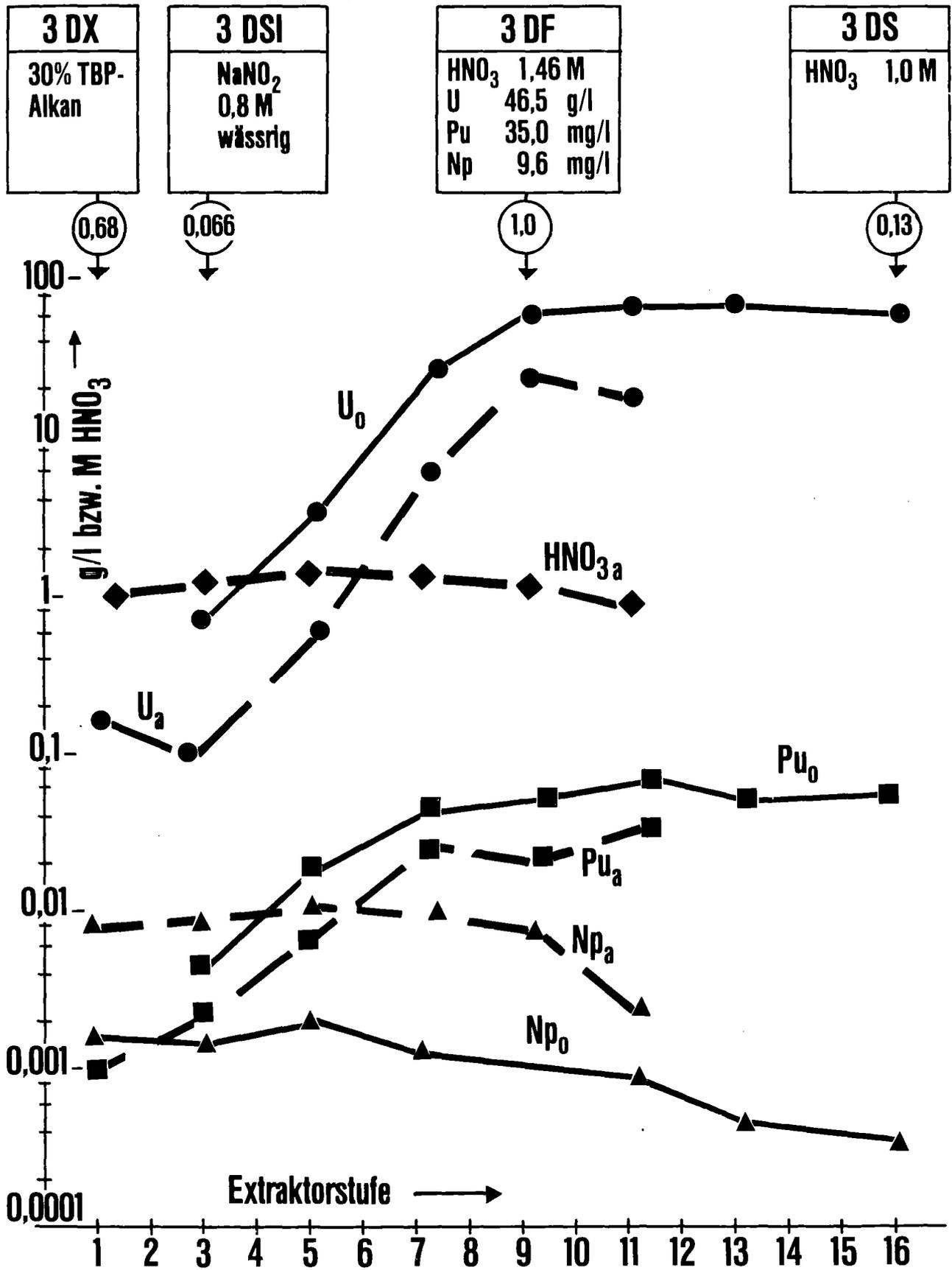
IHCH



IHCH

2. Uranzyklus
Extraktion + Wäsche

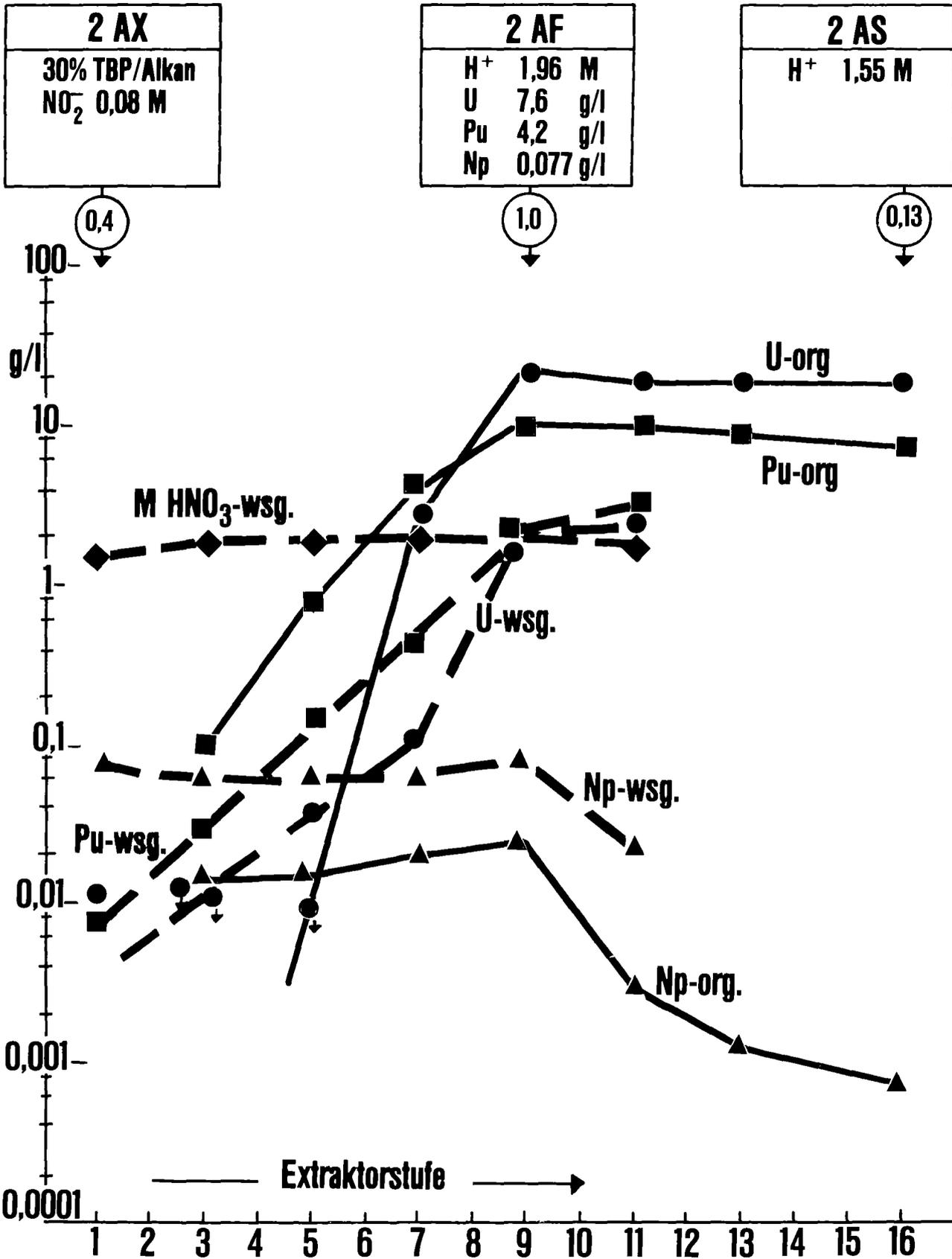
Abb. 3



3. Uranzyklus

Extraktion u. Wäsche

Abb. 4



2. Plutoniumzyklus

Extraktion + Wäsche

Brennstoff	Abbrand %	% Pu im Brennstoff	Ungelöster Rückstand			ungelöst % Pu des ges. Pu
			gew. %	% U	% Pu	
<u>unbestrahlt</u>						
KWO-76-Fertigung	0	3.67	0.9	16	63	15.5
rSS-Alkem	0	2.05	0.06			<2.5
<u>bestrahlt</u>						
KWO 249/133	1.35	3.14	0.86	18.2	56.6	15.5
KWO 251/296	2.1	2.70	0.49	13.3	30.0	5.5
KWO 251/493	2.6	2.40	0.49	5.5	9.9	2.0

Auflösung in siedender 10 Mol/HNO₃ über 6 Stunden

Pu-recycle Brennstoffe

Tab. 1

IHCH

	% PuO₂ vor Abbrand	Abbrand %	% Pu ungelöst
1. <u>Kopräzipitierter Brennstoff</u> (Donnreay)	15	5 u. 6.1	0.04
2. <u>Mechanisch gemischte Brennstoffe</u>			
Rapsodie BM 14 (BelgoNucléaire)	30	9.3	1.4
Rapsodie AU 22 (Alkem)	30	9.5	1.7
DFR 455-1A 59 (Alkem)	30	5.1	4.5

Auflösung in siedender 10 Mol/HNO₃ über 9 Stunden

UO₂/PuO₂ Schnell-Brüter Brennstoffe

Tab. 2

IHCH

	KWO II	KWO III
Abrand [MWd/kg]	36	33
Kühlzeit [d]	780	240
Brennstoff [kg]	8.2	17
Np-Gehalt [mg/kg]	410	430

Berechnet: 440-460 mg Np/kg (Brennstoff)



IHCH-0-1-77

Tab. 3

Analysen des Np in LWR-Brennstoffen

	KWO I	KWO II	KWO III
Wsg. Abfall (HAW)	0.4	14	9
Pu-Prod. (1 BP)	14	28	34
U-Prod. (ICP)	76	51	35

Extraktion Speiselösung: (HAF): 3 M HNO₃, 1 M UN
Waschlösung: (HAS): 3 M HNO₃
Extrakt. Mittel: (HAX): 30% TBP-Alkan

afk

IHCH-0-2-77

Np-Verteilung (%) im 1. Extraktionszyklus

Tab. 4

KWO-Brennstoff Nr. Fließschema Art	II		III
	verd.	verd.	konz.
Feed, U g/l	50	47	293
Extraktion, Org./Wsg.	0.6	0.6	2
Wäsche, Org./Wsg.	4.5-5.2	6	6
Waschlösg., U (IV) g/l	1.3-5	0.2-0.4	0.5-1
DF (Np), Durchschnitt	125	200	10



IHCH-0-3-77

2. Uran-Zyklus

Abtrennung des Np mit U (IV)

Tab. 5

KWO-Brennstoff	I	II
% U-Sättigung des TBP	54	50
mM HNO ₂ im TBP	0.1 – 0.4	40 – 100
DF (Np), Durchschnitt	70	10 ³
ppm Np im U-Produkt nach 3 Zyklen	0.2	2·10 ⁻³



IHCH-0-4-77

3. Uran-Zyklus

Abtrennung des Np mit Nitrit

Tab. 6

KWO-Brennstoff	I	II	III(*)
mM HNO ₂ im TBP	15-50	40-70	20-80
M HNO ₃ in wsg. Ph.	3	1.9	2
DF (Np), Durchschnitt	1-2	330	30
Gesamt DF (Np) in 2 Zyklen	7-14	1.2·10 ³	75

(*) Störung durch HDBP

afk

IHCH-0-5-77

2. Plutonium-Zyklus

Abtrennung des Np mit Nitrit

Tab. 7

"Verfahrensentwicklungen zur Abfallminimierung
im Purex-Prozeß"

von

H. Schmieder, H. Goldacker
Gesellschaft für Kernforschung mbH, Karlsruhe

und

L. Finsterwalder
Gesellschaft zur Wiederaufarbeitung von Kernbrennstoffen,
Karlsruhe

Vortrag beim Statusbericht 1977 des
Projektes Wiederaufarbeitung und Abfallbehandlung

Einleitung

Die unvermeidliche und nicht weiter reduzierbare, radioaktive Abfallmenge bei der Wiederaufarbeitung ist durch zwei Quellen gegeben:

1. Spaltprodukte. Das sind ca. 30 kg/t Uran für einen Leichtwasser-Reaktor mit rund 30000 MWd/t Abbrand, und
2. aktivierte Materialien vom Brennelement, vornehmlich das Hülsenmaterial. Die Menge beträgt etwa 400 kg/t Uran.

Verursacht durch den Gebrauch von Hilfsstoffen (Prozeßchemikalien) und unvollständige Rezyklierung der Medien (H_2O , organische Lösungsmittel) werden jedoch auch in der Wiederaufarbeitungspraxis wie bei jedem chemischen Prozeß die entstehenden Abfallmengen vergrößert.

Bei der Verglasung des hochaktiven Abfalls muß mit einer Verdünnung der Spaltprodukte um einen Faktor 4 - 10 gerechnet werden. Auch die aktivierten Brennelementmaterialien kommen nur verdünnt zur Lagerung. Wesentlich bedeutender sind jedoch die Mengen an mittelaktivem Abfall, die durch nicht rezyklierbare kontaminierte Prozeßchemikalien in der Hauptsache Natriumnitrat, gebildet werden. Auch Dekontaminationschemikalien und überschüssige Säure gehören dazu. Hier muß insgesamt mit einem Anfall von einigen Kubikmetern/t Uran gerechnet werden. Ohne Dekontaminationschemikalien werden von der Wiederaufarbeitungsanlage Karlsruhe (WAK) heute etwa 2 m^3 bituminierter mittelaktiver Abfall/t U produziert (1), obwohl es zahlreiche betriebliche Verbesserungen in der Rezyklierung der Prozeßmedien gegeben hat. Dazu gehört in erster Linie die Rückführung von Salpetersäure und Wasser mittels mehrfacher, hintereinander betriebener Verdampfungsvorgänge und die Rückführung von Kerosin in die organische Extraktionsmittelpphase. Das erstmals bei der GfK in den Dekontaminationsbetrieben erprobte und für kontinuierliche Betriebsweise weiterentwickelte Phosphorsäureadduktverfahren zur Kerosinrückführung arbeitet wie folgt (2,3): Das zum Waschen von wäßrigen Produkt- und Raffinatströmen

verwendete, mit Tributylphosphat beladene Kerosin wird zuerst einer Wäsche mit Natriumkarbonat oder Natriumhydroxid unterzogen. Durch den anschließenden Zusatz konzentrierter Phosphorsäure bildet sich in Mischabsetzern ein Tributylphosphat (TBP)-Phosphorsäureaddukt. Die verbleibende organische Phase, das Kerosin, wird einer Feinreinigung unterworfen und in den Prozeß zurückgeführt. Das Addukt wird mit Wasser im Gegenstrom wieder aufgetrennt, wobei halbkonzentrierte Phosphorsäure und hochprozentiges TBP entsteht. Die Phosphorsäure wird aufkonzentriert und wieder eingesetzt. Für das Kerosin sind Spaltprodukt-Dekontaminationsfaktoren bis zu 10^8 bei Verwendung von Silikagelsäulen zur Feinreinigung erreichbar. Bisher wurden mehr als 50 m^3 Kerosin im diskontinuierlichen Betrieb durchgesetzt.

Die Abb. 1 zeigt vereinfacht das Bilanzschema der heutigen Prozeßpraxis und die dabei entstehenden flüssigen Abfallmengen. Den oberen Kästen können die verwendeten Prozeßchemikalien entnommen werden. Für die Plutonium-Uran-Trennung und für die Plutonium-Rückextraktion haben wir als Reduktionsmittel Hydroxylammoniumnitrat angenommen. Wasserstoffperoxid und Kaliumpermanganat dienen als Redoxchemikalien und Oxalsäure zur Fällung des Plutoniums. Natriumcarbonat und Natriumhydroxid werden zur Extraktionsmittelwäsche verwendet. Im mittleren gestrichelt gezeichneten Rechteck sind die Prozeßschritte der heutigen Verfahrenspraxis aufgeführt. Die untere Kastenreihe zeigt in der Mitte die Menge des mittelaktiven und rechts die des hochaktiven Abfalls. Auf der linken Seite steht die nach der anschließenden Verdampfung leicht- bis mittelaktive Salpetersäure, die zum Teil rezykliert werden kann. Der Überschuß muß als Abfall beseitigt werden. Die Mengen werden in Mol pro Tonne Uran angegeben, die Flächen der Kästen sind mengenproportional. Sie sehen, daß bei sparsamen Einsatz von Prozeßchemikalien mindestens 1350 Mole Natriumnitrat, das sind 115 kg pro Tonne Uran beseitigt werden müssen. Außerdem muß damit gerechnet werden, daß durch die restriktiven

Auflagen bezüglich der Plutoniummenge im verfestigten mittelaktiven Abfall wesentlich größere Mengen an verdünnender Matrix, Bitumen oder Zement, aufgewendet werden müssen und dadurch eine Vervielfachung der Kosten zu erwarten ist.

Auf der Basis dieser Überlegungen sind im Institut für Heiße Chemie eine Reihe von Entwicklungsvorhaben entstanden, die die Minimierung der mittelaktiven Abfallmengen und die Senkung der Plutoniumverluste als Hauptziel haben. Alle Verfahren sind durch zwei Merkmale gekennzeichnet:

- weitgehender Ersatz der Prozeßchemikalien durch Elektrooxidation oder Elektroreduktion
- die eingesetzten Prozeßchemikalien sollten durch Verflüchtigung von den nichtflüchtigen Spaltprodukten, sowie dem Uran und Plutonium hocheffektiv gereinigt werden können.

Der Entwicklungsstand und das Potential der einzelnen Verfahren wird im Folgenden beschrieben.

Elektrooxidation von Plutonium und Hydrazinlösungen (4,1)

Nach jedem Extraktionszyklus fällt das Plutoniumprodukt als Plutonium-III-nitrat in verdünnter salpetersaurer Hydrazinlösung an. Vor der erneuten Extraktion bzw. vor der Fällung als Oxalat muß es wieder vollständig zu Plutonium-(IV) oxidiert werden, wobei auch das Stabilisierungsmittel Hydrazin zerstört werden muß. Dieser Prozeßschritt erfolgt in bestehenden Anlagen entweder durch Zugabe von Natriumnitrit oder durch Begasen der Produktlösung mit NO_2 . Das erste, ältere Verfahren führt zu unerwünschter Salzbildung. Das zweite Verfahren besitzt den Nachteil, daß relativ hohe Überschüsse des gut im Extraktionsmittel löslichen Oxidationsmittels angewendet werden müssen. In der Abb. 2 werden die Verfahrensweisen der WAK und Eurochemic mit dem Elektrooxidationsverfahren verglichen. In der WAK wird durch einfache Begasung in einem Behälter gearbeitet. Das Verfahren ist wenig effektiv und benötigt deshalb mehr als den

15-fachen stöchiometrischen NO_2 -Überschuß. In der Eurochemic wird eine Begasungskolonne verwendet. Der Überschuß an NO_2 ist geringer. In beiden Anlagen verbleibt ein Restgehalt von fast 0,1 M/l Nitrit in der Lösung. Zur Vermeidung von Störungen bei der reduzierenden Plutoniumrückextraktion muß daher dieser Oxidationsmittelüberschuß durch Ausblasen mit Luft in einer Kolonne beseitigt werden.

Bei der Elektrooxidation entsteht Nitrit nur in vernachlässigbaren Mengen von etwa $5 \cdot 10^{-4}$ M/l und die experimentell erreichten Stromausbeuten liegen bei annähernd 100 %. Der besondere Vorzug des Elektrooxidationsverfahrens ist die direkte Steuerbarkeit des Prozesses über den elektrischen Strom.

Abb. 3 zeigt den prinzipiellen Aufbau einer Elektrooxidationszelle. Der Grundkörper ist aus Titan gefertigt und dient als Kathode. In die mäanderförmigen Kanäle werden Streckblechanoden aus platinisiertem Tantal oder Titan eingesetzt. Da die Hydrazinoxidation irreversibel ist und Plutonium-(III) in Abwesenheit von Hydrazin nicht stabil ist, kann auf ein Diaphragma verzichtet werden. Abb. 4 zeigt eine Laborzelle mit einer Kapazität, die annähernd dem Durchsatz des zweiten Plutoniumzyklus der WAK entspricht. In solchen Zellen ist auch die Oxidation von Hydroxylammoniumnitrat und die Reduktion von Plutonium-VI zu Plutonium-(IV) gelungen. Letzteres mit verändertem Kathoden/Anoden-Flächenverhältnis.

Extraktionsmittelwäsche mit Hydrazin (5,6)

Wie eingangs schon erwähnt, enthalten bei der herkömmlichen Verfahrensweise die wäßrigen Abfalllösungen aus den Extraktionsmittelwäschen neben den mengenmäßig geringen Degradationsprodukten des Tributylphosphates hauptsächlich Natriumnitrat, das durch Neutralisierung der alkalischen Waschmittel Natriumhydroxid bzw. Natriumcarbonat mit Salpetersäure entsteht. Das auf diese Weise anfallende Natriumnitrat stellt die Hauptmenge des kontinuierlich aus dem Gesamtprozeß anfallenden mittelaktiven Abfalles dar. Ziel des neuen Verfahrens ist es, diesen mittelaktiven Abfall zu vermeiden. Abb. 5 zeigt schematisch das Verfahrensprinzip. Anstelle von Natriumcarbonat wird das

Extraktionsmittel mit CO_2 -beladenem Hydrazin gewaschen. Die Waschlösung wird danach durch Elektrooxidation in Stickstoff zersetzt. Die wäßrige Lösung kann nun im Verdampfer zusammen mit anderen Raffinatströmen hochaufkonzentriert werden und zur Spaltstoffentfernung in z.B. den unteren Teil der HA-Kolonnen eingeführt werden. In der Abb. 6 sind typische Versuchsergebnisse mit "heißem" Extraktionsmittel dargestellt. Es wurde Extraktionsmittel aus der MILLI-Anlage und aus der WAK verwendet. Die erreichten Dekontaminationsfaktoren zeigen, daß bei der Wäsche mit Hydrazincarbonat mindestens vergleichbare Wascheffekte für Zirkon, Ruthen und Dibutylphosphat erreicht werden wie mit Natriumcarbonat. Die Experimente wurden in Miniaturmischabsetzern in abgeschirmten Boxen durchgeführt. Abb. 7 zeigt die abgeschirmte Anlage. In der Mitte des Bildes sind die zwei bleiabgeschirmten Boxen erkennbar, die mit Stoßgreifern bedient werden können. Rechts ist die ungeschirmte Probenahmebox zu sehen.

Als Alternativverfahren zur Elektrooxidation der verbrauchten Hydrazinwaschlösungen wird bei der GWK ein Oxidationsverfahren entwickelt, das flüssiges N_2O_4 verwendet. Mögliche Schwierigkeiten an den Elektroden in stark verschmutzten Lösungen könnten damit umgangen werden.

Plutonium-Uran-Trennung und Plutonium-Rückextraktion durch Elektroreduktion (1,4)

Die Plutonium-Uran-Trennung wird durch Reduktion von Plutonium-(IV) zu Plutonium-(III) erreicht. Neuerdings wird auch in den Plutonium-Reinigungszyklen grundsätzlich reduzierend gearbeitet. Das heute am häufigsten verwendete Verfahren ist die Reduktion mit Uran-(IV). Das Verfahren hat erhebliche Schwächen:

- es werden große Reduktionsmittelüberschüsse benötigt,
- eine Vermischung von Brennstoffchargen unterschiedlicher Isotopenzusammensetzung ist kaum vermeidbar,
- bei der Plutonium-Feinreinigung mit dem Uran-(IV)-Reflux-Prozeß werden zwei zusätzliche Extraktionsapparate benötigt

und nicht zuletzt

- können spontane Reoxidationen auftreten (7,8).

Es hat deshalb zahlreiche Bemühungen gegeben, diese Schwierigkeiten durch neue Verfahren zu umgehen. Dazu zählt die Anwendung von Hydroxylammoniumnitrat als Reduktionsmittel (9). Nachteilig dabei ist, daß das an radiolytisch gebildete, saure Phosphorsäureester gebundene Plutonium nur unvollständig rückextrahiert wird.

Bei der Gesellschaft für Kernforschung wurde der Elektroreduktionsprozeß für Mischabsetzer und Pulskolonne entwickelt (10). Die Elektroreduktion läuft dabei im Extraktionsapparat neben dem extraktiven Stoffaustausch ab.

Abb. 8 zeigt einen Vergleich der mit dem elektrolytischen Mehrstufen-Mischabsetzer (MILLI-EMMA) erzielten Trennergebnisse mit denen von Eurochemic und WAK. Die Plutonium-Uran-Trennung erfolgt bei der Eurochemic und bei der WAK mit großen Überschüssen an Uran-(IV), nämlich mit 10 bis 20-facher Stöchiometrie. Bei Anwendung von 8 theoretischen Stufen werden bei der Eurochemic Trennfaktoren (DF) für Plutonium von 100 - 500 in einer Pulskolonne erzielt. Bei vergleichbaren Plutoniumgehalten im Brennstoff wurden durch Elektroreduktion Trennfaktoren von 500 - 2000 in der MILLI-EMMA mit nur fünf theoretischen Stufen erreicht. Bei höherem Plutoniumgehalt im Brennstoff stiegen die Trennfaktoren bis auf über 20000. Die dabei erzielten Stromausbeuten betragen bis zu 30 %, bezogen auf Plutonium.

Die Plutonium-Rückextraktion wurde bei der Eurochemic für die meisten Kampagnen mit verdünnter Salpetersäure durchgeführt. Die WAK arbeitet nach dem gleichen Verfahren. Die erreichbaren Dekontaminationsfaktoren sind gering. Bei der WAK wird deshalb das organische Raffinat in den ersten Zyklus zurückgeführt. Von der Eurochemic werden Dekontaminationsfaktoren von ca. 300 bei 10 theoretischen Stufen im Mischabsetzer angegeben. Die erreichbaren Plutoniumproduktkonzentrationen betragen maximal 25 g/l. Bei der Elektroreduktion haben wir mit nur 8 theoretischen Stufen Trennfaktoren von 4000 bis 20000 bei Produktkonzentrationen bis zu 60 g/l erreicht.

Die Abb. 9 zeigt ein Foto des Elektrolyse-Mischabsetzers (MILLI-EMMA). Das Gehäuse ist aus Titan gefertigt und dient als Kathode. Als Anode werden wieder mit Edelmetallen beschichtete Tantal- oder Titan-Streckbleche verwendet, die im hinteren Teil der Absetzkammer angeordnet sind. Der Mischabsetzer wurde insgesamt über mehr als 2000 Stunden ohne Schwierigkeiten in der Elektrolysefunktion betrieben.

Die Versuche mit der parallel entwickelten Elektroreduktionskolonne (ELKE) haben über mehrere Konzepte heute zu einer sehr einfachen Konstruktion geführt. Abb. 10 zeigt den Aufbau der Kolonne. Das Kolonnenrohr und die Siebböden sind aus Titan gefertigt und wirken als Kathode. Ein Zentralstab aus platinisiertem Tantal, der über Keramikringe von den Siebböden elektrisch getrennt ist, dient als Anode. Das gesamte Elektrodengas wird damit im Extraktionsraum entwickelt. Zur Abscheidung von mitgerissener kontinuierlicher wäßriger Phase sind im Kopfdkanter einige zusätzliche Bleche installiert.

Die Umsatzexperimente mit Uran sind in Abb. 11 zusammengefaßt. Die bei einer mittleren Stromdichte von 13 mA/cm^2 erzielte Raum-Zeit-Ausbeute von $1,3 \text{ g U-(IV)/Ah}$ ist identisch mit dem in der MILLI-EMMA bei 15 mA/cm^2 erzielten Wert. Der Maßstabsfaktor zwischen Kolonne und Mischabsetzer beträgt etwa 100. Die Extraktionseffektivität des Miniatur-Mischabsetzers ist mit 40 % Stufenwirksamkeit gering, das ist ein generelles Problem bei Miniaturextraktionsapparaten, während die theoretische Stufenhöhe in der Kolonne mit 80 cm für die Uranextraktion einen befriedigenden Wert darstellt und zeigt, daß keine wesentliche Beeinflussung der Extraktionseffektivität durch die Elektrolyseeinbauten auftritt. Z.Zt. wird eine Titan-Elektrolyse-Kolonne zum Uran-Test vorbereitet. Abb. 12 zeigt ein Foto dieser Kolonne während des Aufbaues. Unten und oben im Bild sind die geflanschten Titan-Rohrabschnitte erkennbar. In der Mitte ist die Elektrodenkonstruktion mit den Siebböden sichtbar. Aus Montagegründen wurde eine geflanschte Konstruktion für die Versuchskolonne gewählt; die Kolonne kann selbstverständlich auch in vollverschweißter Konstruktion ausgeführt werden.

Bisher wurden Pulskolonnen bis zu einem Durchmesser von nur 100 mm getestet. Durch Stromdichteverteilungsexperimente an einer Modellzelle konnte jedoch nachgewiesen werden, daß für Kolonnendurchmesser, wie sie in einer 1500 jato Anlage installiert werden, keine scale-up Probleme zu erwarten sind (4).

Abbau von Nitraten und Oxalsäure durch Elektrolyse (1,11)

Trotz aller Bemühungen zur Minimierung der Prozeßchemikalien wird in einer Wiederaufarbeitungsanlage mittelaktiver Abfall anfallen. Hauptquelle dürften Dekontaminationslösungen sein. Diese Lösungen enthalten neben freier Salpetersäure Natriumnitrat und Komplexbildner. Vor der Verfestigung solcher Lösungen muß in jedem Fall die freie Salpetersäure zerstört werden. In der heutigen Betriebspraxis wird die freie Säure durch Neutralisation mit Natronlauge gebunden. Es wird also zusätzlich Salz gebildet, das eine Belastung der Prozeßökonomie darstellt. An der chemischen Denitrierung mit Ameisensäure wird seit längerer Zeit gearbeitet. Die Reaktionsprodukte dabei sind Wasser, Kohlendioxid und NO_x . Neben nicht vernachlässigbaren Korrosionsraten im Reaktor verläuft die Reaktion schon bei einer Restkonzentrationen von 0,3 M/l HNO_3 nur noch sehr langsam.

In Laborzellen wurden mit Elektroreduktion Ergebnisse erzielt, die einige Vorteile dieses Verfahrens gegenüber der chemischen Reduktion erwarten lassen. Als Kathodenmaterial hat sich Graphit als vorteilhaft erwiesen. Auch bei diesem Verfahren kann auf ein Diaphragma verzichtet werden. Als gasförmiges Reaktionsprodukt entsteht hauptsächlich Stickstoff. NO bzw. NO_2 entsteht nur in sehr geringen Mengen. Ein anderer Vorteil des Verfahrens ist damit gegeben, daß auch gebundene Nitrate reduziert werden können, was zumindest die Möglichkeit eröffnet, Natronlauge, die als Dekontaminationslösung verwendet wird, teilweise zu rezyklieren. Nachteilig ist die Bildung von Ammoniumionen, die intermediär bei dem Prozeß entstehen. Abb. 13 zeigt eine Graphitzelle, die z.Zt. noch in "kalten" Experimenten getestet wird. In der Mitte des Bildes ist der Graphitkörper mit den mäanderförmigen Kanälen zu sehen, in die der unten im Bild sichtbare Anodenkamm eingesetzt wird. Die

Zelle ist für einen Durchsatz von ein bis zwei Liter mittelaktivem Abfall ausgelegt und hat einen Anschlußwert von 150 A. In Zusammenarbeit mit der DECHEMA wird an der Entwicklung einer Zelle mit einer "Schüttbettkathode" (12) aus Graphitpartikeln gearbeitet. Durch die leichtere Austauschbarkeit solcher Elektrodenbetten sollten Probleme, die durch Niederschläge und Verschmutzungen entstehen, besser bewältigt werden können.

In Laborzellen verschiedener Konstruktion konnte auch die Zerstörung von Oxalsäure in salpetersauren Lösungen erfolgreich demonstriert werden. Oxalsäure fällt im Purex-Prozeß bei der Regenerierung der Silikagelsäulen zur Uranfeinreinigung und bei der Fällung von Plutonium an. Vor der Rezyklierung in den Prozeß muß diese Oxalsäure abgebaut werden. Bei einfachem thermischen Abbau würden in den verwendeten Verdampfern durch die Oxalsäure schwer beherrschbare Korrosionsprobleme auftreten; außerdem sind große Verweilzeiten im Verdampfer erforderlich.

Schlußfolgerungen

Der industrielle Einsatz der beschriebenen Entwicklungen würde es ermöglichen, den weitaus größten Teil des kontinuierlich anfallenden mittelaktiven Prozeßabfalls in eine hochaktive und eine leichtaktive Fraktion aufzuspalten. Erstere kann ohne wesentliche Volumenvergrößerung dem hochaktiven Abfall zugeschlagen werden, während letztere Fraktion als praktisch inaktiv ohne zusätzliche Belastung in die Biosphäre entlassen werden kann. Neben dem ökonomischen Vorteil ergibt sich durch diese Verfahrensweise aus unserer Sicht auch ein Vorteil für die Endlagerung, weil der größte Teil des Abfall-Plutoniums damit dem stabilen Verfestigungsprodukt Glas zugeführt würde.

In der Abb. 14 ist das Potential der neuen Verfahren in einem, der Abb. 1 vergleichbarem Bilanzschema zusammengefaßt. Es entfallen die Redoxmittel und der mittelaktive Abfall, weil der nach der Aufkonzentrierung kleine Massenstrom nun ökonomisch vertretbar dem hochaktiven Abfall zugeführt werden kann.

Welche der vorgeschlagenen neuen Techniken zu welchem Zeitpunkt industriell angewendet werden können, hängt von ihrem Dauertest unter realistischen Betriebsbedingungen ab. Ein elektrolytischer Mischabsetzer zum Einbau in den zweiten Plutoniumzyklus der WAK befindet sich z.Zt. im Testbetrieb. Wir hoffen, daß der Einbautermin 1978 gehalten werden kann. Die beschriebene Pulskolonne aus Titan, die etwa einem Viertel des Durchsatzes des zweiten Plutoniumzyklus einer 1500 jato Anlage entspricht, wird in dem noch in Errichtung befindlichen Plutonium-Teststand in der GfK betrieben werden. Für die Plutonium-Uran-Trennung hoffen wir, einen Test möglichst für eine 1:1-Kolonne in der TEKO zu finden. Der elektrochemische Abbau von Nitraten soll in der Abfallbehandlungsanlage der GfK in einem bypass am MAW-Verdampfer getestet werden. Für die Elektrooxidation von Oxalsäure ist ein Versuchsaufbau in Handschuhkästen bei der GfK vorgesehen.

Literatur

- (1) H. Schmieder, H. Goldacker, K.L. Huppert
in: "Chemie der nuklearen Entsorgung", Thiemig Taschenbuch,
im Druck
- (2) L. Finsterwalder, H. Hausberger
GWK, Techn. Berichte
- (3) W. Bähr et al.
Interner Bericht, Ges. f. Kernforschung (1977)
- (4) H. Schmieder, F. Baumgärtner, H. Goldacker, H. Hausberger,
Ber. d. Ges. f. Kernforschung, KFK 2082 (1974)
- (5) H. Goldacker, H. Schmieder, F. Steinbrunn, L. Stieglitz
Kerntechnik 18, (1976) 426
- (6) Interner Bericht, Ges. f. Kernforschung (1977)
- (7) R.L. Walser
ARH-SA-69
- (8) W. Ochsenfeld, H.J. Bleyl, D. Ertel
DAtF, Reaktortagung, Düsseldorf (1976)
- (9) P. Patigny et al.
Intern. Solv. Extraction Conf., Lyon, Sept. 1974,
Proceedings Vol. 3
- (10) F. Baumgärtner, E. Schwind, P. Schlosser,
Deutsches Pat. Nr. OS 19 65 519 (6.8.1970)
US Pat. 3 730 851 (1.5.1973)
- (11) Interne Berichte, Ges. f. Kernforschung
- (12) G. Kreysa, E. Heitz, Chem. Ing. Techn. 48, (1976) 582

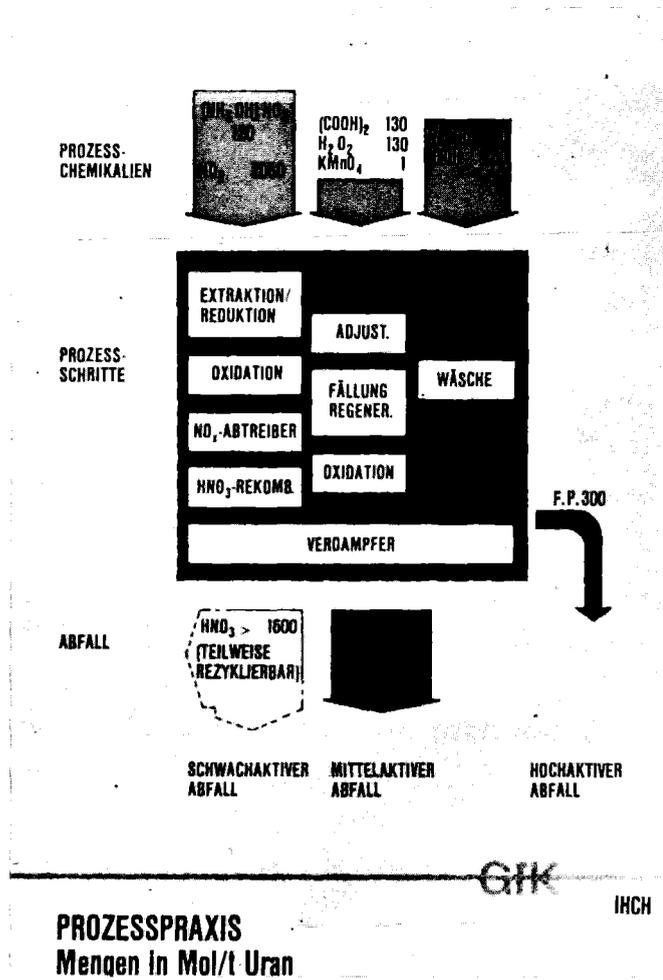


Abb. 1

WAK	NO ₂	Behälterbegasung	>15-fach stöchiometrisch	≤10 ⁻¹ (Luftspüfung notwendig)
Eurochemic	NO ₂	Begasungskolonnen Desorption des NO ₂ -Überschusses	> 4-fach stöchiometrisch	≤10 ⁻¹ (Luftspüfung notwendig)

* bezogen auf Hydrazin
** geschätzt

Vergleich der Oxidationsverfahren für wässrige Plutoniumproduktlösungen.

Abb 2

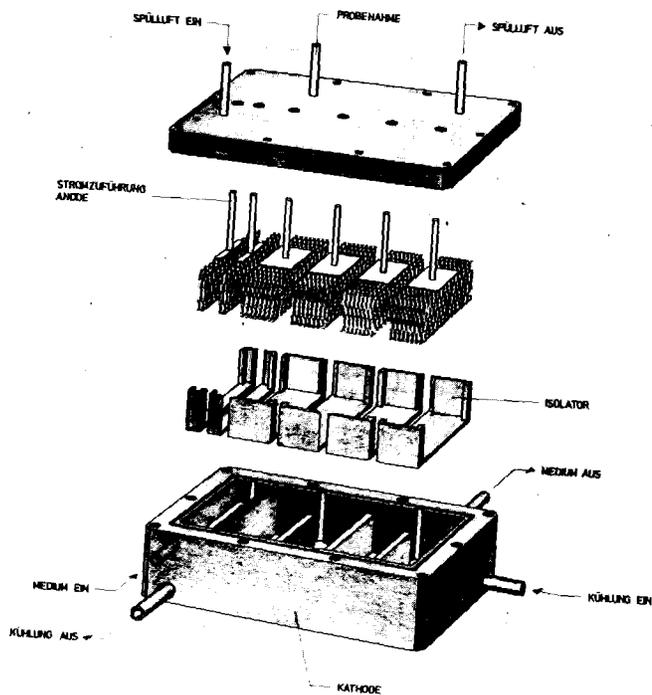


Abb. 3

ELEKTRO-OXIDATIONSZELLE

GFK, INST. F. HEISSE CHEMIE

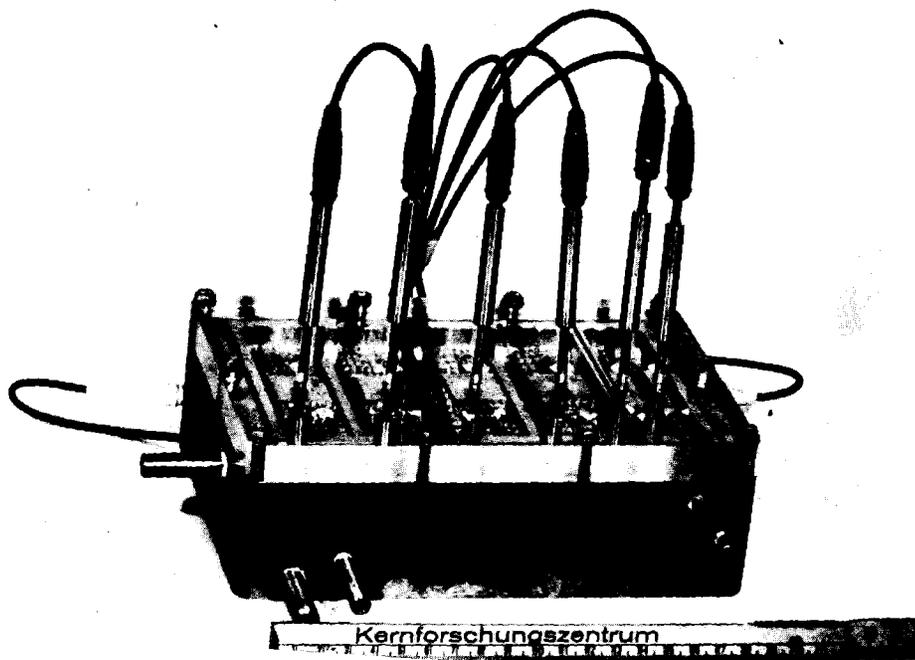


Abb. 4



Abb. 5

Rohsolvent, 30 V-%			Waschlösung	
U (g/l)	UO_2 (mCl/l)	UO_2 (mCl/l)	Na_2CO_3 (Mol/l)	N_2H_4 (Mol/l)
0.37	0.2	6.5	0.5	—
1.25	0.5	6.6	—	1.3
1.12	0.18	4.4		1.17* 0.63**

*Mischabsetzer I; **Mischabsetzer II, in Reihe geschaltet

Flußverhältnis: $Q_0/Q_2 = 20$; $[\text{HNO}_3]_0 = 0.013-0.02$ Mol/l; mittlere Kontaktzeit ca. 6 min. für die organische Phase

Ergebnisse der Waschversuche mit Solvent aus der WAK und MILLI in Mischabsetzern

IHCH

Abb. 6



Abb. 7

	Pu/U-Trennung	U- ²³⁵	Wiederertrag			
			~ 7 10%		> 20	
	Pu-Rückwäsche	verflüchtigt HNO ₃	Wiederertrag	empfindlich auf andere Stoffe	-	20%
			~ 8 10%			
Verfahren	Pu/U-Trennung	U- ²³⁵	Faktor	100-1000	< 20	
	Pu-Rückwäsche	verflüchtigt HNO ₃	Wiederertrag	> 100%	-	< 20%
			~ 9 10%			

*bezogen auf
Uran-(VI)-Extraktion

¹⁾ bei 0.6% Pu im Brennstoff
²⁾ nach Fließschema-Angabe
³⁾ bei 0.7% Pu im Brennstoff

⁴⁾ bei 5% Pu im Brennstoff
⁵⁾ bei 23% Pu im Brennstoff
⁶⁾ annähernd oberer Grenzwert

IHCH

Vergleich der Verfahren zur U/Pu-Trennung und Pu-Rückwäsche.

Abb. 8

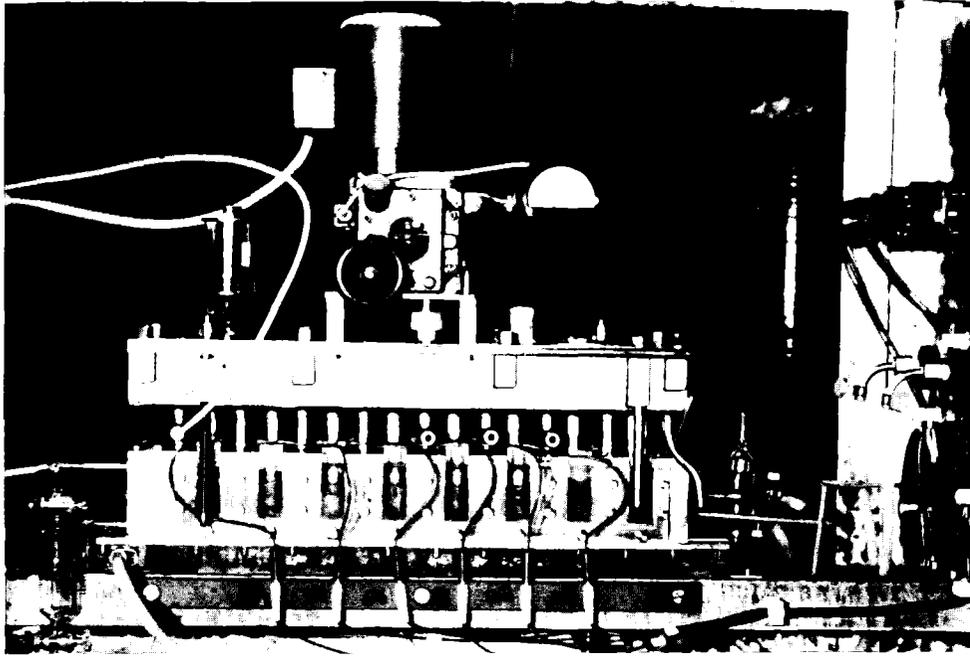


Abb. 9

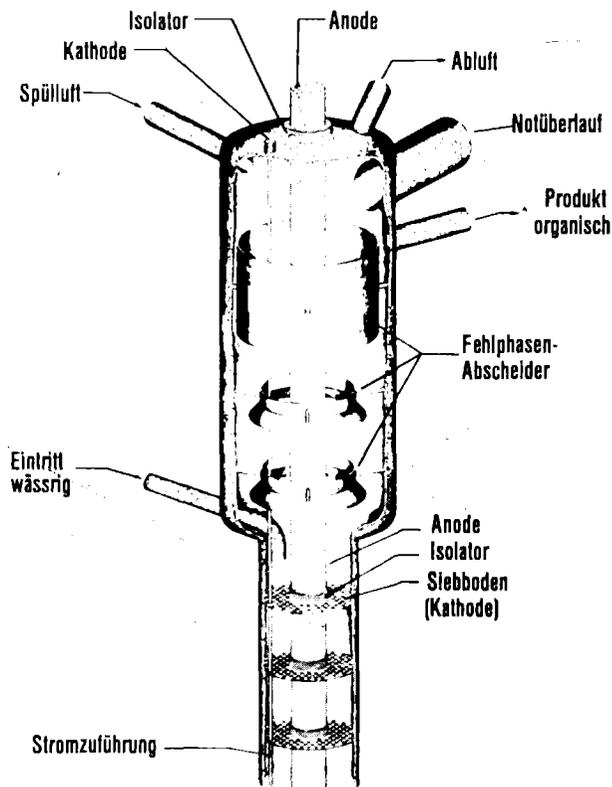


Abb. 10

Elektrolytische, gepulste Siebbodenkolonne, (ELKE)

IHCH

ELKE	1,3	13	~ 15°	HTS** ~ 80 cm
------	-----	----	-------	------------------

*gerechnet auf maximalen Durchsatz (~ 40°C)
**bezogen auf Uran-Extraktion

IHCH

Vergleich der Uran-Kennwerte von Elektrolyse-Mischabsetzer (EMMA)
und Elektrolyse-Kolonne (ELKE).

Abb. 11

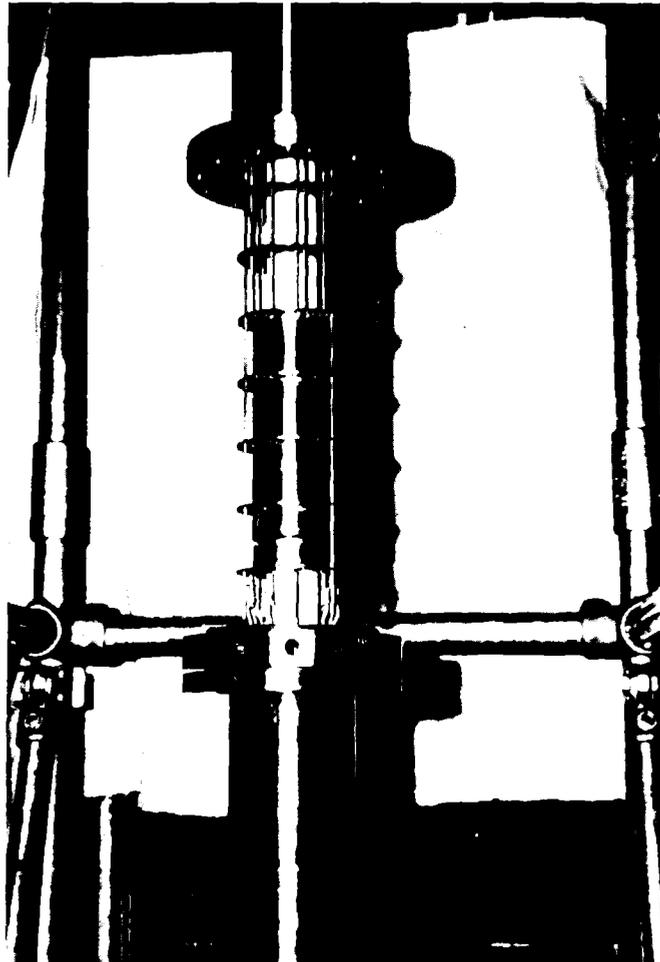


Abb. 12



Abb. 13

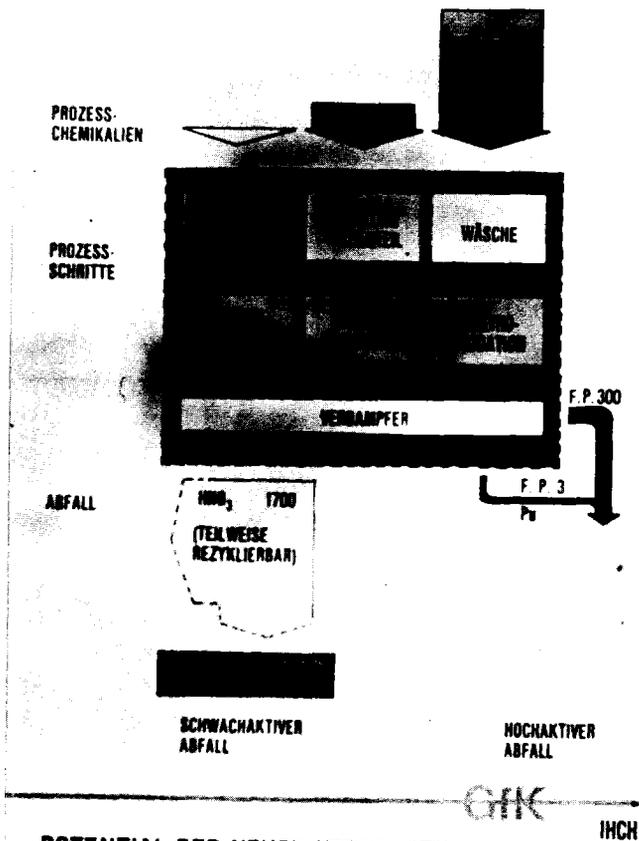


Abb. 14

POTENTIAL DER NEUEN VERFAHREN
Mengen in Mol/t Uran

Überarbeitete Fassung des Vortrages zum PWA-Status-Bericht
am 18.11.1977

Aufgaben zur Optimierung des Head-ends für
die deutsche Wiederaufarbeitungsanlage

von K.D. Kuhn und P.Kunze

Das Thema dieser Ausarbeitung enthält drei Begriffe, die einer Erläuterung bedürfen, mit der gleichzeitig der Rahmen abgesteckt wird, in dem sich die Ausführungen bewegen werden.

Unter Aufgaben sind hier nur solche zu verstehen, die im Rahmen von F+E-Arbeiten der GfK oder in Zusammenarbeit mit der GfK bearbeitet werden. Überlegungen, die rein ingenieurtechnischer Natur sind und zwischen Planern und beteiligten Ingenieurfirmen diskutiert werden, sind nicht Thema dieser Abhandlung.

Optimierung heißt im Rahmen der folgenden Darstellung:

- Verbesserung der im Head-end angewendeten Verfahren und der eingesetzten Apparate aufgrund tiefer gehender Kenntnisse oder längerer Betriebserfahrungen und
- Anpassung des Planungsstandes an neue Ergebnisse aus laufenden F+E-Vorhaben.

Es ist die Frage zu stellen, warum Optimierung gerade im Head-end? Die Beantwortung dieser Frage führt zur Klärung des 3.Begriffes nämlich dem "Head-end" (s.Bild 1).

Eine Anlage zur Aufarbeitung von abgebrannten Brennelementen entspricht einer chemischen Anlage, in der radioaktives Material in großen Mengen hantiert wird. Der Aufarbeitungsprozeß selbst ist ein chemischer Prozeß, dem mechanische Verfahrensschritte vorgeschaltet sind. Diese mechanischen Verfahrensschritte befinden sich in der Eingangsstufe der Wiederaufarbeitungsanlage dem Head-end. Man versteht darunter (s. Bild 2) die Verfahrensschritte: Entladen und Lagern der Brennelemente, Zerlegen und Auflösen mit den dazugehörigen Nebeneinrichtungen, wie Abgasbehandlung und Hülsenbehandlung, sowie Klären und Bilanzieren der im Auflöseprozeß erhaltenen Feedlösung. (Das System der Abgas-Behandlung ist bereits an anderer Stelle behandelt worden (L1)).

Wie aus Bild 2 zu ersehen ist, stehen einem im Prinzip einfachen chemischen Vorgang, nämlich der Auflösung von UO_2 in HNO_3 , mehrere mechanische Verfahrensschritte gegenüber.

Bei dem hohen Stand der Ingenieurtechnik in Deutschland liegt es auf der Hand, daß für diese mechanischen Arbeitsschritte zahlreiche Alternativen entwickelt werden, deren Diskussion und objektive Wertung mit zu den Aufgaben der Optimierung zählen. Zahlreiche F+E-Vorhaben des PWA liefern hierzu Daten und Unterlagen, die erst diese objektive Wertung ermöglichen.

Zur Darstellung der Aufgaben ist es notwendig, das Konzept des Head-ends für die deutsche Wiederaufarbeitungsanlage anhand des derzeitigen Planungsstandes kurz darzustellen (s. Bild 3).

Verfolgt man den Weg eines Brennelements vom Lagerbecken bis hin zur Auflösung, so kann man der Reihe nach alle Verfahrensschritte, denen das Brennelement im Head end unterworfen ist, betrachten.

Eine Transportmaschine befördert die Brennelemente vom Lagerbecken zu einer Position, die direkt unter der Einschleusöffnung im Boden der darüber liegenden Zerlegezelle liegt. Der Zellenkran zieht die Brennelemente einzeln in die Zelle. Hier werden sie in das waagerechte Magazin der Bündelschere übergeben. Die Schere dient dazu, die Brennelemente als ganzes Bündel in kurze Stücke von 2-5 cm Länge zu zerschneiden, nachdem mit derselben Schere zunächst ein Endstück abgetrennt wurde. Beim Schneidvorgang werden alle Stäbe so geschnitten, daß offene Schnittflächen für den Säureangriff auf den Brennstoff vorhanden sind. Die Schere zerschneidet 8 DWR- bzw. 20 SWR-Brennelemente pro Tag und erreicht damit eine Leistung von 4 t Brennstoff pro Tag. Sie verfügt darüber hinaus noch über eine erhebliche Leistungsreserve.

Unter der Zerlegezelle befindet sich die Auflöserzelle. Die abgeschnittenen Stabstücke fallen, wie auch die Brennelementendstücke, über einen Verteiler in die Körbe der einzelnen Auflöser, die eine Kapazität von 2 t pro batch besitzen. In den Auflösern findet der chemische Aufschluß des Spaltstoffs aus den Hülsenabschnitten mit HNO_3 statt. Es wird in die 80-90 °C heiße Säure geschnitten, so daß die Auflösung bereits während des Füllens des Korbes beginnt. Nach Beendigung des Auflösevorgangs wird die Lösung in den Pufferbehälter vor der Klärzentrifuge gefördert. Die Ausförderung aus dem Auflöser ist dabei so konstruiert und installiert, daß alle ungelösten, in den Auflöser gelangten Partikel sicher ausgetragen werden.

Anschließend erfolgt eine Nachauflösung in frischer Säure, um die letzten Brennstoffreste vollständig aus den Hülsen zu entfernen. Diese Nachauflösung findet bei Normalbetrieb im

Hauptauflöser statt, um die mechanischen Handhabungsschritte mit dem Korb zu minimieren. Wenn die Auflöser eine höhere Kapazität liefern sollen, werden die separaten Nachauflöser eingesetzt.

Der Nachauflösung schließt sich das Spülen der Hülsen im Korb an. Der Korb mit den Hülsen und dem Strukturmaterial wird danach in die separate, abgeschirmte Position des Hülsenmonitors eingesetzt und auf Brennstoffreste untersucht. Aus der Meßposition des Hülsenmonitors übernimmt der Brückenkran den Korb und befördert ihn über den Hülsensammelbehälter, wo der Korb entleert wird.

Nach beendeter Auflösung wird die Uranlösung von ungelösten Partikeln durch Zentrifugieren oder Filtrieren befreit. Anschließend wird eine chemische Analyse und eine Volumensmessung im Bilanzierungstank durchgeführt.

Die Klärung der Auflöserlösung wird vorgenommen, um die bei jeder Auflösung verbleibenden Rückstände, den Feedklärschlamm, abzutrennen. Diese Abtrennung ist erforderlich,

- um hydraulische Störungen in den weiteren Prozeßschritten aufgrund von Ablagerung dieser Rückstände zu verhindern,
- um eine genaue Bilanzierung einer homogenen Lösung im Bilanzierungstank durchführen zu können und
- um Störungen durch Radiolyse, die durch die hochaktiven feinen Partikel des Auflöser-schlamm hervorgeufen werden können, zu minimieren.

Der Zentrifugenrückstand wird nach dem Zentrifugieren in den Schlammbehälter gespült. Über einen Monitor wird der Schlamm auf etwaige Brennstoffreste untersucht.

Einer der Schwerpunkte, an denen Optimierungsüberlegungen einsetzen müssen, ist das Zerschneiden der Brennelemente (Bild 4).

Prinzipiell gibt es dafür zwei Möglichkeiten:

- entweder - wie in der WAK - mit der bewährten Einzelstabschere nach dem Herausziehen einzelner Stäbe aus dem Brennelementbündel
- oder mit einer Bündelschere.

Wie Bild 5 zeigt, sind alle aufgeführten ausländischen Wiederaufarbeitungsanlagen mit Bündelscheren ausgerüstet. Trotz der - im Vergleich zum Durchsatz der geplanten Anlage - geringen Betriebserfahrung, geht die Planung für die deutsche Anlage von einer Bündelschere aus, da nur mit ihr die geforderte Leistung erreichbar ist. Daneben gilt, daß für LWR-Brennelemente kein anderes mechanisches oder chemisches Aufschlußverfahren bekannt ist, mit dem mehr Brennelemente verarbeitet wurden als mit einer Bündelschere. Kritische Punkte, die einer Optimierung und weiterer Tests bedürfen, sind: die Gestaltung des Scherenmessers, die Scherenlagerung, die Dekontaminationsmöglichkeiten sowie die Reduktion der Staubablagerung. Zur Durchführung dieser Tests wird für die TEKO ein Versuchsstand für eine Bündelschere geplant.

Das Hauptgewicht der Arbeiten liegt zur Zeit auf der Konzipierung der Schere selbst. Alle bisher eingesetzten Bündelscheren sind Einzelfertigungen, die den jeweiligen Anlagen-

verhältnissen angepaßt waren. Die beiden zur Zeit in heißer Erprobung befindlichen Geräte in La Hague und Tokai Mura sind französische Entwicklungen. Die in England erprobte Windscale-Schere und die für Thorp in der Planung befindliche Schere sind englische Entwicklungen. Diese Situation führte zu der Überlegung, für die deutsche Anlage - auf Basis der gesammelten Wiederaufarbeitungs-Erfahrungen - das vorhandene ingenieurtechnische Potential zu nutzen und zusammen mit einer deutschen Firma ein entsprechendes Gerät zu konzipieren. Dieses deutsche Know-how beruht auf den umfangreichen Erfahrungen mit dem Bau und Betrieb von Schrottscheren, die sich in ihrer Grundkonzeption - abgesehen von den kerntechnischen Besonderheiten - nicht von einer Bündelschere unterscheiden.

Von den erwähnten Versuchen mit der Schere haben einige Untersuchungen erhebliche sicherheitstechnische Bedeutung, da sie zu dem Komplex "Verhinderung von Zircaloybränden" gehören. Die Ergebnisse von zahlreichen Testprogrammen - bestätigt durch Erfahrungen aus existierenden Wiederaufarbeitungsanlagen - zeigen, daß Zircaloy nur dann ein Entzündungsrisiko beinhaltet, wenn das Hüllmaterial in hinreichend fein verteilter Form vorliegt. Massive Hüllrohrabschnitte sind eine stabile Form der Lagerung, wie sie seit längerer Zeit in Windscale, NFS und auch in La Hague unter Wasser praktiziert wird bzw. wurde. Bis jetzt ist es in keiner Wiederaufarbeitungsanlage für oxidische Brennstoffe zu einem Zircaloybrand der Hülsen gekommen. In der NFS vorgekommene Brände geschahen beim Auflösen von metallischem Uranbrennstoff, der sich in Zircaloyhüllen befand, in hochkonzentrierter HNO_3 .

Bezüglich fein verteiltem Zircaloy zeigten Versuche, daß sich Zirkonpulver nicht entzünden läßt, wenn es mit einem inerten Material (z.B. Sand) über das Siebenfache seines eigenen Volumens verdünnt wird (L2). Aus diesem Grund erscheint eine Brandgefahr im Betriebsbereich zwischen Lagerbecken und Auflöser sehr unwahrscheinlich, denn bei einem geschnittenen Brennelement beträgt das Verhältnis der Zirkonspäne zum UO_2 nur etwa 400 ppm. Das Zirkon ist damit durch ein Material geschützt, das eine hohe thermische Kapazität aufweist und nicht mit dem Zirkon reagiert. Auch im Feedklärschlamm ist mit einer sicheren Verdünnung von $>10 : 1$ der Zircaloyteilchen zu rechnen. Untersuchungen zur Bestätigung dieser Sachlage, die zur Zeit im Rahmen des PWA in Zusammenarbeit mit der WAK laufen, gewinnen noch an Bedeutung durch den Wunsch der RSK, der im Rahmen der Empfehlung zur sicherheitstechnischen Realisierbarkeit des Entsorgungszentrums ausgesprochen wurde, daß zu den Punkten Entzündbarkeit des Feedklärschlammes und Brandgefahr des Zircaloy weitere Arbeiten durchgeführt werden sollen.

Da der Auflöser direkt mit der Schere gekoppelt ist, muß seine Konstruktion auf das jeweilige Scherenkonzept abgestimmt sein. Das beeinflusst die Überlegungen zur Kritikalitätssicherheit des Auflösers, die einen wesentlichen sicherheitstechnischen Aspekt des Head-ends darstellen (Bild 6).

Der Auflöser besteht aus dem Auflöserrohr und dem Auflöser-tank (s. Bild 7). Er ist für die Auflösung von Brennelementen ausgelegt, die einen Abbrand von etwa 36.000 MWd/t Uran und damit eine der Anfangsanreicherung von 4 % U-235 entsprechende Restanreicherung von $\leq 1,8$ % U-235 äquivalent haben.

Diese Festlegung von Abbrand und Erstanreicherung der eingebrachten Brennelemente und der vollständige Austrag des Spaltstoffes (d.h. keine Spaltstoffakkumulation im Auflöser) sind die Randbedingungen für die Kritikalitätssicherheit des Systems. Die Einhaltung der Randbedingungen muß durch Überwachung der Spaltstoffbilanz sichergestellt werden. Dies geschieht eingangsseitig durch Ermittlung des Restspaltstoffgehaltes der angelieferten Brennelemente. Zwei Methoden können dafür angewandt werden, die administrative Kontrolle durch eine sogenannte Lebenslaufkarte der Brennelemente und die meßtechnische Kontrolle durch einen Monitor, der den Restspaltstoffgehalt der Brennelemente registriert. Ausgangsseitig wird die Spaltstoffbilanz ebenfalls administrativ und meßtechnisch überwacht. Die administrative Maßnahme beruht auf einer Buchführung der eingesetzten Spaltstoffmengen und die meßtechnische auf der Bilanzierung und einer Kontrolle möglicher Spaltstoffakkumulationen durch einen weiteren Monitor.

Die Kritikalitätssicherheit des Systems basiert unter diesen Randbedingungen auf zwei unabhängig voneinander wirkenden Parametern:

- 1) der Geometrie des Auflöser in Verbindung mit Erstanreicherung und Abbrand der Brennelemente und
- 2) der homogenen Vergiftung der Lösesäure durch Gadolinium.

Jeder dieser beiden Kritikalitätsparameter hält für sich das System unterkritisch, etwa auf einem $k_{\text{eff}} < 0,9$. Erst nach Eintritt von zwei voneinander unabhängigen Ereignisabläufen, in diesem Falle also nach einem Versagen der beiden genannten Kritikalitätsparameter, wäre eine kritische Konfi-

guration denkbar. Aus diesen Betrachtungen ist ersichtlich, daß die homogene Vergiftung nur eine sekundäre redundante Sicherheitsmaßnahme ist.

Brennelementchargen, die den genannten Randbedingungen nicht genügen, müssen einer besonderen Behandlung unterworfen werden. Für diesen Fall könnte z.B. ein Korbeinsatz verwendet werden, der aufgrund heterogener Vergiftung den Anforderungen für nicht abgebrannte Brennelemente genügt. In gleicher Weise kann auch die Gadoliniumvergiftung der Lösesäure diesem Fall angepaßt werden. Bei der Anreicherung von 4 % U-235 ohne Abbrand ergibt sich dann eine Gadoliniumkonzentration von 2,7 g/l der Auflöserlösung. Dies entspricht einem Wert von 7,3 mg Gd/g Uran. Die Anwesenheit von Gadolinium in der Lösesäure wird durch einen Gadoliniummonitor überwacht.

Ansammlungen von ungelöstem Brennstoff außerhalb des Korbes können nicht auftreten, da die Brennelemente in die heiße Säure geschnitten werden und so die Lösereaktion sofort eintritt. Als zusätzliche Vorkehrung wird jedoch am Boden des Auflöserkessels ein Pu-Monitor als "Kritikalitätsmonitor" angebracht.

Zu erwähnen ist noch, daß das Konzept der homogenen Vergiftung mit Gadolinium sowohl in der Barnwellanlage als auch in den neuen Anlagen der Exxon und der BNFL vorgesehen ist.

Aus der oben gegebenen Darstellung des Kritikalitätskonzepts für die Auflösung lassen sich zwei Folgerungen ziehen:

- 1) Der Auflöser muß für seine Detailauslegung einer genauen Kritikalitätsberechnung unterworfen werden. Parallel hierzu laufen Überlegungen und Untersuchungen im Rahmen des PWA,

die Berechnungsgrundlagen und Alternativkonzepte liefern und bei ihrer Realisierung zu einer Minimierung des Verbrauchs an Gadolinium und damit zu einer geringeren Salzfracht im HAW führen können.

- 2) Eine weitere, noch wesentlichere Folgerung ist die Notwendigkeit der Entwicklung von betriebssicheren Monitoren, die die Sicherheit des Anlagenbetriebes deutlich verbessern können.

Zusammen mit den bereits erwähnten werden für die deutsche Anlage folgende Meßgeräte benötigt (s. Bild 8):

- Ein Spaltstoffmonitor zur Bestimmung des Spaltstoffgehaltes in abgebrannten Brennelementen
- Ein Vergiftungsmonitor für Gadolinium
- Ein Pu-Monitor zur Messung von Pu-Akkumulationen
- Ein Hülsenmonitor und
- Ein Schlammonitor, beide zur Messung von Brennstoffresten.

Sie gruppieren sich alle um den Verfahrensschritt Auflösung und sind auch zur Durchführung der Spaltstoffflußkontrolle wünschenswert. Zusammen mit den Messungen zur Bilanzierung ermöglichen sie die Bildung einer abgeschlossenen Bilanzzone um den Auflöser.

Im folgenden ist der Stand der Entwicklung kurz skizziert:

Die Überlegungen für den Spaltstoffmonitor im Rahmen des PWA sind soweit abgeschlossen, daß die Entscheidung für das Verfahren getroffen werden konnte. Ausgewählt wurde die Neutronenmultiplikationsmethode, deren kalte Erprobung kurz bevorsteht. Der Einbau eines Prototyps ist 1978 in der WAK geplant.

Die Arbeiten des PWA zum Gadoliniummonitor führten zur Auswahl eines Neutronenabsorptionsverfahrens. Auch hier sind kalte Versuche im Gange. Dieser Monitor kann - neben anderen Zwecken - auch zur Feststellung der Wirksamkeit einer heterogenen Vergiftung benutzt werden.

Als Pu-Monitor können ebenfalls Entwicklungen des PWA zur Anwendung kommen. Parallel hierzu ist der Einsatz der in der WAK seit zwei Jahren erfolgreich eingebauten Neutronenzähler zu erwägen (L3). Solche Zähler sind auch als Schlammonitore einsetzbar.

Als Hülsenmonitor wird ein γ -Monitor geplant, der auf der Messung der Pr-144-Aktivität beruht. Er wurde aufgrund von Versuchen des PWA entwickelt und wird zur Zeit in der WAK eingebaut. Ähnliche Monitore werden in Windscale, La Hague und Barnwell angewendet.

Ein weiterer Punkt, der im Rahmen der Optimierungsaufgaben eine große Rolle spielt, ist die Klärung der Auflöserlösung (s. Bild 9). Sie dient dazu, den Feedklärschlamm abzutrennen. Die chemische Zusammensetzung dieses Schlammes läßt sich auf vier Hauptgruppen zurückführen (s. Bild 10):

- nicht lösliche Spaltprodukte
- Brennstoffreste
- Brennstabreste
- Korrosionsprodukte

Das Bild zeigt den derzeitigen Stand unserer Kenntnisse (L2, L4, L5, L6). Zur besseren Beurteilung des chemischen Verhaltens von Feedklärschlamm sind jedoch ergänzende Untersuchungen im Rahmen des PWA und der WAK erforderlich. Dies gilt besonders im Hinblick auf den von der RSK ausgesprochenen

Wunsch nach weiteren Untersuchungen zum Thema Entzündlichkeit des Schlammes und zur Nachbehandlung des Schlammes für den Fall, daß der Anteil der Brennstoffreste zu hoch ist.

Die sich aus dieser chemischen Zusammensetzung ergebenden physikalischen Eigenschaften sind in Bild 11 dargestellt.

Hierbei ist besonders auf die Korngröße zu verweisen. Nach Untersuchungen der BNFL liegt der größte Anteil bei 2-5 μ m (L2). Zur Optimierung der Schlammabtrenneinrichtungen und der Behälter für seine Zwischenlagerung ist es unbedingt erforderlich, dieser Kenngröße erhöhte Aufmerksamkeit zuzuwenden, um weitere Information über das Sedimentationsverhalten zu bekommen, ein Wunsch, der auch von der RSK ausgesprochen wurde.

Zur Abtrennung von Feedklärschlamm sind in den bestehenden oder geplanten Anlagen Filter oder Zentrifugen zum Einsatz gekommen (s. Bild 12). Als Zentrifugen kamen bisher nur Vollmantelzentrifugen mit fliegend gelagerter Trommel, sogenannte Pendelzentrifugen, zum Einsatz. Solche Zentrifugen arbeiten mit 1000 Umdrehungen/min, wodurch eine Beschleunigung von 1000 g erreicht wird. Damit lassen sich Teilchen mit 4-5 μ m Korngröße abscheiden. Die notwendige Verbesserung der Abscheidung kann erzielt werden durch Erhöhung der Beschleunigung, wofür sich dieser Zentrifugentyp nicht ideal eignet. Besser einsetzbar für diesen Zweck sind sogenannte Dekanter oder Tellerseparatoren, für die jedoch keine Erfahrungen in kerntechnischen Anlagen vorliegen. Eine weitere Möglichkeit ist gegeben durch eine Erhöhung der Verweilzeit. Man kann dies erreichen durch ein Hintereinanderschalten von Zentrifugen. Mit dieser Erhöhung der Verweilzeit ist jedoch eine

Durchsatzverminderung verbunden, so daß der Einsatz von parallel geschalteten Zentrifugen erwogen werden muß.

Aus diesen grundsätzlichen Überlegungen ist ersichtlich, daß weitere Arbeiten zur Aufklärung des Kornspektrums und des Sedimentationsverhaltens des Feedklärschlammes erforderlich sind. Parallel dazu wird der schließlich ausgewählte Zentrifugentyp in einem Teststand geprüft, der zur Zeit für die TEKO konzipiert wird. In diesem Teststand lassen sich auch Filter auf ihre Eignung für die Großanlage untersuchen.

Vorstehende Ausführungen geben einen Eindruck, welchen Wert die F+E-Arbeiten des PWA für die Planung der Deutschen Wiederaufarbeitungsanlage haben, aber auch, welche Untersuchungen wünschenswert sind.

Unseren Mitarbeitern S.J.Booth und C.R.Jungmann danken wir für Ihre Mithilfe bei der Erstellung der Unterlagen für diesen Vortrag.

Abbildungsverzeichnis

- Bild 1: Verfahrensfließbild
- Bild 2: Verfahrensschema Head-end
- Bild 3: Head-end (schematisch)
- Bild 4: Verfahrensschritte im Head-end
- Bild 5: Übersicht über die bisher eingesetzten Scheren
- Bild 6: Verfahrensschritte im Head-end
- Bild 7: KEWA-Auflöser (2 t)
- Bild 8: Verfahrensschritte im Head-end
- Bild 9: Verfahrensschritte im Head-end
- Bild 10: Feed-Klärschlamm, Chemische Zusammensetzung
- Bild 11: Feed-Klärschlamm, Physikalische Eigenschaften
- Bild 12: Übersicht über die bisher eingesetzten Vorrichtungen zur Feedklärung

Literaturverzeichnis

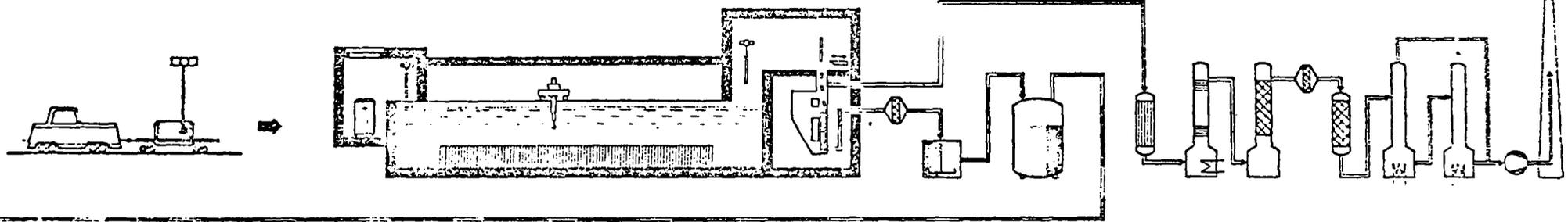
- L 1 : F. Baumgärtner
Stand der Technik bei der Behandlung des
Auflöserabgases einer Wiederaufarbeitungs-
anlage und Wege der Verfahrensoptimierung
PWA-Statusbericht 1977
- L 2 : BNFL
Public Inquiry 1977
Statement of B.F. Warner
- L 3 : Dr. Finsterwalder
Reaktortagung 1976
In-line-Messung von Plutonium durch
Neutronenzählung
- L 4 : Unveröffentlichte Ergebnisse der GfK, IHCh,
Versuche mit der MILLI-Anlage
- L 5 : Unveröffentlichte Untersuchungsergebnisse
der GWK aus Betriebsergebnissen der WAK
- L 6 : DPST-LWR-76-2-3, Quarterly Report III/1976,
Du Pont de Nemours and Co., Savannah River
Laboratory, Aiken S.C.

Brennelement - Empfang

Brennelement - Lager

Zerlegung und Auflösung

Abgasreinigung

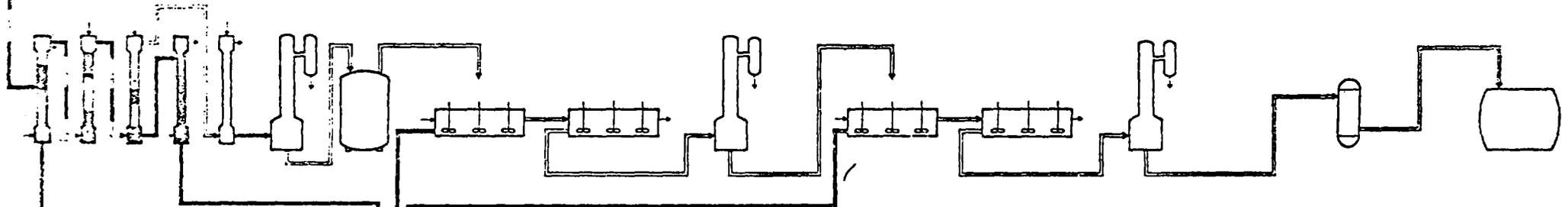


1. Extraktionszyklus

2. Uran - Zyklus

3. Uran - Zyklus

U - Tail - end



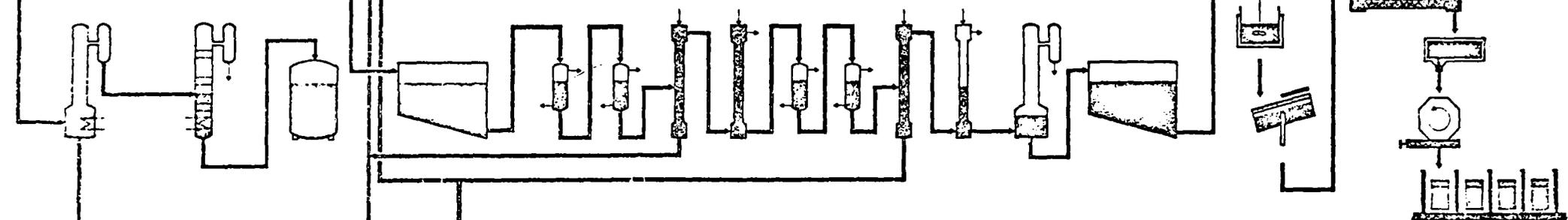
Spaltproduktkonzentrierung

Säurerückgewinnung

2. Pu - Zyklus

3. Pu - Zyklus

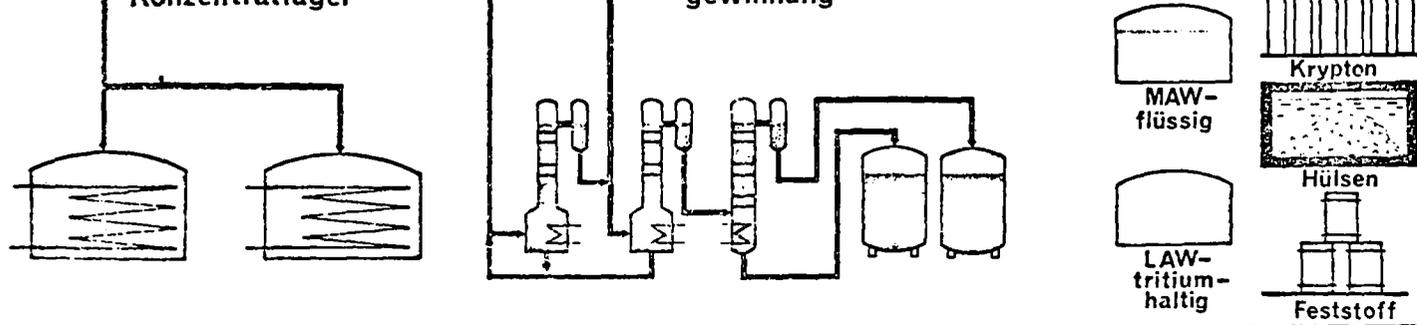
Pu - Tail - end



HAW-Konzentratlager

Säurerückgewinnung

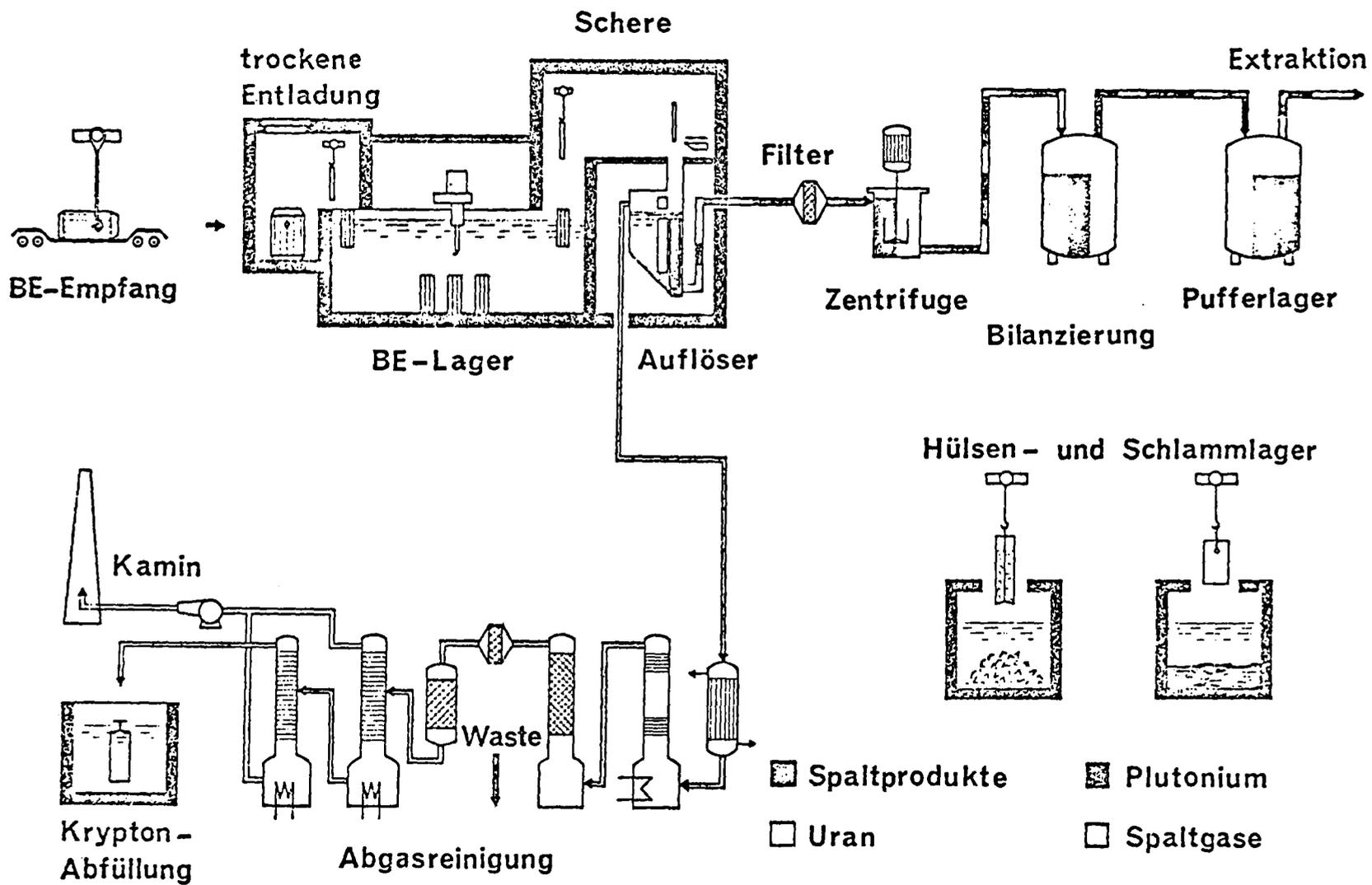
Abfall-Zwischenlager



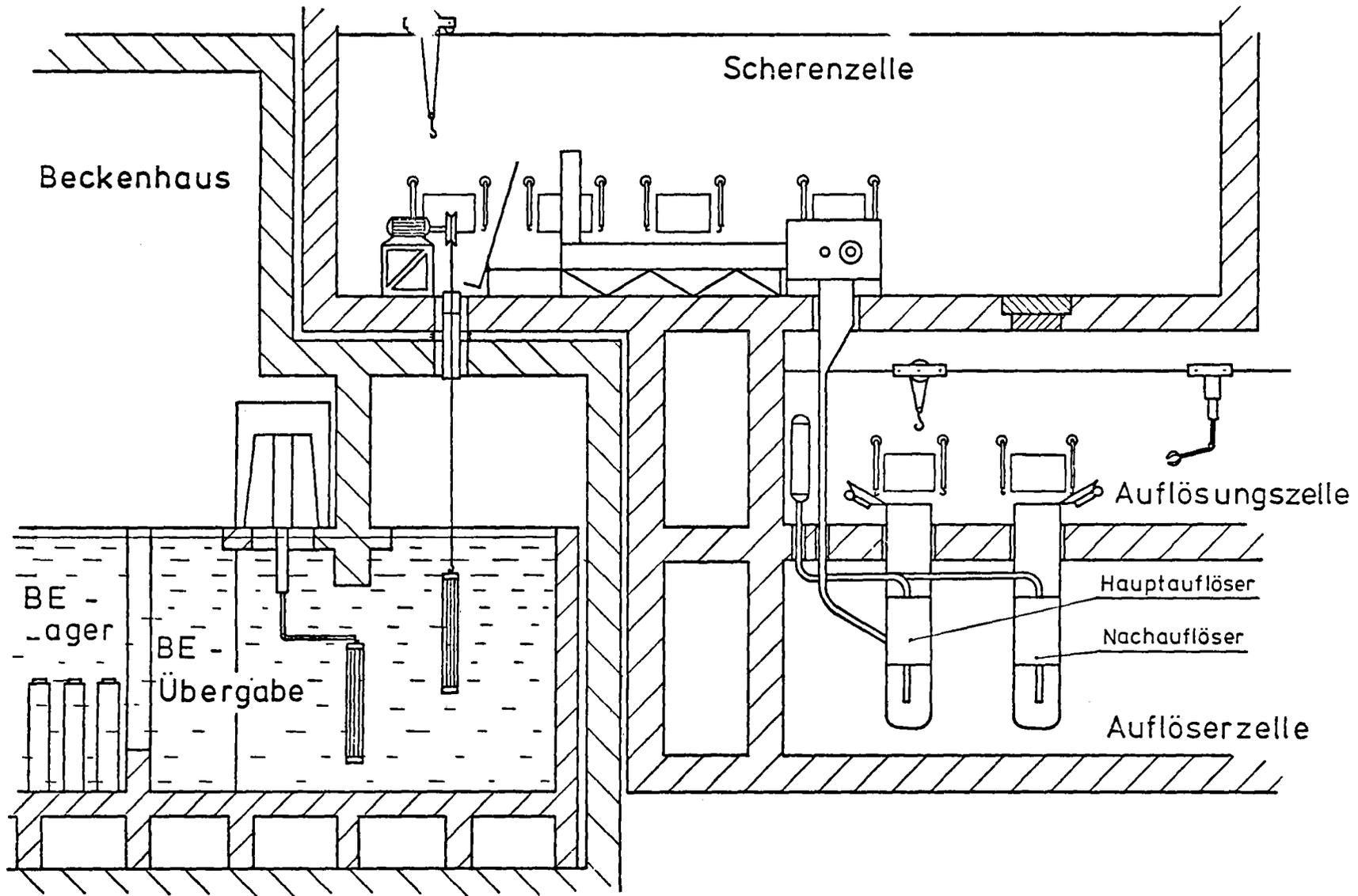
- | | | | |
|--|---------------|--|---------------|
| | Uran | | Salpetersäure |
| | Plutonium | | Spaltgase |
| | Spaltprodukte | | Wasser |

- LAW = Leichtaktiver Waste
 MAW = Mittlaktiver Waste
 HAW = Hochaktiver Waste

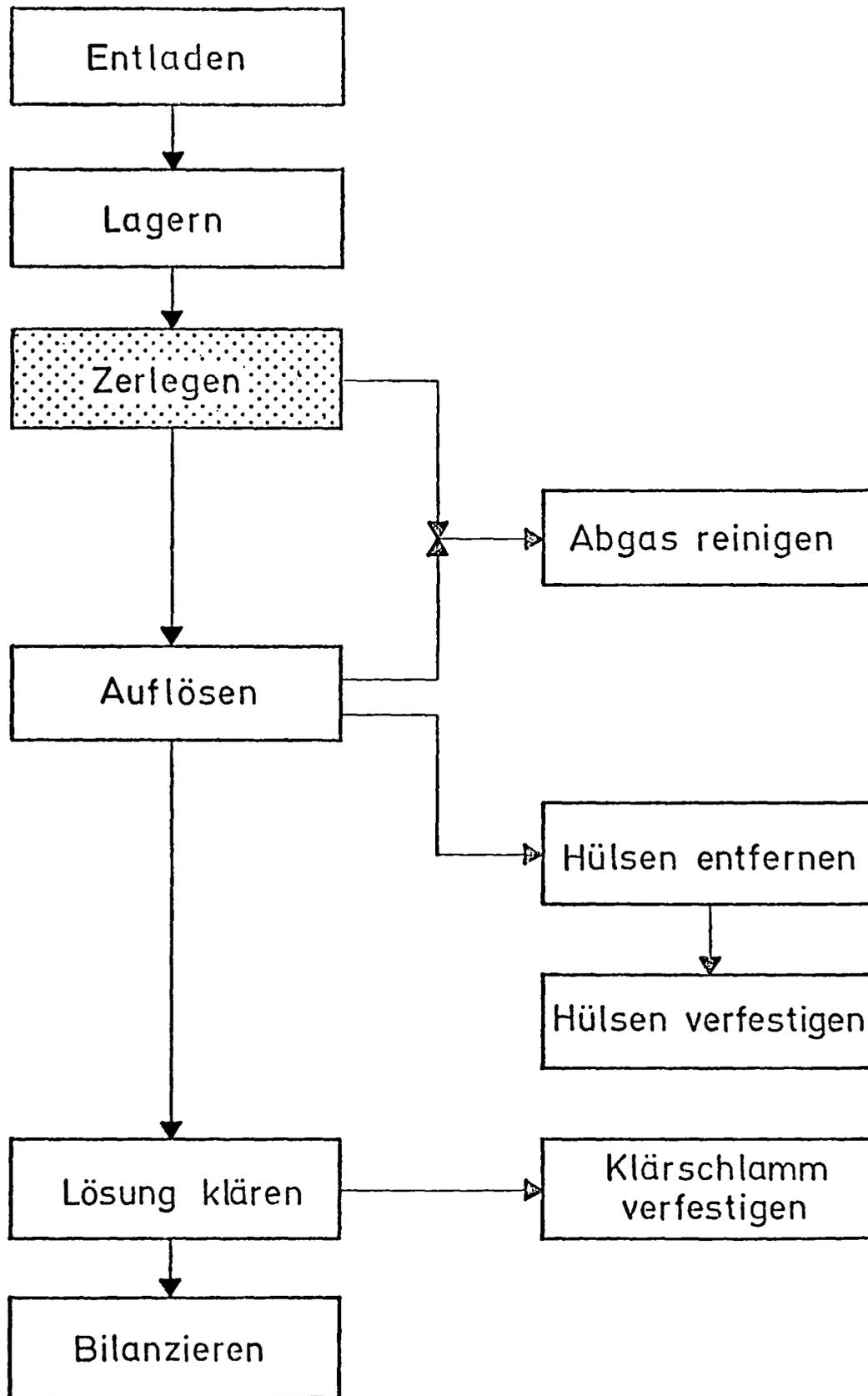
KEWA Verfahrensflißbild



KEWA | Verfahrensschema Head-end



KEWA	Head - end (schematisch)
-------------	--------------------------

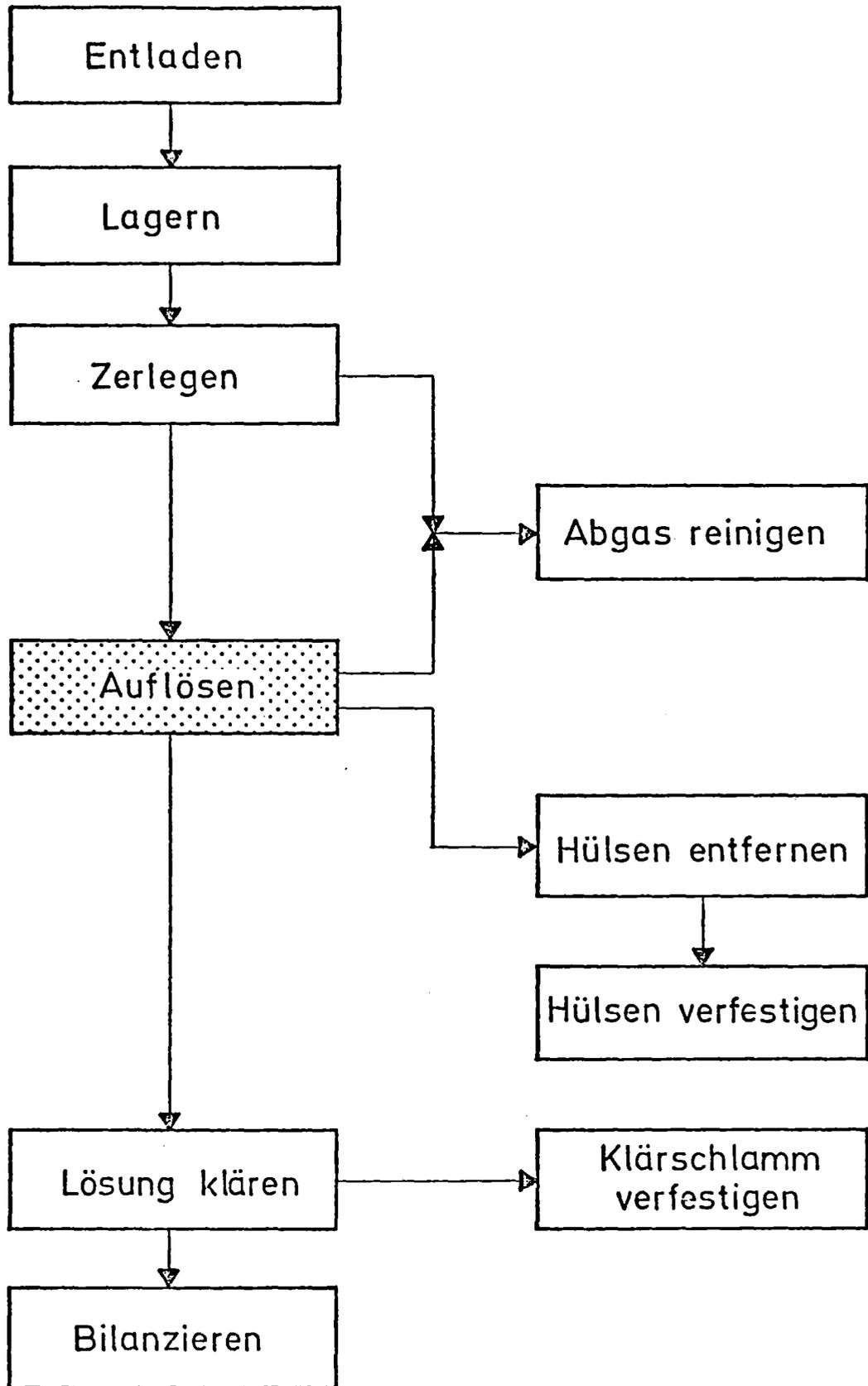


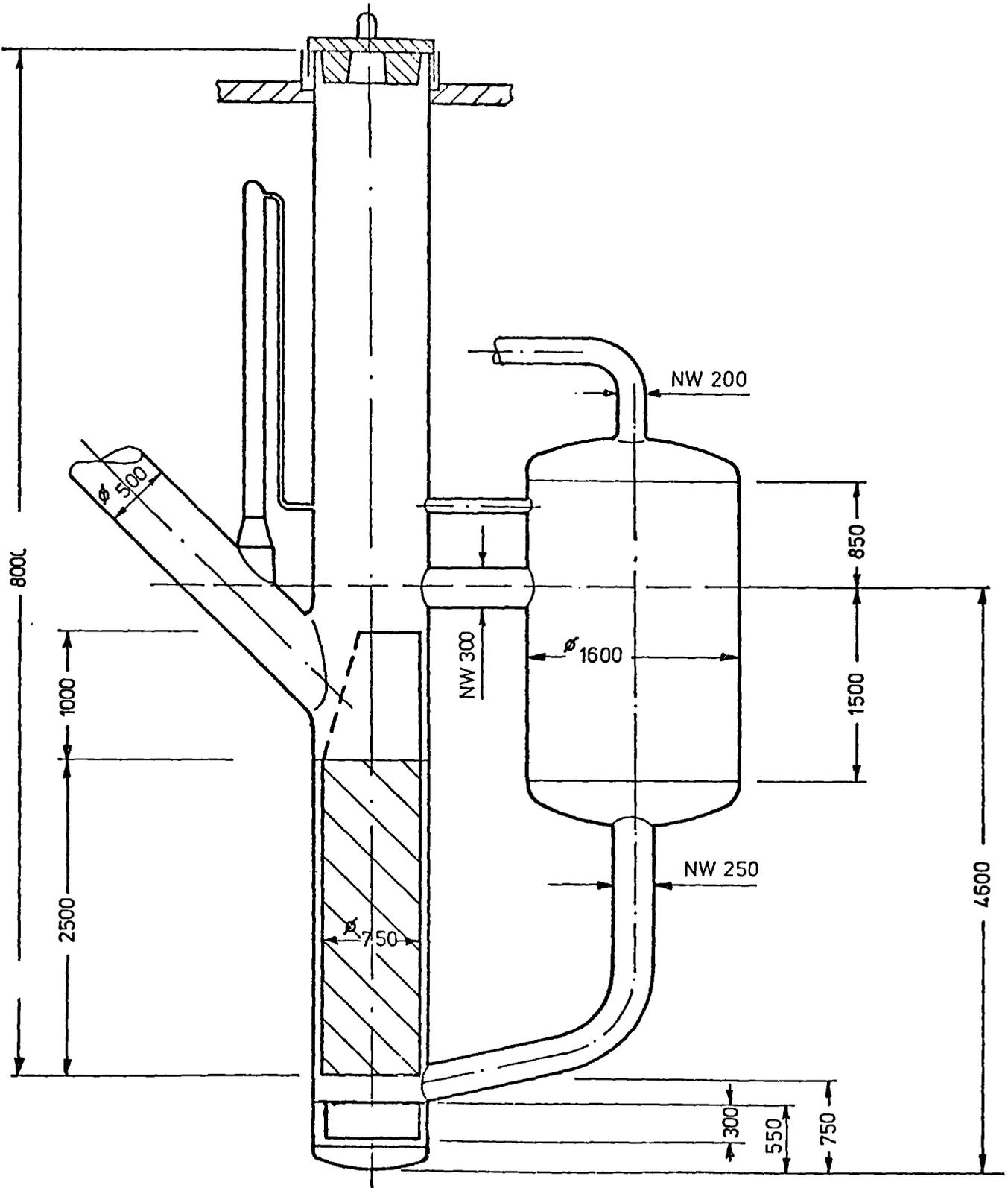
	Anlage		Scherenkraft (t)	durchgesetzte Menge (tU)
B	NFS	(USA)	300	630, davon 240 LWR
	Barnwell	(USA)	300	Kalter Betrieb
	Windscale	(GB)	250	120
	La Hague	(F)	200	15
	Eurex	(I)	150	Kalter Betrieb
	Tarapur	(IND)		in heißer Erprobung
	Tokai Mura	(JAP)	240	in heißer Erprobung
	Thorp	(GB)	450	in Entwicklung
	Eurochemic	(B)		in Planung
E	WAK	(D)		70

B = Bündelschere

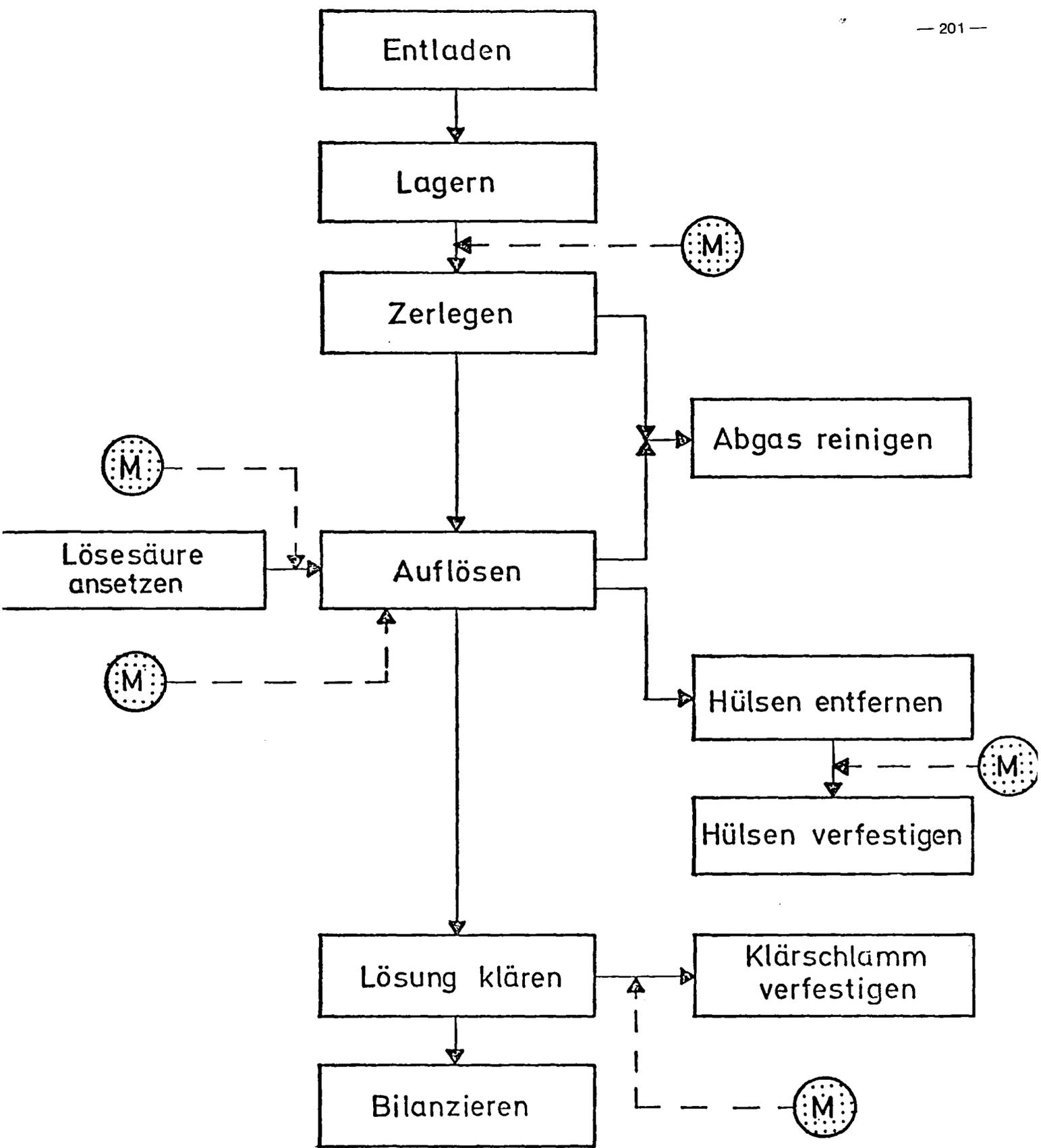
E = Einzelstabschere

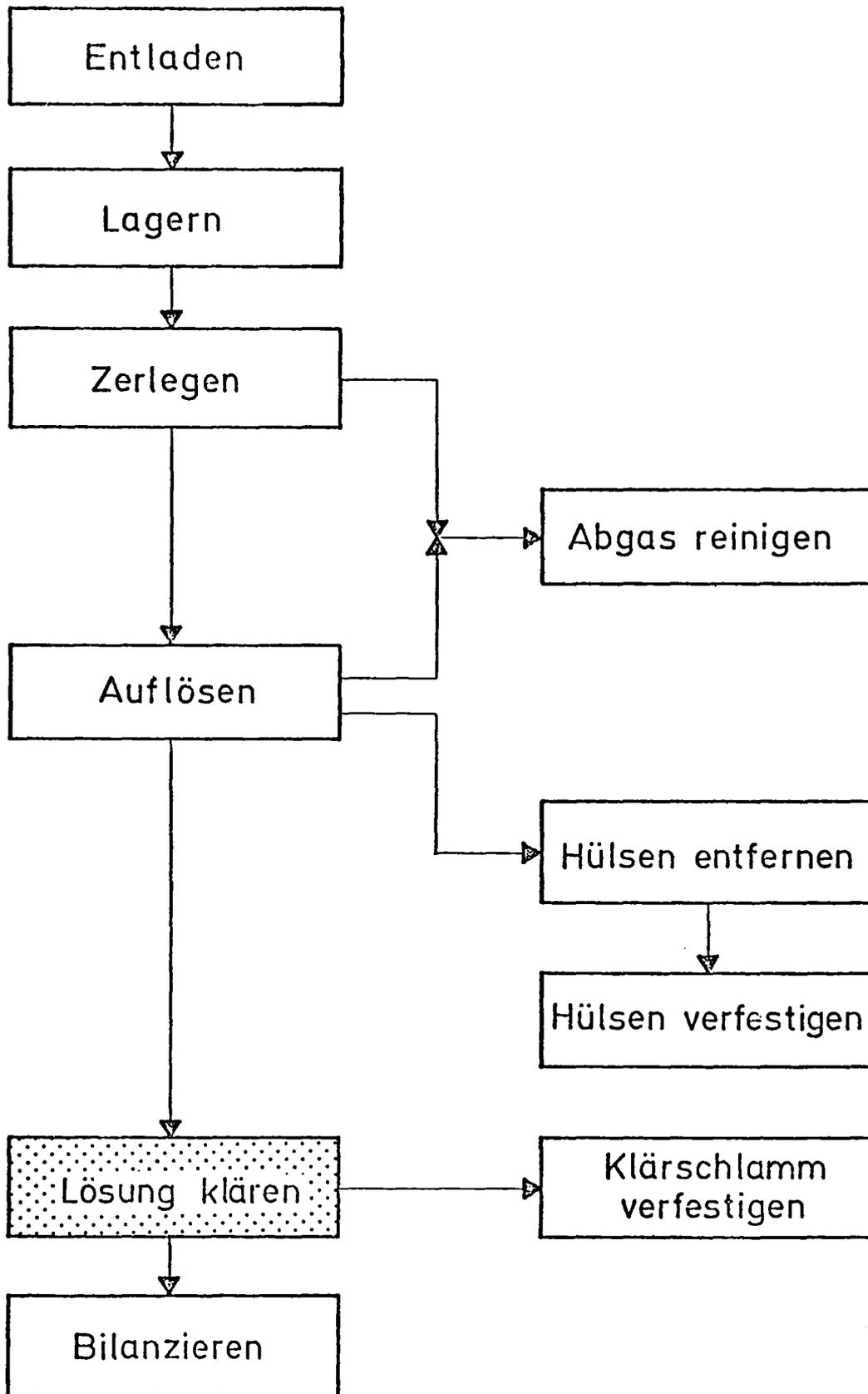
KEWA	Übersicht über die bisher eingesetzten Scheren
-------------	--





KEWA	KEWA - Auflöser (2 tφ)
-------------	------------------------





Bestandteile des Feed - Klärschlamm	% in der Trockenmasse
Nicht lösliche Spaltprodukte Ru (30 - 40 %), Mo (10 - 20%), Rh (8%), Pd (7%), Tc (5 %), Nb, Te, Sb, Cs als Metall oder Legierung	60 - 70
Brennstoffreste Pu: U = 1 : 3 bis 1 : 10	4 - 5
Brennstabreste Zircaloy - Späne oder Staub, Zr - Oxid	< 10
Korrosionsprodukte	Rest ?

KEWA	Feed - Klärschlamm Chemische Zusammensetzung
-------------	---

anfallende Menge	3 - 5 kg / t Brennstoff
Korngröße	Späne : < 2 mm Pulver : < 50 µm Nach dem Absetzen: < 10 µm Maximum: 2 - 5 µm
Wärmeleistung	Nach 1a Kühlzeit : 600 W / t U Nach 3a Kühlzeit : 150 W / t U
Spezifische Aktivität	Nach 1a Kühlzeit : 4×10^4 Ci/tU Nach 3a Kühlzeit : 1×10^4 Ci/tU
Spezifisches Gewicht der Feststoffe	8 - 12 g / cm ³
Farbe	schwarz

KEWA	Feed - Klärschlamm Physikalische Eigenschaften
-------------	---

Anlage		Feedklärung	durchgesetzte Menge (tU)
Idaho	(USA)	stehende Pendelzentrifuge	?
Hanford	(USA)	hängende Pendelzentrifuge	?
Barnwell	(USA)	hängende Pendelzentrifuge	Kalter Betrieb
Exxon	(USA)	hängende Pendelzentrifuge	in Planung
La Hague	(F)	hängende Pendelzentrifuge	15
Marcoule	(F)	hängende Pendelzentrifuge	?
Eurochemic	(B)	hängende Pendelzentrifuge	ca. 80
Thorp	(GB)	hängende Pendelzentrifuge	in Entwicklung
WAK	(D)	Filter	70
Tokai Mura	(JAP)	gepulstes Filter	in heißer Erprobung
NFS	(USA)	-	630, davon 240 LWR
Windscale	(GB)	-	120

KEWA

Übersicht über die bisher eingesetzten
Vorrichtungen zur Feedklärung

Abteilung Dekontaminationsbetriebe

Die Eindampfanlage für mittelaktive, wäßrige Abfalllösungen - Auslegung und Betriebserfahrungen

Es werden Daten über Herkunft, Nuklidzusammensetzung und Aktivitätsverteilung von mittelaktivem Waste geliefert, wie er in der Wiederaufarbeitungsanlage für Kernbrennstoffe, Karlsruhe, anfällt.

Die Auslegung und Inbetriebnahme der MAW-Eindampfanlage werden beschrieben.

Nach einer Prozeßdarstellung werden die Betriebserfahrungen wiedergegeben. Möglichkeiten zur Erarbeitung von Testergebnissen für Forschung und Entwicklung werden aufgezeigt.

1. Einleitung
2. Auslegungsdaten und Inbetriebnahme
3. Prozeßbeschreibung
4. Betriebserfahrungen
5. Ausblick

1. Einleitung

Die Eindampfanlage für mittelaktiven, wässrigen Waste (MAW) hat die primäre Aufgabe, die Wiederaufarbeitungsanlage für Kernbrennstoffe, Karlsruhe (WAK) auf dem MAW-Sektor zu entsorgen. Diese Dienstleistung trägt damit indirekt dazu bei, verschiedene Forschungs- und Entwicklungsvorhaben im Bereich Wiederaufarbeitung sicherzustellen. Gleichzeitig gibt die Anlage die Möglichkeit, Erfahrungen und Daten für zukünftige Bauvorhaben dieser Art zur Verfügung zu stellen. Den Ausführungen über die MAW-Verarbeitung seien zunächst einige Daten über Herkunft und Nuklidzusammensetzung der von der WAK stammenden Abwässer vorausgestellt. Tabelle 1 macht Angaben über die Herkunft der Abfalllösung im Jahr 1976

Prozeßlösungen	ca. 15%
Regenerierwässer	ca. 30%
Dekontaminationslösungen	ca. 40%
Laborwässer, Abgaswaschwässer, Treibdampfkondensat	ca. 15%

Tabelle 1: Herkunft mittelaktiver Abfalllösungen
aus der WAK (1976)

Im gleichen Jahr wurden Brennelemente der Kernkraftwerke Gundremmingen (KRB) und Obrigheim (KWO) aufgearbeitet. Es handelte sich um insgesamt 13,64 t Uges mit einem Abbrand bis 24000 MWd/t und einer Nachkühlzeit von ca. 5 Jahren. Die Radionuklidzusammensetzung im MAW nach Auflösung von Brennelementen mit 30000 MWd/t Abbrand und 5 a Nachkühlzeit ist aus der 2. Tabelle ersichtlich. Es sind die Anteile an der Gesamtaktivität angegeben.

Nuklid	Anteil (%)
Eu-154	0,122
Eu-155	0,970
Ce-144/Pr-144	11,471
Cs-134	4,683
Cs-137/Ba-137 m	32,197
Co-60	0,061
Nb-95	0,133
Ru-106/Rh-106	25,160
Sb-125/Te-125 m	5,181
Sr-90	10,000
Y-90	10,000
Zr-95	0,022

Tabelle 2: Radionuklidzusammensetzung

Ein Vergleich der Mengen und Aktivitäten zwischen dem in der WAK produzierten, hochaktiven Waste (1 WW) und dem in der Abteilung Dekontaminationsbetriebe (ADB) aus dem mittelaktiven WAK-Waste erzeugten MAW-Konzentrat (MAWC) zeigt, daß ca. 1,5 ‰ der 1 WW-Aktivität im MAWC zu finden sind.

Die Werte sind in Tabelle 3 aufgeführt. Die Angaben gleichfalls aus dem Jahre 1976

	1 WW	MAWC
m ³ /a	16,8	36
Ci/m ³	200 000	133
Ci/a	3,36 x 10 ⁶	4,7 x 10 ³

Tabelle 3: Mengen- und Aktivitätsvergleich zwischen 1 WW und MAWC

2. Auslegungsdaten und Inbetriebnahme

Die MAW-Verdampfungsanlage wurde am 1.3.1976 nach einem umfangreichen Erprobungsprogramm "heiß" in Betrieb genommen.

Die wichtigsten Prüfpunkte waren

- Überprüfung der verfahrenstechnischen Funktionsfähigkeit
- Überprüfung der Garantiedaten (Ausdampfleistung, Dekontaminationsfaktor, Wärmehaushalt)
- Betriebsverhalten im Grenzlast- und Störungsbereich.

Die Kontrolle des DF wurde über Na-Nachweis durchgeführt. Es wurden Werte zwischen 10^6 und 10^7 gemessen. Dies entspricht den Auslegungsangaben. Die Funktionsfähigkeit wurde nachgewiesen. Bei den Grenzlastversuchen konnte außerdem festgestellt werden, daß

- keine der peripheren Komponenten die Leistung des Systems Kolonne/Verdampfer beeinträchtigt
- Störfallsituationen jederzeit beherrschbar sind
- die garantierte Ausdampfleistung erreicht wird.

Die wichtigsten Auslegungsdaten zeigt die Tabelle 4:

Ausdampfleistung	0,8 t/h
Dekontaminationsfaktor	10^6
max.Aktivität des Roh-MAW	300 Ci/m^3
max.Konzentrataktivität	1000 Ci/m^3

Tabelle 4: Auslegungsdaten der MAW-Eindampfanlage

3. Prozeßbeschreibung (Abb. 1)

Für die Beförderung von wäßrigem wie auch organischem MAW wird ein Tankwagen (Behältersattelanhänger) mit ca. $2,1 \text{ m}^3$ Transportvolumen benutzt. Die MAW-Übernahme in den Tankwagen erfolgt durch Evakuieren des Tanks, die Übergabe durch Evakuieren des Eingangsbehälters.

Aus dem Eingangsbehälter mit $2,5 \text{ m}^3$ Volumen wird die Lösung über ein nach dem Schwerkraftprinzip arbeitendes Trenngefäß gefördert,

in dem die organische Phase abgeschieden wird. Der max. Durchsatz liegt bei $1,5 \text{ m}^3/\text{h}$. Die wäßrige Phase läuft in freiem Gefälle ab in zwei Vorlagebehälter von je $2,5 \text{ m}^3$ Fassungsvermögen. Aus diesen erfolgt die kontinuierliche Einspeisung in die Verdampferkolonne. Die Fördermenge ist dabei von $0,7$ bis $1,2 \text{ m}^3/\text{h}$ verstellbar.

Die Verdampfung wird eingeleitet in einem dampfbeheizten, stehend angeordneten Rohrbündel-Wärmetauscher. Dieser ist oben und unten seitlich an den Sumpf einer Siebbodenkolonne angeschlossen. Durch die Beheizung entsteht ein Naturumlauf. Nach Übetritt der siedenden Lösung in die Kolonne erfolgt die Dampfabscheidung unterhalb der Siebböden.

Interessant ist hier der quasi-tangentiale Anschluß des oberen Übertrittsrohres, wodurch eine Zentrifugenwirkung erzielt wird, die eine effektive Flüssigkeitsseparation aus dem Dampf sicherstellt.

Der aufsteigende Brügendampf wird beim Durchtritt durch die Böden durch rückströmendes Destillat weiter dekontaminiert. Die Brüden werden in einem Kondensator niedergeschlagen, nachgekühlt und in die Eingangsbehälter der Eindampfungsanlage für leichtaktives Abwasser geleitet. Ein Teil des Destillates läuft auf den oberen Siebboden zurück.

Das Betriebsvolumen des Systems Kolonne/Verdampfer beträgt $1,6 \text{ m}^3$. Nach Erreichen der Endkonzentration erfolgt der Austrag des Konzentrates in einen gekühlten Zwischenbehälter mit $1,7 \text{ m}^3$ Inhalt (batch-Betrieb). Es besteht aber auch die Möglichkeit, entsprechend dem Aufkonzentrierungsfaktor durch Anheben des Niveaus im Kolonnensumpf Konzentrat gleichbleibender Zusammensetzung in den Zwischenbehälter überlaufen zu lassen. Das gekühlte Konzentrat wird in einen Sammelbehälter, der $13,7 \text{ m}^3$ faßt, transferiert. Von dort wird es nach Bedarf bei der Konzentrataufarbeitung in einen Konditionierbehälter gefördert, in dem durch Laugezugabe der gewünschte pH-Wert eingestellt wird.

4. Betriebserfahrungen

4.1 Allgemeine Übersicht

Einige Betriebsdaten der MAW-Eindampfung von 1976 sind aus Tabelle 5 ersichtlich. Sie beinhaltet auch den MAW-Durchsatz, die Eindampfanlage für schwachaktives Abwasser (LAW) in den Monaten Januar und Februar 1976

MAW-Durchsatz	366 m ³
Aktivitätsdurchsatz	4700 Ci
Trockensubstanz-Durchsatz	16,9 to
Konzentratproduktion	36,0 m ³
Laufzeit	396 h
Zuverlässigkeitsgrad	96,5 %
Auslastungsgrad	4,5 %

Tabelle 5: Betriebsdaten der MAW-Eindampfung 1976

Der Zuverlässigkeitsgrad ist das Verhältnis zwischen Istlaufzeit und Planlaufzeit, der Auslastungsgrad das zwischen Istlaufzeit und theoretisch möglicher Laufzeit (365 d x 24 h).

Bis zum 1.11.1977 wurden insgesamt 1000 m³ in 1088 Betriebsstunden verarbeitet. Damit lag die durchschnittliche Ausdampfleistung bei 0,94 t/h. Diese hohe Ausdampfleistung wurde erreicht durch Betreiben der Anlage im oberen Grenzlastbereich, d.h.:

- es wird kein Destillat auf die Siebböden zurückgeleitet
- die Beheizung des Verdampfers wird soweit angehoben, bis das Kolonnenverhalten gerade eben noch stabil ist.

Eine solche Fahrweise ist deshalb möglich, weil die spezifische Aktivität des MAW bisher so niedrig lag, daß selbst bei vermindertem DF die max. zulässige Destillataktivität von 10⁻² Ci/m³ nicht überschritten wird.

4.2 MAW-Transport und -Phasentrennung

Durch das Arbeiten mit Unterdruck bei Übernahme in den Tankwagen und Abgabe in den Eingangsbehälter wird das Kontaminationsrisiko auf ein Minimum beschränkt. Das gleiche gilt für die Befüllver-

riegelung durch geeignete Schwimmerschalter, die den Füllvorgang bei ca. 85% des Tankvolumens automatisch unterbrechen. Nennenswerte Störungen oder gar Kontaminationen sind bislang nicht aufgetreten.

Die Durchlaufgeschwindigkeit von max. $1,5 \text{ m}^3/\text{h}$ (bei ca. 200 l Gefäßvolumen) durch das Phasentrenngefäß erwies sich bisher für den Trennvorgang als genügend niedrig. Bei Anfall größerer Mengen organischer Lösungen - wegen der Vortrennung im Eingangsbehälter durchaus üblich - wird der Mengenstrom durch eine geeignete Regelung reduziert bzw. bei unzulässigem Anstieg unterbrochen.

4.3 Vorlagesystem

Im Vorlagesystem sind zwei Behälter installiert. Mit je $2,5 \text{ m}^3$ sind die Volumina sehr knapp bemessen. (Dies resultiert aus einer Konzeptänderung während der Bauphase). Diese Einschränkung bedingt häufiges Umschalten der als Dampfstrahlpumpen ausgeführten Einspeisepumpen. Insbesondere bei Betrieb im Grenzlastbereich bringt dies eine nicht unerhebliche Störung des Kolonnenverhaltens mit sich:

Die Umschalttechnik erfordert, zeitweise mit zwei Pumpen einzuspeisen. Wegen der dann erhöhten Kaltwassermenge entsteht ein Siedeverzug, wodurch es zum "Durchsinken" des Destillates durch die Siebböden kommt.

Wenn eine kurze Umschaltfrequenz erforderlich wird, kann ein Ausfall der Einspeisung wegen Überhitzung der Dampfstrahlpumpen vorkommen. Gleiches gilt für Ansaugvorgänge bei niedrigem Behälterniveau.

4.4 Verdampfer/Kolonne

Der Verdampfungsvorgang verläuft bei Atmosphärendruck. Der Heizdampfdruck beträgt 2,7 bar (Satttdampf).

Nach Füllen der Kolonne mit MAW bis auf Überlaufniveau, beginnt man mit der Beheizung. Der max. zulässige Temperaturgradient beträgt 3 K min^{-1} . Bei einer anfänglichen Heizdampfmenge von 300 kg/h ist dies sichergestellt. Nach Siedebeginn wird die Dampfmenge um 150 bis 200 kg/h erhöht. Der Destillat-Rücklaufteiler

ist so eingestellt, daß das gesamte Destillat auf die Siebböden zurückgeleitet wird. Dadurch baut sich ein Dampf-Differenzdruck (DD) in der Kolonne auf. Dieser DD ist eine charakteristische Größe für die Kolonne und hat für jeden Lastzustand einen ganz bestimmten Wert. Die Einhaltung wird anhand eines Betriebsdiagrammes überwacht, d.h. nach jeder Dampfmengenerhöhung ist ein stabiler DD abzuwarten, so daß der Anfahrvorgang ca. 1 h dauert. Ab ca. 700 kg/h Heizdampf setzt der Naturumlauf ein, gekennzeichnet durch plötzliche Schwankungen der Dichteanzeige und einen Negativsprung des Füllstandes in der Kolonne.

Während des Befüllens der Siebböden nimmt der Füllstand kontinuierlich ab. Die MAW-Einspeisung ist daher rechtzeitig einzuschalten, um das minimale "Naturumlaufniveau" nicht zu unterschreiten. Wenig später wird dann der Rücklaufteiler in Betriebsstellung gebracht.

Wie erwähnt, ist der Siebboden-Differenzdruck wichtigster Anhaltspunkt für den Betriebszustand der Kolonne. Solange er im Diagrammbereich stabil bleibt und die Destillataktivität 10^{-2} Ci/m³ nicht übersteigt, kann die Heizdampfmenge - ab ca. 1000 kg/h in kleinen Stufen von 50 kg/h - erhöht werden.

Ähnliches gilt für die Rücklaufteilerstellung, denn es kondensiert offensichtlich so viel Brüdendampf im Bereich der Böden, daß ein ausreichender Destillatquerstrom erhalten bleibt, auch wenn kein Destillat über den Rücklauf aufgegeben wird.

Bei derart optimierter Anlageneinstellung muß natürlich ein sensibles Verhalten des Systems in Kauf genommen werden. Alle Einflüsse, insbesondere Änderungen der Einspeiserate oder des Anlagendruckes, die zu einem Siedeverzug bzw. zu einer beschleunigten Ausdampfung führen, gefährden die Stabilität. Es kann zum "Trockenblasen" bzw. Überfüllen der Siebböden kommen. Beides würde einen erneuten Anfahrvorgang erforderlich machen.

Aus den MAW-Eingangsanalysen läßt sich der zulässige Aufkonzentrierungsfaktor hinsichtlich des Salzgehaltes oder aber der spezifischen Aktivität ermitteln.

Da das Kolonnenvolumen bekannt ist, kann das Erreichen der Endkonzentration leicht über die eingespeiste Menge errechnet werden. Es ist lediglich die Verdünnung des Konzentrates durch die

Dampfstrahltransfers von 10 bis 20% zu berücksichtigen. Die Konzentrat-Austragsmöglichkeiten wurden in der Anlagen-Kurzbeschreibung dargestellt.

Bei batch-Betrieb ist nach genügender Abkühlung des Konzentrates (auf mindestens 65°C) der Austrag mittels Dampfstrahlpumpen in den gekühlten Zwischenbehälter problemlos. Dagegen ergeben sich bei kontinuierlichem Betrieb, also Konzentratüberlauf, verschiedene Schwierigkeiten:

In dem am Kolonnensumpf angeschlossenen Überlaufrohr (NW80) sind mehrere Einperlrohre für Dichte- und Füllstandsmessung installiert. Bei Erreichen des Überlaufniveaus entsteht durch die eingeperlte Luft ein Mammutpumpeneffekt, durch den ein Teil des Kolonneninhalts abgehebert wird. Gleichzeitig verursacht das strömende Medium eine Verfälschung der Dichteanzeige. Da mit diesem Signal die Füllstandsanzeige elektrisch korrigiert wird, ist also auch der Wert fehlerbehaftet. Daraus ergibt sich, daß eigentlich nur ein quasi-kontinuierlicher Betrieb möglich ist.

Eine Niveauregelung über die Einspeiserate ist mit der vorhandenen Anordnung unmöglich.

Ein weiterer Mangel ist, daß bei hohem Kolonnenfüllstand das Konzentrat - wenn auch nicht übermäßig stark - über eine der beiden Einspeiseleitungen in den Vorlagebehälter zurückläuft.

Insgesamt ist das Kernstück der Anlage aus verfahrenstechnischer Sicht nach hinreichender Ausbildung und Übung durchaus unkompliziert handhabbar.

4.5 Konzentratbehälter

Gekühlter Zwischenbehälter und Sammelbehälter stellen eine sinnvolle Einheit dar. Probenahmen und Weitertransfer in den Konzentrationsbehälter waren jederzeit ohne Schwierigkeiten möglich.

5. Ausblick

Nach Planungsdaten im Bereich der Wiederaufarbeitung (MAVA) ist mit einem MAW-Anfall von 2660 m³/a zu rechnen. Die Entsorgung würde eine Verfügbarkeit der Eindampfanlage von 40% erforderlich machen. Nach heutigen Erkenntnissen könnten mühelos 80% erreicht

werden. Bis jetzt liegt die Auslastung bei 7,5%, die Zuverlässigkeit bei 98%. Ob sich letztere bei höherer Auslastung halten läßt, bleibt abzuwarten. Das umfangreiche Prüfprogramm zur vorbeugenden Instandhaltung zielt in diese Richtung.

Bisher wurde die Anlage in der Regel einschichtig gefahren. Ein Zweischichtbetrieb wurde vorübergehend zur Abschätzung verfahrenstechnischer Grenzen durchgeführt. Das durchgehende Betreiben ist aus heutiger Sicht lediglich durch die personelle Ausstattung begrenzt.

Als größte Verarbeitungsstörung wird ein Defekt des Verdampferheizbündels angenommen. Es muß dann mit einer Ausfallzeit von ca. 9 Monaten gerechnet werden. Zu den bereits durchgeführten Reparaturvorbereitungsmaßnahmen gehören die Anfertigung einer Anschlußschablone und verschiedene Dekontaminationsversuche im Verdampfer/Kolonnen-Bereich. Zum letzteren Punkt liegen Ergebnisse vor, die eine zügige Reinigung mit erheblicher Verminderung der Ortsdosisleistung im Arbeitsbereich ermöglichen.

In diesem Zusammenhang seien einige Anmerkungen in Bezug auf Sammlung weitergehender Erfahrungswerte am MAW-Verdampfer durch ADB angefügt:

Im ersten Betriebsjahr lag das Hauptaugenmerk der Betriebsleitung - bedingt durch die Forderung problemloser Entsorgung speziell der WAK - bei der Ausbildung des Betriebspersonals an der neuen Anlage. In letzterer Zeit konnten nun verschiedene Versuchsreihen gefahren werden, die sich u.a. auf die Beeinflussbarkeit des Dekontaminationsfaktors beziehen. Hier zeigt sich bisher, daß die Wirksamkeit der Siebbodenkolonne nicht in dem zuvor angenommenen Bereich von ca. 10^2 liegt. Bei Änderung des Destillatrücklaufes von 0 bis fast 50% (Abb. 2) verbessert sich der DF lediglich um das Dreifache. Ein solcher Effekt ist aber auch durch Verminderung der Heizdampfmenge erzielbar (Abb. 3), wobei die Netto-Ausdampfleistung sogar noch höher liegt.

Es ist denkbar, daß zu einem späteren Zeitpunkt auch Meßreihen zur Ermittlung z.B. nuklidspezifischer Dekofaktoren durchgeführt werden.

Fixierung von MAW in anorganischer Matrix

- L. Kahl, M. Kelm -

1. Einleitung

Als mittelradioaktiv (MAW) werden alle Abfalllösungen aus der Kernbrennstoffwiederaufarbeitung bezeichnet, deren spezifische Aktivität zwischen 10^{-4} und 10 Ci/l beträgt. Sie entstehen im Purex-Prozeß hauptsächlich bei der Lösungsmittelwäsche (Prozeß-MAW) und bei der Dekontamination von Anlagenteilen der Wiederaufarbeitungsanlage (Deko-MAW).

In der geplanten WA werden ca. 23000 m³ MAW pro Jahr anfallen, die auf ca. 1500 m³ Konzentrat eingeeengt werden. Je nach Ort der Entstehung kann die Zusammensetzung schwanken.

Bild 1 zeigt eine typische MAW-Zusammensetzung.

Sieht man von den Spuren an Spaltprodukten, Uran, Plutonium und Lösungsmittelresten ab, enthält MAW hauptsächlich HNO₃ und NaNO₃. Das Verhältnis Säure/Salz kann recht stark schwanken, beträgt aber im Mittel 2:1.

Augenblickliche Praxis der MAW-Behandlung ist, den Roh-MAW bis zu einem Gesamtnitratgehalt von 4 Mol/Liter einzuengen, die Säure zu neutralisieren, das neutrale Konzentrat bei 443 K (170°C) mit Bitumen oder bei Raumtemperatur mit Zement zu vermischen und die Verfestigungsprodukte in 200 l Fässern abgefüllt inASSE II einzulagern.

Element	Konzentration (mg / l)	Nuklid	Akt. - Konz. (mCi / l)
H +	90		
Na	3500		
Ca	10		
Mg	10		
Si	10		
Fe	7,5		
Cs	nicht gemessen	Cs-137 / 134	6,5 / 0,85
Sr	0,1	Sr-90	3,8
Zr	50	Zr-95	0,04
Nb	5	Nb-95	-
Sb	2	Sb-125	2,1
Ce	1	Ce-144	0,8
Ru	3	Ru-106	1,74
Co	0,1	Co-60	0,2
U	160		
Pu	1,1		
Am	0,3		
Organische Bestandteile:			
Gesamtkohlenstoffgehalt:		855 mg / l	
TBP		69 mg / l	
HDBP		97 mg / l	
Kerosin		10 mg / l	

AKK

**Bild 1: Analyse von Prozeß-MAW, Abbrand
25000 MWd / t U, Kühlzeit 1400 d**

Während der Bituminierung verdampft das Wasser bis auf einen Rest von 0,1 %. Bei der Zementierung wird das Wasser chemisch gebunden. Die Aufnahmefähigkeit für das MAW-Salzgemisch beträgt bei Bitumen 50 Gewichtsprozente, bei Zement 10 Gewichtsprozente.

Schwachstellen bei diesen beiden Verfahren ist die Entwicklung von H_2 infolge Radiolyse des Bitumens oder des Kristallwassers im Zement, die Desintegration des Bitumengemisches, wenn es über längere Zeiträume höherer Temperatur im Endlager ausgesetzt ist und die relativ schlechte Auslaugbeständigkeit des Zementproduktes. Die H_2 -Entwicklung kann zu Druckaufbau in den Fässern oder bei schlechter Bewetterung zu Knallgasgemischen im Endlager führen.

Zur Beseitigung dieser Schwachstellen wurde bei ABRA begonnen, die Möglichkeit der Verfestigung des MAW in einer Glasmatrix analog der vorgesehenen Verglasung der hochradioaktiven (HAW) Abfälle zu untersuchen. Weiterhin wird in einem gesonderten Programm an der Verbesserung der Zementprodukte hinsichtlich Aufnahmefähigkeit von MAW, Auslaugbeständigkeit und Beherrschung der Radiolysegase gearbeitet.

Das Verglasungskonzept, das in diesem Vortrag vorgestellt werden soll, sieht die Abtrennung von mehr als 90 % der Gesamtaktivität durch eine Mitfällung an oberflächenreichen Niederschlägen vor. Die Fällschlämme werden entweder zusammen mit dem HAW oder gesondert verglast. Das Filtrat soll der Spezifikation von LAW entsprechen und wie dieser bituminiert oder zementiert werden.

2.1. Konzept des Verfahrens

2.1.1. Verfahrensschema

Bild 2 zeigte das Schema einer für das ABRA-Technikum geplanten aktiven Demonstrationsanlage im 50 Liter-Maßstab.

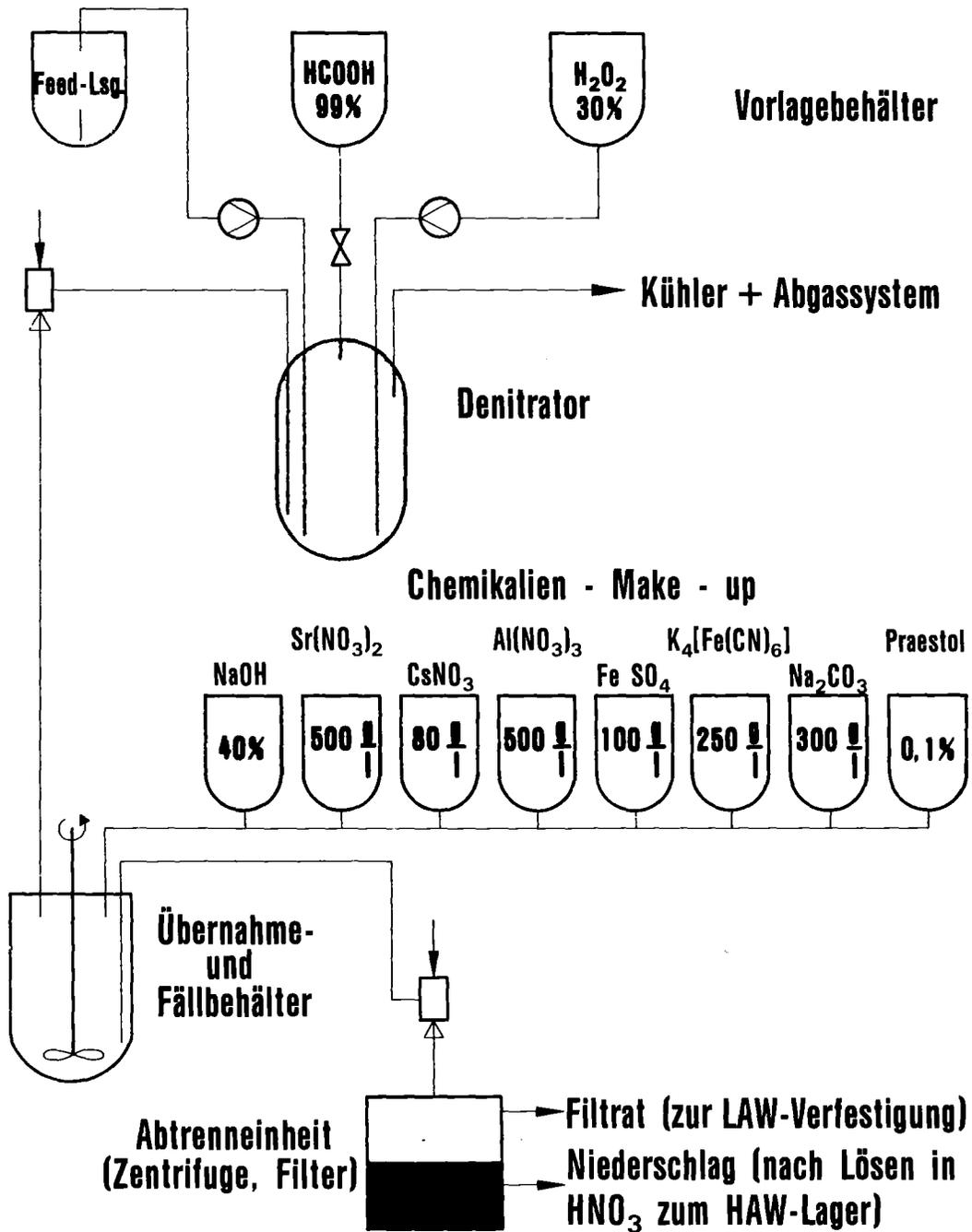


Bild 2:
Verfahrensschema zur MAW-Behandlung
(Anlagengröße: 50 Liter / Charge)

Die Einzelschritte des Verfahrens sind:

1. Denitrierung der Salpetersäure durch Zugabe des MAW-Konzentrats in vorgelegte 26 molare Ameisensäure bei 373 K (100°C) im batch-Verfahren.
2. Zerstörung der überschüssigen Ameisensäure mit H_2O_2 .
3. Überführung des denitrierten Konzentrates in den Fällbehälter.
4. Dosierung der Fällchemikalien bei bestimmten pH-Werten. Die Mengen an Fällchemikalien richten sich nach der Eingangsanalyse. Richtwerte sowie die pH-Werte für die Dosierung wurden in Labor- und halbtechnischen Versuchen ermittelt. Das Schema berücksichtigt bereits das in letzter Zeit geänderte Verfahren des Fällungsschrittes. Bis vor kurzer Zeit wurde noch $TiCl_3$, $SnCl_2$ und Wasserglas zur Fällung benutzt. Darauf wird im Punkt 2.2.1. näher eingegangen.
5. Abtrennung der Fällschlämme.
6. Bituminierung oder Zementierung des Filtrats (LAW).
7. Verschmelzen des in HNO_3 gelösten Fällschlammes zusammen mit HAW bei etwa 1473 K (1200°C).

2.1.2. Mengenfließbild der Salz- und Volumenströme der 50 Liter-Demonstrationsanlage.

Bild 3 macht die Trennung des MAW in einen Strom großen Volumens mit dem größten Teil des $NaNO_3$ und einen kleinen Strom, der den Fällschlamm führt und vor allem die aktiven Bestandteile enthält deutlich.

Die Menge von 12 g Glührückstand (7 g Oxide + 5 g Natriumnitrat) pro Liter MAW und seine Zusammensetzung erlauben, den Fällschlamm mit dem HAW-Strom zu vereinigen, ohne daß das Volumen des HAW-Glases erhöht wird.

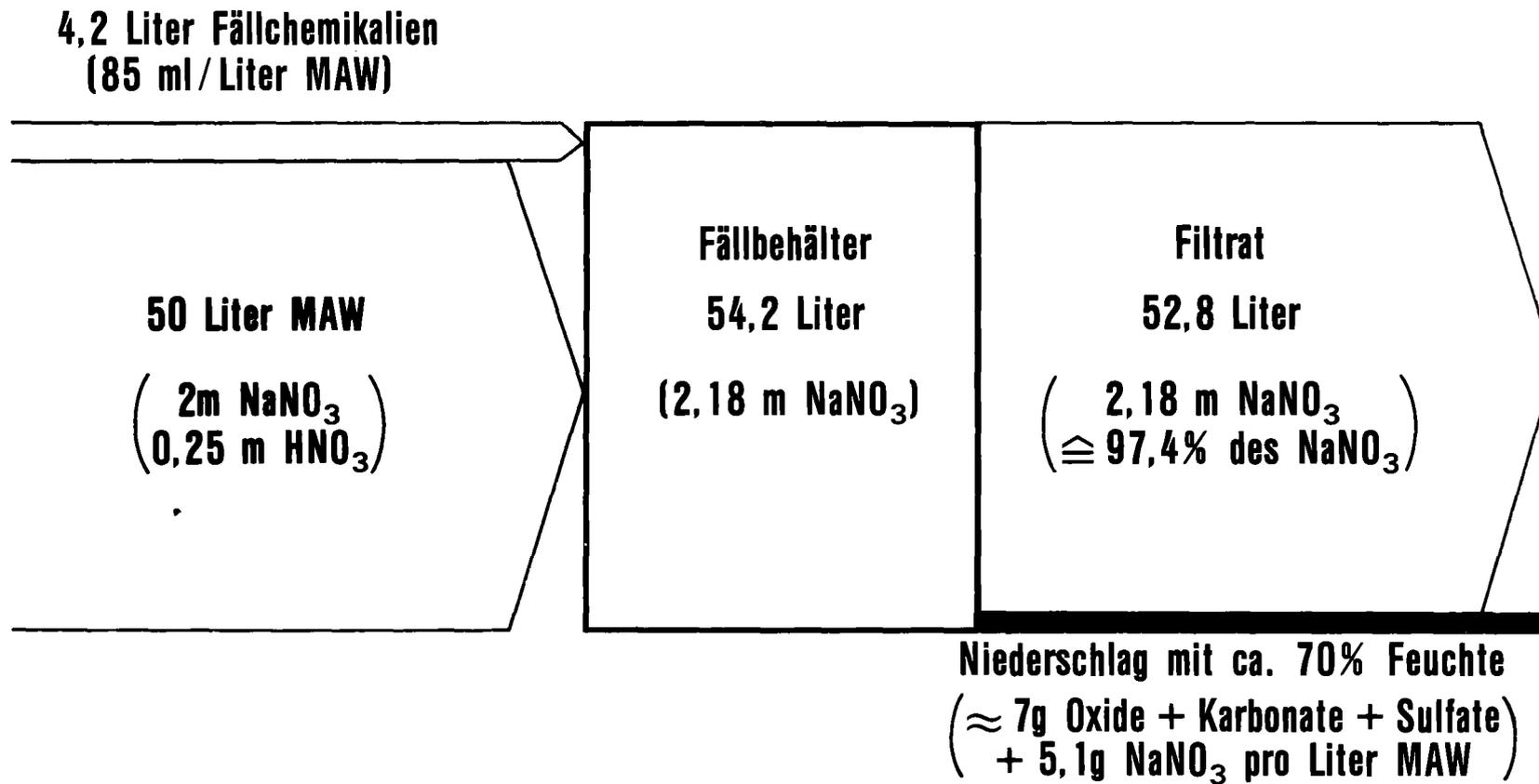


Bild 3:
Mengenfließbild für eine Fällung mit Abtrennung bei einer Anlage
für 50 Liter MAW / Charge

Nach bisherigen Versuchen werden bei der Fällung mehr als 95 % der β/γ -Aktivität sowie 80-90 % des Plutoniums und des Urans in den Niederschlag überführt.

2.2. Durchgeführte F+E-Arbeiten

2.2.1. Laborversuche mit simuliertem MAW-Konzentrat

2.2.1.1. Fällung

Bild 4 zeigt die bis zum Sommer d.J. entwickelte Fällmethode und die damit erzielten Ergebnisse. Es sind angegeben die Dekontaminationsfaktoren (DF) der wichtigsten Aktivitätsträger, die Mengen und Art der Fällchemikalien und der pH-Wert ihrer Zugabe zum MAW-Konzentrat. Die Einstellung des pH-Wertes erfolgte mit konz. NaOH. In den Klammern hinter den Reagenzien sind die Elemente angegeben, die durch dieses Reagenz besonders effektiv aus der Lösung entfernt werden.

Die Versuche wurden im Maßstab von 25 ml bis zu einem Liter durchgeführt. Reihenversuche bei denen die DF in Abhängigkeit von der Chemikalienmenge und vom pH-Wert der Zugabe verfolgt wurden, ergaben die im Bild 4 aufgezeigten Mengen und das Dosierschema. Die Wirksamkeit der Fällchemikalien für die adsorptive Mitfällung bestimmter Nuklide wurde in eigenen Versuchen und durch Auswertung der Literatur ermittelt. Leider mußte dieses bisher - auch in den Versuchen mit echtem MAW - leistungsfähige Verfahren in den letzten Monaten aufgegeben werden, da sich bei der Verglasung der Fällschlämme zeigte, daß durch Chloride die Flüchtigkeit des Cäsiums aus der HAW-Glasschmelze von durchschnittlich 15 % auf ca. 70 % ansteigt. Besonders Ti und Sn sind aber nur als Chloride für die Fällung verfügbar, so daß auf sie vorerst verzichtet werden mußte. Bei Waschversuchen wurden neben den Chloridionen 5-10 % der adsorbierten Aktivität ausgewaschen. Weitere Versuche,

Fällreagenz	Menge g/l	pH-Wert bei Dosierung	Tracer	DF
Al(NO ₃) ₃ ·9H ₂ O	7,0 (Ce,Zr,Nb)	1 - 2	Sr-85	190
SnCl ₂	1,5 (Ru)		Zr-95	1000
NaOH		bis 3,5	Nb-95	1000
TiCl ₃ in HCL	1,0 (Sr)		Ru-106	190
NaOH		bis 4,0	Cs-137	250
K ₄ (Fe(CN) ₆)·3H ₂ O	0,5 (Cs)		Ce-144	1000
NaOH		bis 7,0		
Wasserglas	16,0 (Sr)			
NaOH		bis 9,5		
Eine NaNO ₃ -Konzentration von 350 g/l hat keinen Einfluß auf die DF. Eine größere Konzentration verschlechtert die Werte.				

**Bild 4: Fällmethode mit chloridhaltigen Reagenzien
Ergebnisse in simuliertem MAW**

besonders im halbtechnischen Maßstab müssen zeigen, ob sich Chloride weitgehend aus dem Schlamm entfernen lassen, ohne daß große Mengen Sekundärwaste entstehen. Wegen dieser Schwierigkeiten wurde ein alternatives Verfahren zur Fällung erarbeitet. Es wird im Bild 5 analog Bild 4 vorgestellt. Wie sich zeigte, sind die erreichbaren DF nicht so gut wie bei der 1. Methode. An der Verbesserung wird gearbeitet. Auf Wasserglas wurde aus filtertechnischen Gründen verzichtet. Hier sind ebenfalls noch Versuche notwendig.

2.2.1.2. Verglasung der Fällschlämme

Das Konzept der HAW-Verglasung sieht vor, in dem Karlsruher Borosilikatglas VG 98 20 Gew.% HAW-Oxide zu verglasen. Um die absolute Menge an einzulagerndem HAW-Glas möglichst nicht zu erhöhen, wurde versucht, zur Fällung von MAW Substanzen zu verwenden, die in der Grundglasmatrix bereits vorhanden sind, wie z.B. Al_2O_3 , SiO_2 und TiO_2 . Das war bei dem in Bild 4 vorgestellten Fällkonzept recht gut gewährleistet. Von dem HAW-Glas mußten zusätzlich nur 4 Gewichtsprozent Fällschlammoxide aufgenommen werden.

Vergleichende Untersuchungen von Grundglas, Produktglas mit 20 % HAW-Oxiden und Produktglas mit 20 % HAW- und 4 % Fällschlammoxiden hinsichtlich Auslaugresistenz, Wärmeleitfähigkeit und Schlagfestigkeit ergaben nur bei der Schlagfestigkeit etwas geringere Werte. Dagegen zeigten sich die Wärmeleitfähigkeit und die Auslaugresistenz durch die zusätzliche Integration der Fällschlammoxide eher verbessert, wie Bild 6 für die Auslaugung demonstriert.

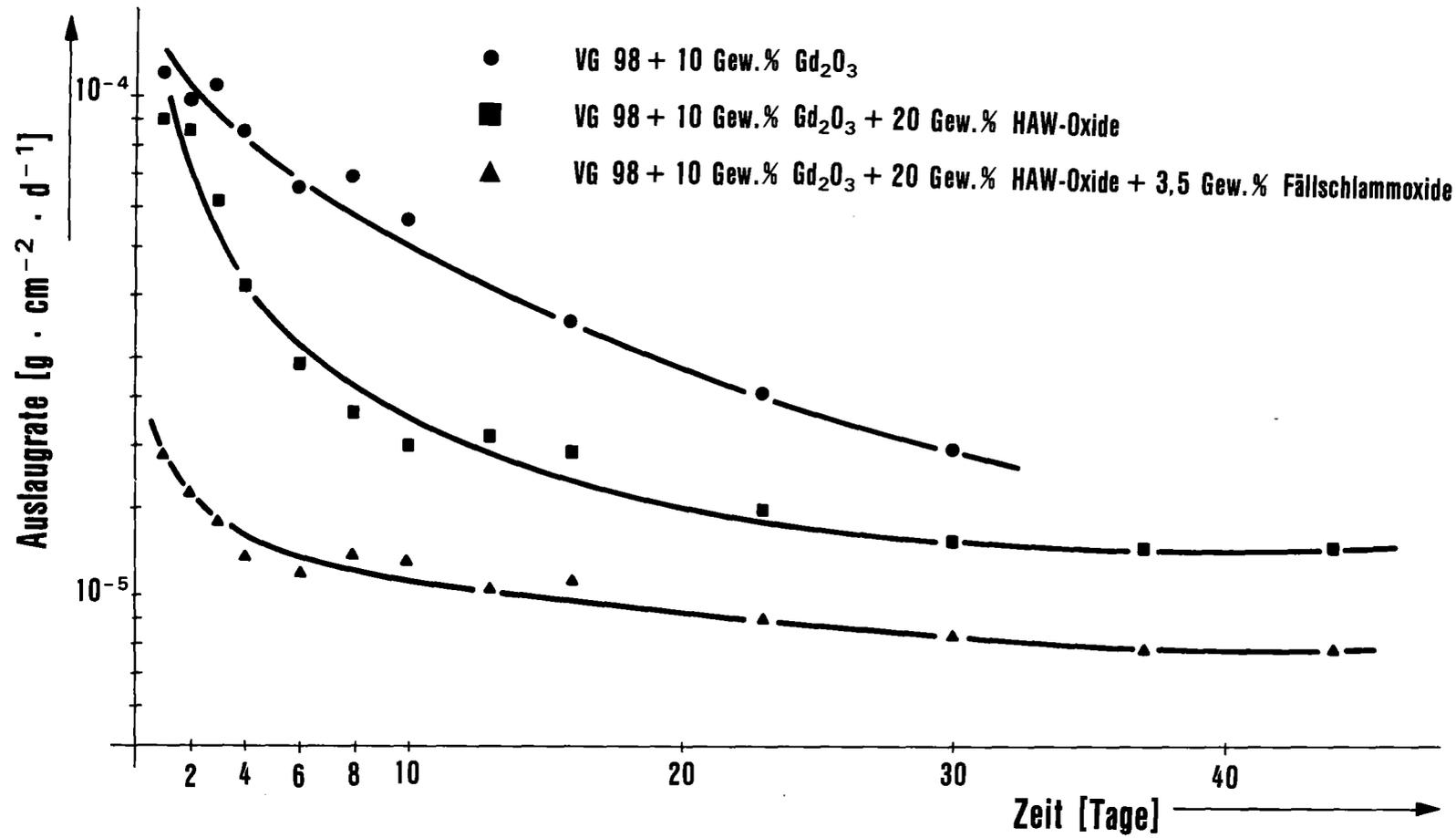
Dargestellt sind die Auslaugraten für das Grundglas und die beiden Produktgläser. Ausgelaugt wurde Glasgranulat bei 353 K (80°C) im Soxleth. Mit dem Fällschlamm der 2. Fällmethode wurde die Verglasung noch nicht erprobt.

Fäll- oder Trägerreagenz	Menge g/l	pH-Wert bei Dosierung	Tracer	DF
Sr(NO ₃) ₃	1,0	1 - 2	Sr-85	50 - 260
CsNO ₃	0,04		Zr-95	> 500
Al(NO ₃) ₃ ·9H ₂ O	7,0 (Ce,Zr,Nb)		Nb-95	> 500
FeSO ₄ ·7H ₂ O	1,0 (Ru)		Ru-106	25 - 50
NaOH		bis 3,5	Cs-137	40 - 200
K ₄ (Fe(CN) ₆)·3H ₂ O	0,5 (Cs)		Ce-144	> -500
NaOH		bis 7		
Na ₂ CO ₃	6,0 (Sr)	~ 9		

NaNO₃ hat bis zu einer Konzentration von 350 g/l keinen Einfluß auf die DF.



**Bild 5: Fällmethode mit chloridfreien Reagenzien
Ergebnisse in simuliertem MAW**



**Bild 6: Auslaugung von Granulat dreier Versuchsgläser —
 Auslaugraten in Abhängigkeit von der Zeit.**

GRK

2.2.2. Laborversuche mit echtem MAW-Konzentrat.

Bisher wurden ca. 3 l echter WAK-MAW (bei der ADB auf eine NO_3^- -Konzentration von 4 Mol/Liter aufkonzentriert) in einer Handschuhbox in 100 ml-Chargen gefällt. Da die Säure noch nicht denitriert werden konnte, ergab sich am Ende der Fällung ein NaNO_3 -Gehalt von ca. 4 Mol/Liter. Bei der jetzt in einer anderen Box bestehenden Möglichkeit zur Denitrierung wird der NaNO_3 -Gehalt 1,5 - 2 Mol/Liter betragen.

Die meisten Versuche wurden nach der ersten Fällmethode, also unter Verwendung von TiCl_3 , SnCl_2 und Wasserglas durchgeführt. Die Ergebnisse schwankten recht stark, gleichgültig, ob in verschiedenen oder der gleichen MAW-Charge gearbeitet wurde. Bild 7 zeigt die Werte zwischen denen die erreichten DF von 10 Versuchen liegen. Eine Häufung ist in Richtung höherer DF festzustellen.

Mit der Fällmethode im chloridfreien System sind noch nicht genügend Versuche durchgeführt worden, um eindeutige Aussagen zu ermöglichen. Tendenz scheint aber zu sein, daß die DF für Sr etwas für Ru wesentlich schlechter sind als die nach der ersten Methode.

Hier sind noch entsprechende Entwicklungsarbeiten nötig.

Die Versuche mit denitriertem MAW-Konzentrat zeigen keine signifikanten Unterschiede zu den Versuchen mit nicht denitriertem Konzentrat.

2.2.3. Versuche mit simuliertem MAW-Konzentrat im 200 l-Maßstab.

Die Versuche im 200 l-Maßstab wurden gerade aufgenommen. Erste Fällungen mit simuliertem, denitriertem MAW wurden durchgeführt. Als Abtrenneinheit wurde eine Dekantierzentrifuge benutzt.

Nuklid	DF
Sr-90	7-70
Zr/Nb-95	> 1000
Ru-106	5-270
Sb-125	9-150
Cs-134/137	15-380
Ce-144	> 1000
U	5-10
Pu	5-10
Am	400-500



**Bild 7: Dekontaminationsfaktoren von
10 Fällversuchen mit MAW-Konzentrat.**

Analysen über den Feststoffgehalt des Dekantats und den Gehalt an Sr und Cs sowie den Wasser- und Na-Gehalt des Fällschlammes sind in Arbeit. Diese Größen sollen in Abhängigkeit von verschiedenen Versuchsparametern (z.B. Drehzahl und Verweilzeit beim Zentrifugieren, Filtrationsdruck beim Filtrieren usw.) ermittelt werden.

3. Vorgesehene F+E-Arbeiten für die Errichtung der aktiven Demonstrationsanlage im ABRA-Technikum.

Nach Ausarbeitung des neuen chloridfreien Fällkonzeptes werden sich die künftigen F+E-Arbeiten im Labormaßstab auf Fällungen von echten denitrierten MAW-Lösungen beschränken. Versuchsparameter ist dabei im wesentlichen die Zusammensetzung des MAW. Auf Grund von MAW-Analysendaten werden besser simulierte Versuche im 200 l Maßstab durchgeführt werden können. Der Verbundbetrieb mit dem 200 l Stahl-denitrator wird erprobt.

Wichtigstes Ziel der 200 l-Versuche wird jedoch die Auswahl eines geeigneten Abtrennverfahrens sein. Die zur Zeit laufenden Versuche mit einer Dekantierzentrifuge sollen mit einem Vakuumtrommelfilter und einem Zentrifugalreinigungsfiler fortgeführt werden. Auswahlkriterium ist die Handhabbarkeit, der Feststoffgehalt im Filtrat, die Restfeuchte, die Standzeit u.ä.. Parallel zu den halbtechnischen Versuchen wird die Vorplanung des aktiv zu betreibenden Versuchsstandes im ABRA-Technikum für 50 l Chargen laufen.

In-Line Instrumentierung und Laborautomatisierung
als Grundlage einer effektiven Prozeßkontrolle

P. Groll (IHCH), W. Heep (ADI), M. Selig (RBT)

1. Einleitung

In jedem Produktionsprozeß muß man, um die einwandfreie Funktion der Anlage und ihren Wirkungsgrad kontrollieren zu können, Prozeßgrößen bestimmen. Dabei handelt es sich um die Messung physikalischer und chemischer Eigenschaften der Prozeßmedien (Abb. 1).

Physikalische Größen der Prozeßströme, wie Druck, Temperatur, Fluß etc. können nur direkt im Prozeß gemessen werden. Ihre Bestimmung erfolgt mit Instrumenten, wie sie in konventionellen chemischen Fabriken verwendet werden. Selbstverständlich müssen diese Instrumente den Anforderungen einer Wiederaufarbeitungsanlage, nämlich Einsatz unter stark korrosiven Bedingungen und unter radioaktiver Strahlung, genügen.

2. Kriterien zum Bau und Einsatz von In-Line Instrumenten und Laborautomaten

Die Messung der Konzentrationen von Uran, Plutonium, Spaltprodukten, Säure etc., die im wesentlichen die chemischen Meßgrößen sind, ist natürlich generell an einzelnen Proben im Labor möglich. Gelingt es aber, durch direkte Messung einer physikalischen Größe die Konzentration eines Stoffes eindeutig zu bestimmen, so kann auf diesem Meßprinzip ein In-Line Instrument entwickelt werden. Geht dem eigentlichen Meßvorgang allerdings eine Abtrennung des zu bestimmenden Stoffes voraus oder kann die eigentliche Messung erst nach einer Reaktion mit einem Reagenz, wie z.B. bei der Kolorimetrie, durchgeführt werden, so werden solche Analysen im allgemeinen günstiger im Labor durchgeführt.

Die Vorteile der Verwendung von In-Line Instrumenten (Abb. 2) liegen in der praktisch verzögerungsfreien dynamischen Aufzeichnung des Prozeßverlaufs, wodurch Trends des Prozesses schnell bemerkt werden können. Man kann sich kontinuierlich von der einwandfreien Funktion der Anlage überzeugen und im Falle einer Anomalie oder Unregelmäßigkeit des Prozesses rasch handeln. Im

1. PHYSIKALISCHE MESSGRÖSSEN

Druck

Temperatur

Fluß

Lage der Trennschicht

Niveaumessung in Behältern

2. CHEMISCHE MESSGRÖSSEN

Urankonzentration

Plutoniumkonzentration

Säurekonzentration

Spaltproduktkonzentration

TBP-Konzentration



IHCH

**Auswahl von Meßgrößen zur Prozeßüberwachung
der Wiederaufarbeitung**

In-Line Instrumente	Laborverfahren
Direkte Messung physikalischer Größen	Messung physikalischer Größen erst nach eingehender Probenvorbereitung
Kontinuierliche Messung	Diskrete Proben
Erfassung des dynamischen Prozeßverhaltens	Erfassung des statischen Prozeßzustandes
Genauigkeit geringer	Genauigkeit größer
Arbeitsaufwand gering	Arbeitsaufwand größer
Zeitverzug praktisch null	Zeitverzug größer
Trend des Prozesses schnell zu bemerken	Trend des Prozesses relativ spät zu bemerken (je nach Probenfrequenz)

Gegenüberstellung der Vor- und Nachteile von In-Line Instrumenten und Laborverfahren.

übrigen kann die Auswirkung der Änderung eines Prozeßparameters auf die Funktionsweise eines Anlagenteils leicht bestimmt werden.

Voraussetzung für den Einsatz eines In-Line Instrumentes in einem bestimmten Prozeßstrom ist die Kenntnis des Zusammenhangs zwischen der gefragten Größe und dem Meßwert. Die wichtigsten Anforderungen an ein In-Line Instrument sind (Abb. 3):

1. Das gemessene Volumen sollte für den gesamten Strom repräsentativ sein, d.h. das Ergebnis sollte nicht durch örtliche Ablagerungen von Feststoffen oder durch Konzentrationsänderungen verfälscht sein.
2. Das Instrument sollte eine lange Lebensdauer haben und möglichst wartungsfrei sein. Es sollte daher möglichst wenig komplizierte Mechanik, Motoren, Pumpen und Ventile enthalten. Defekte Teile sollten unter den erschwerten Bedingungen des aktiven Betriebes leicht und schnell zu ersetzen sein.
3. Die verwendeten Materialien sollten möglichst resistent gegenüber den Prozeßmedien und der Strahlung sein.
4. Die Funktionsfähigkeit des Instruments sollte von der Warte aus überprüft und das Instrument nachgeeicht werden können.
5. Der gemessene Strom sollte direkt wieder in den Prozeß zurückgehen, d.h. die Anwendung chemischer Reagentien ist beschränkt und sollte nicht zu zusätzlicher Wasteproduktion führen.

**Geringe Meßwertverfälschung durch Fremdstoffe,
Verunreinigungen und Strahleneinwirkung**

Repräsentative Meßwerterfassung

Korrosionsbeständigkeit

Strahlungsbeständigkeit

Lange Lebensdauer bei weitgehender Wartungsfreiheit

**Hohe Meßwertkonstanz innerhalb der Meßgenauigkeit
ohne Beeinträchtigung der Zuverlässigkeit**

Möglichkeit der Nacheichung während des Betriebes

Rückführung der Meßströme in den Prozeß

Möglichst großer dynamischer Bereich

afk

IHCH

Anforderungen an In-Line Instrumente

Abb. 3

Neben dem Einsatz von In-Line Instrumenten wird man aber nie auf Laboranalysen verzichten können, da manche Messungen nur nach längerer Probenvorbereitung möglich sind oder weil zumindest bis jetzt für verschiedene Bestimmungen nur Methoden einsetzbar sind, die prinzipiell nicht für In-Line Instrumente geeignet sind. Neben diesen Analysen sind in regelmäßigen Abständen Analysen zur Kontrolle von In-Line Instrumenten durchzuführen.

Verallgemeinernd kann man sagen, daß In-Line Instrumente zur Konzentrationsmessung der Hauptkomponenten von Prozeßströmen und als Schwellenmonitore geeignet sind. Zur Konzentrationsbestimmung von Spuren muß man sich der Labormethoden bedienen. Darunter sind z.B. folgende Bestimmungen zu verstehen:

1. α -Spektroskopie
2. γ -Spektroskopie
3. Bestimmung von Spuren von Uran oder Plutonium nach vorhergehender Abtrennung
4. Bestimmung von Spuren von Dibutylphosphat im Extraktionsmittel
5. Titrationsen
6. Sämtliche Messungen zur Eichung und Kontrolle von In-Line Instrumenten

Es handelt sich hierbei um immer wiederkehrende Routinebestimmungen, die wegen der notwendigen Abschirmungen fernbedient durchgeführt werden müssen. Um die Strahlenbelastung des Personals zu verringern und die Arbeiten an heißen Zellen zu erleichtern und zu beschleunigen, arbeiten wir an der Automatisierung dieser Analysen (Abb. 4). Vorteilhaft ist auch, daß wegen des schnelleren Probendurchsatzes eine größere Zahl von Eichproben durchgesetzt werden können. Dies und der im Vergleich zu manuellen Methoden wesentlich reproduzierbarere Analysenablauf führt auch zu einer größeren Reproduzierbarkeit und Genauigkeit der Analyseergebnisse.

Geringe Strahlenbelastung des Personals

Schnellerer Probendurchsatz

Größere Reproduzierbarkeit

Leichtere Überwachung des Betriebes der Analytik

Erhöhter Durchsatz von Eichproben



IHCH

Vorteile der Automatisierung eines Routinelabors

Abb. 4

3. In-Line Instrumente

Allgemeine Meßprinzipien für die im Moment in Entwicklung befindlichen In-Line Instrumente sind (Abb. 5):

1. Messung der α -Strahlung
2. Messung der β -Strahlung
3. Messung der γ -Strahlung aus Prozeßlösungen oder einer anderen Quelle
4. Messung der n-Strahlung aus Prozeßlösungen oder einer anderen Quelle
5. Messung der Dichte
6. Messung der Leitfähigkeit
7. Messung der Lichtabsorption

Für die Messung der α -Strahlung haben wir einen α -Monitor entwickelt, der auf dem Trommelprinzip beruht (Abb. 6). Eine rotierende Walze wird von der zu messenden Prozeßlösung benetzt und die α -Aktivität des Flüssigkeitsfilmes gemessen. Die Schutzfolie über der Walze soll Kontamination der Detektoroberfläche verhindern. Der Eichteller gibt die Möglichkeit, die Funktionsfähigkeit der Meßelektronik zu prüfen und zu eichen, bzw. durch einfache Abschirmung der Walze die Kontamination der Schutzfolie zu bestimmen.

Aus dem Meßwert kann die Konzentration an Plutonium errechnet werden, sofern die Prozeßführung garantiert, daß die α -Aktivität von Uran bzw. von Transplutoniumelementen vernachlässigt oder deren Einfluß korrigiert werden kann.

Die damit nachzuweisende Menge an Plutonium-239 liegt zwischen 1 mg/l und 10 g/l in wäßrigen Lösungen. Die Genauigkeit der Bestimmung beträgt je nach Konzentration zwischen 5 und 10 %. Daneben können bis zu 10 Ci/l γ -Aktivität von Spaltprodukten in der Lösung vorhanden sein. Das Gerät kann zur Analyse

Messung von α -Strahlung aus Prozeßlösung

Messung von β -Strahlung aus Prozeßlösung

**Messung von γ -Strahlung aus einer Prozeßlösung oder
einer anderen Quelle**

**Messung von n-Strahlung aus Prozeßlösung oder
einer anderen Quelle**

Messung der Dichte

Messung der Leitfähigkeit

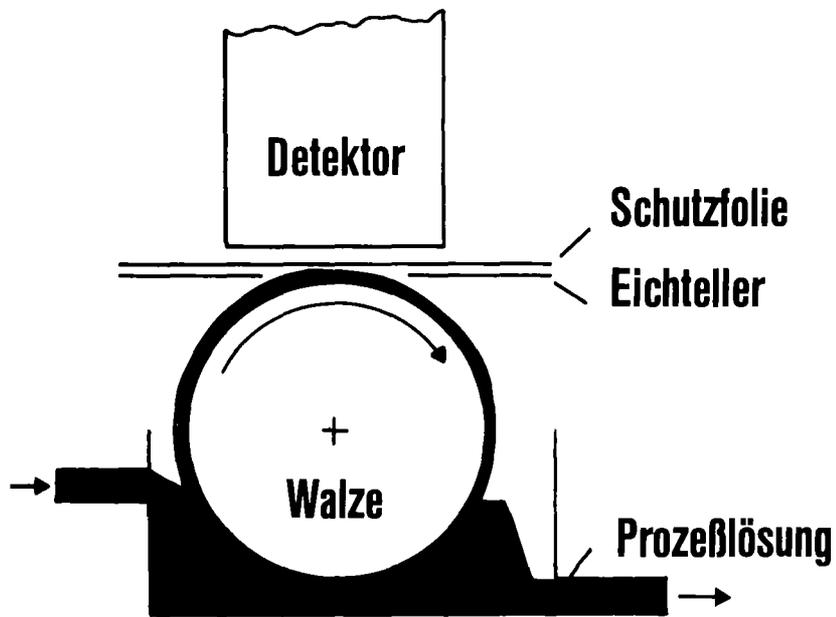
Messung der Lichtabsorption



IHCH

Meßprinzipien für In-Line Instrumente

Abb. 5



Konzentrationsbereich 10^{-3} - 10 g Pu/l
Meßfehler ± 5 - 10%
Dekontamination: 98%

afk

IHCH

Schema eines α -Monitors nach dem Trommelprinzip

in Plutoniumströmen und als Monitor von Spuren in Waste- oder Uranströmen eingesetzt werden. Für den Betrieb als Monitor ist wichtig, daß die gemessene α -Aktivität nach 4-maligem Spülen mit 200 ml Säure auf 2 % der zuletzt gemessenen Konzentration sinkt. Diese Ergebnisse wurden während eines mehrmonatigen Versuchslaufes in einem simulierten Kreislauf ermittelt. Ein α -Monitor wurde zum Einsatz im 2AW-Strom der WAK vorbereitet (Abb. 7) und wird noch im Laufe dieses Jahres in Betrieb genommen.

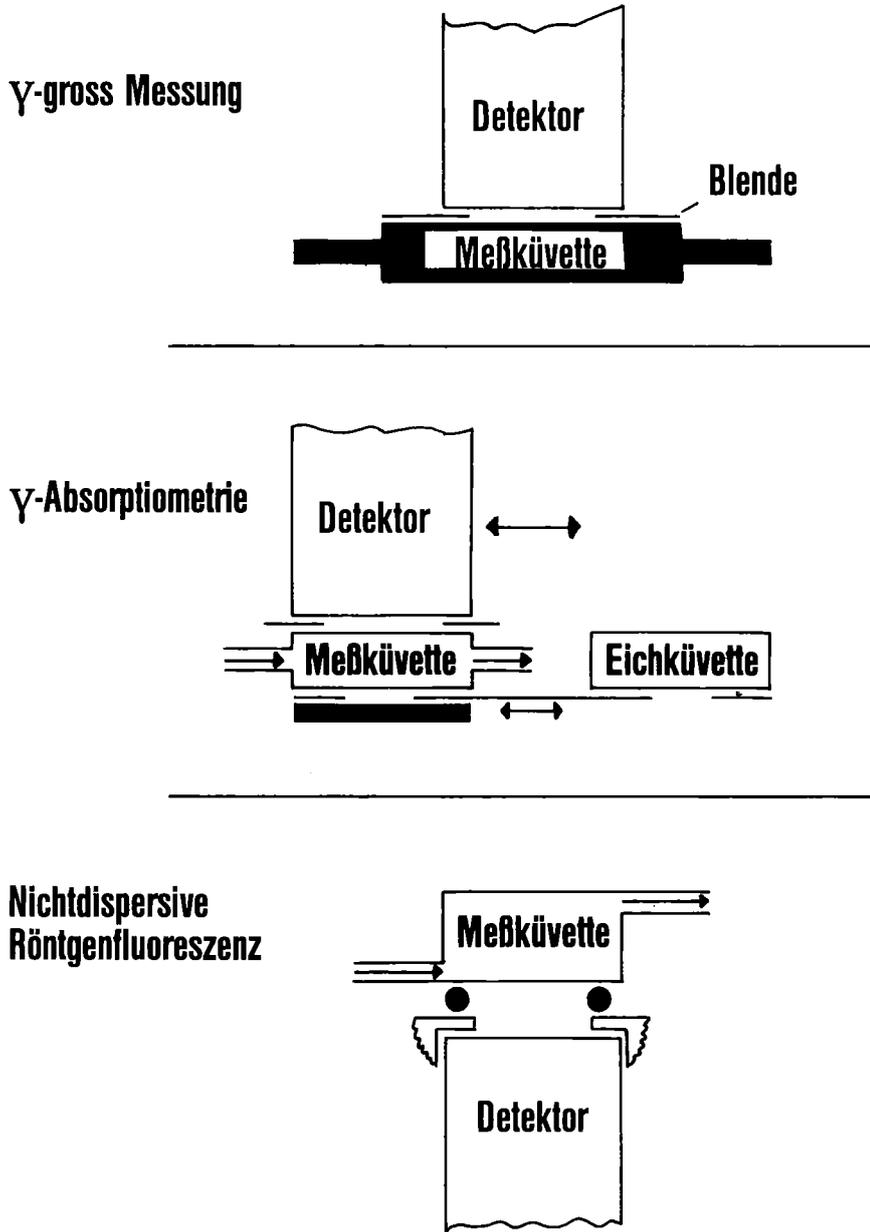
Folgende Analysenmethoden basieren auf der Messung von γ -Strahlung (Abb. 8):

1. Es kann die γ -Strahlung von Prozeßlösung gemessen und damit der Gehalt an Spaltprodukten bestimmt werden (γ -Monitor).
2. Durch Messung der Schwächung der γ -Strahlung einer Quelle kann der Schwermetallgehalt einer Prozeßlösung bestimmt werden. Je nach Prozeßstrom handelt es sich hierbei um Uran und/oder Plutonium. Durch Abdeckung der Quelle mit einer Abschirmung kann die Eigenaktivität der Lösung bestimmt und der Meßwert korrigiert werden (γ -Absorptiometrie).
3. Durch Messung der Fluoreszenzstrahlung, die von β - oder γ -Strahlung einer externen Quelle angeregt wurde, kann die Konzentration von Uran, Plutonium oder auch anderen Lösungsbestandteilen bestimmt werden. Während die γ -Absorptiometrie nicht spezifisch für Uran und Plutonium ist, können mit der Röntgenfluoreszenz die beiden Spaltstoffe allein bestimmt werden. Inwieweit eine simultane Bestimmung von Uran und Plutonium möglich ist, kann im Moment noch nicht gesagt werden, da die Versuche noch nicht abgeschlossen sind.

Die Bestimmungsgrenzen liegen bei der γ -Absorptiometrie zwischen 10 und 350 g Schwermetall/l, bei der nichtdispersiven Röntgenfluoreszenz zwischen 0,05 und 50 g (Uran + Plutonium)/l.



Abb. 7



In-Line Instrumente auf der Basis von γ -Messung IHCH

In Abb. 9 sind die Ergebnisse der Entwicklung von In-Line Instrumenten tabellarisch zusammengefaßt.

Daneben entwickeln wir gemeinsam mit Industriepartnern ein In-Line Photometer, das, kombiniert mit einer Leitfähigkeitsmeßzelle, die Bestimmung von Uran-IV, Uran-VI, Plutonium-III, Plutonium-IV und Plutonium-VI gestattet. Als Lichtquelle verwenden wir einen abstimmbaren Farbstofflaser, der mittels Lichtleiter an eine Tauchzelle und weiter an den Detektor angekoppelt ist. Der Lichtleiter ist mit einer gasdichten koppelbaren Boxendurchführung versehen. Die Gesamtlänge des Lichtleiters kann bis 30 m betragen. Mit diesem In-Line Instrument ist es möglich, die Reduktion und Oxidation von Plutonium im 2. und 3. Plutoniumzyklus kontinuierlich zu überwachen.

Ferner haben wir einen Mini-Dekanter gebaut (Abb. 10). Es ist ein Schnitt durch einen in eine Kolonne eingebauten Mini-Dekanter wiedergegeben. Mit diesem Instrument ist es möglich, bis zu 3 ml/min kontinuierliche oder dispergierte Phase der Kolonne zu entnehmen und mit einem geeigneten In-Line Instrument die Konzentration des entsprechenden Stoffes laufend zu verfolgen. Wenn mehrere dieser Probennehmer über die Länge der Kolonne verteilt vorhanden sind, kann man das Konzentrationsprofil eines beliebigen Stoffes kontinuierlich verfolgen.

In der Versuchsanlage TAMARA haben wir in eine Kolonne sechs dieser Phasentrennapparate eingesetzt und das Konzentrationsprofil der organischen Phase an Uran untersucht, indem wir die Differenz der Dichte von der Kolonne entnommener organischer Phase und der des organischen Extraktionsmittels verfolgten (Abb. 11). Damit ist ein schnellerer Einblick in den Extraktionsablauf in einer Pulskolonne möglich.

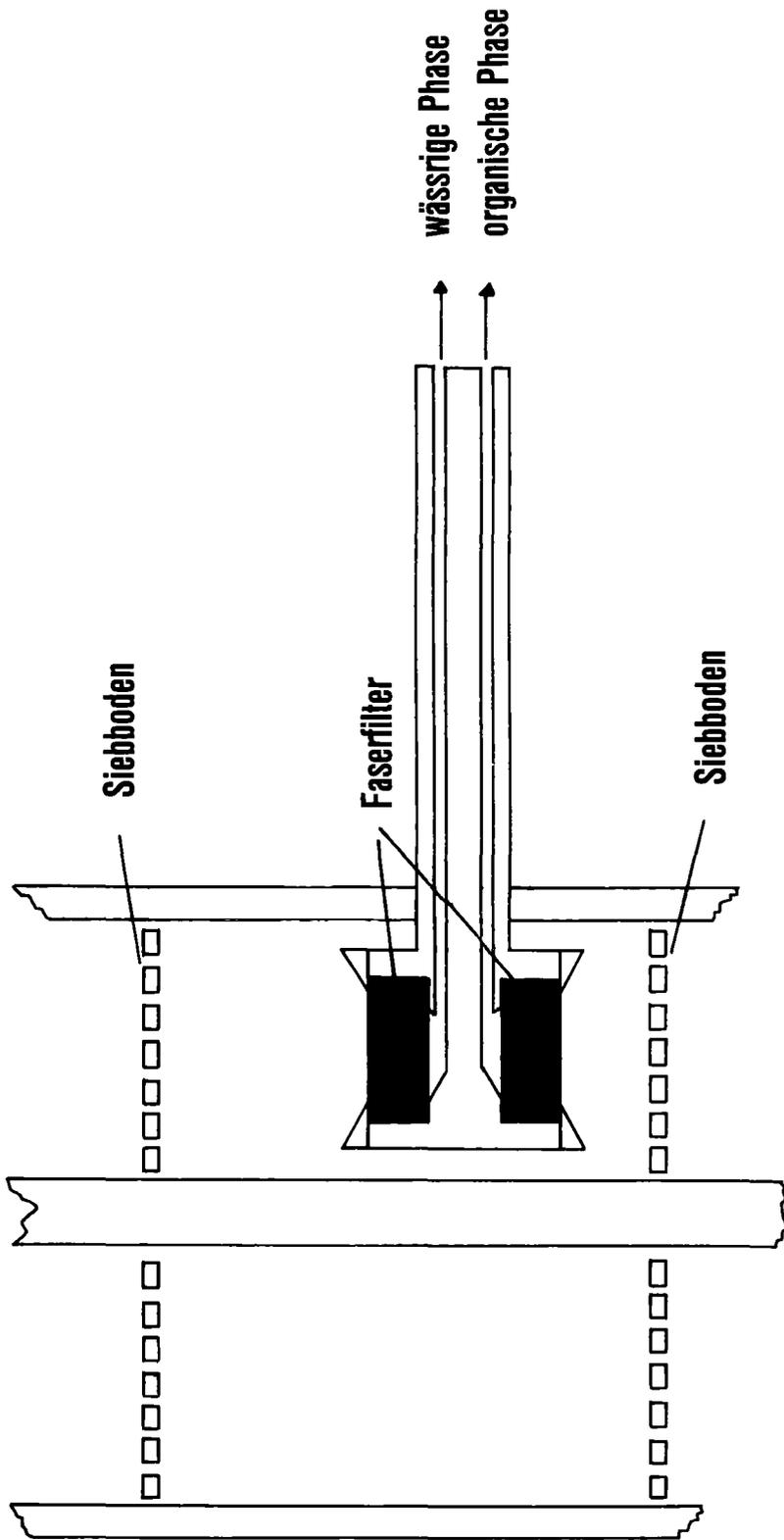
In Abb. 12 ist eine Auswahl der wichtigsten In-Line Meßstellen einer Wiederaufarbeitungsanlage wiedergegeben. Daraus geht hervor, daß verschiedene Meßstellen, wie z.B. in einigen Waströmen, mit In-Line Instrumenten als Schwellenmonitore ausgestattet sind. Gleichzeitig aber sind noch Probenahme-meßstellen vorgesehen. Diese Proben werden auch weiterhin im Routinelabor untersucht werden.

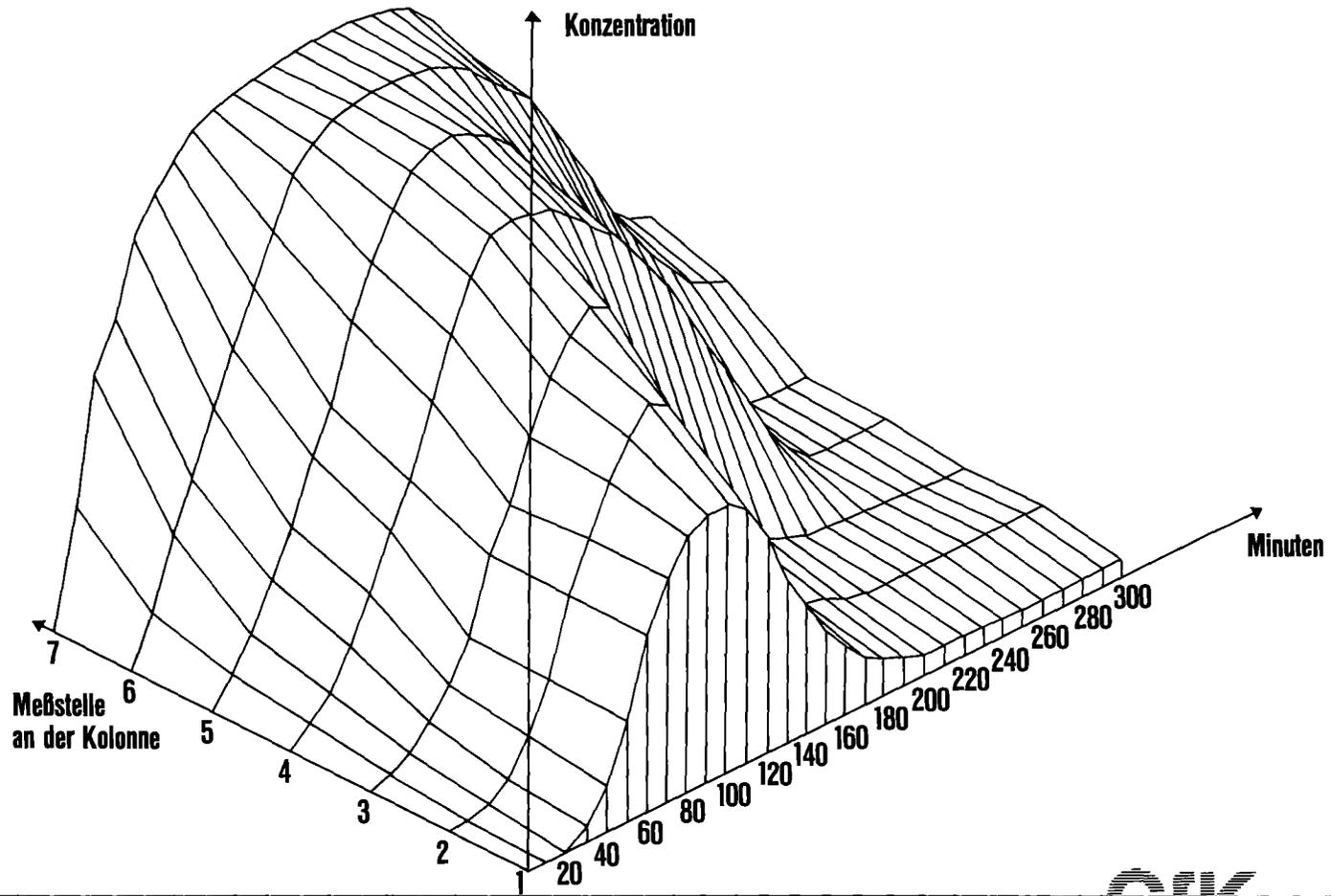
Methode	Bestimmungsgröße	Konzentration
α-Zählung	Plutonium	10⁻³-10 g/l
γ-Absorptiometrie	Uran und/oder Plutonium	10-350 g/l
Nichtdispersive Röntgenfluoreszenz	Uran und/oder Plutonium	0.05-50 g/l
Differenzdichte	Uran und/oder Plutonium	<100 g/l
Dichte/Leitfähigkeit	Uran und/oder Plutonium	U/Pu \leq 1 Mol/l HNO₃: 0.5-6 Mol/l



IHCH

Einsatzbereiche verschiedener In-Line Instrumente

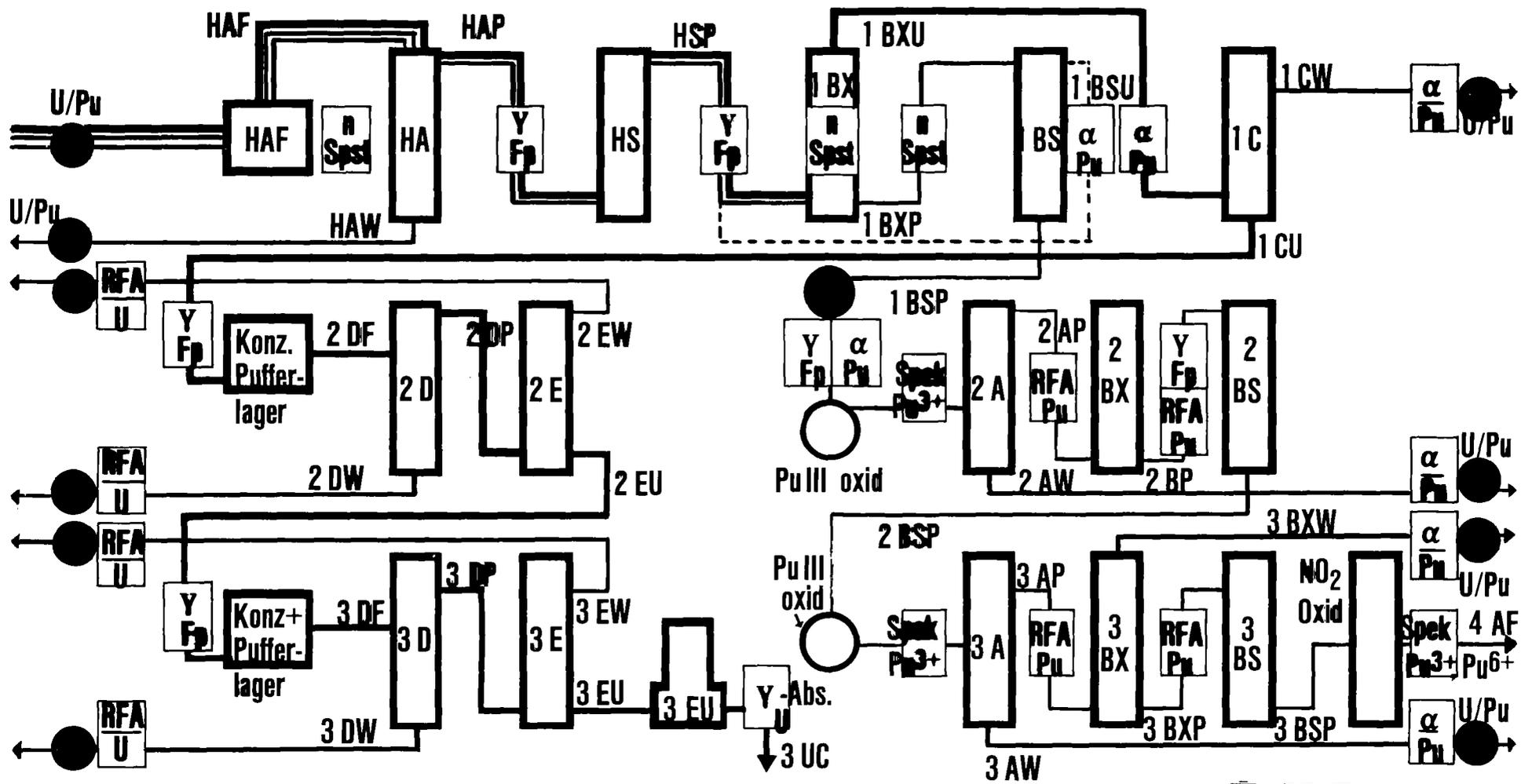




IHCH

KONZENTRATIONSPROFIL DER ORGANISCHEN PHASE IN EINER PULSKOLONNE

Abb. 11



In-Line Instrumentierung einer Wiederaufarbeitungsanlage

Abb. 12

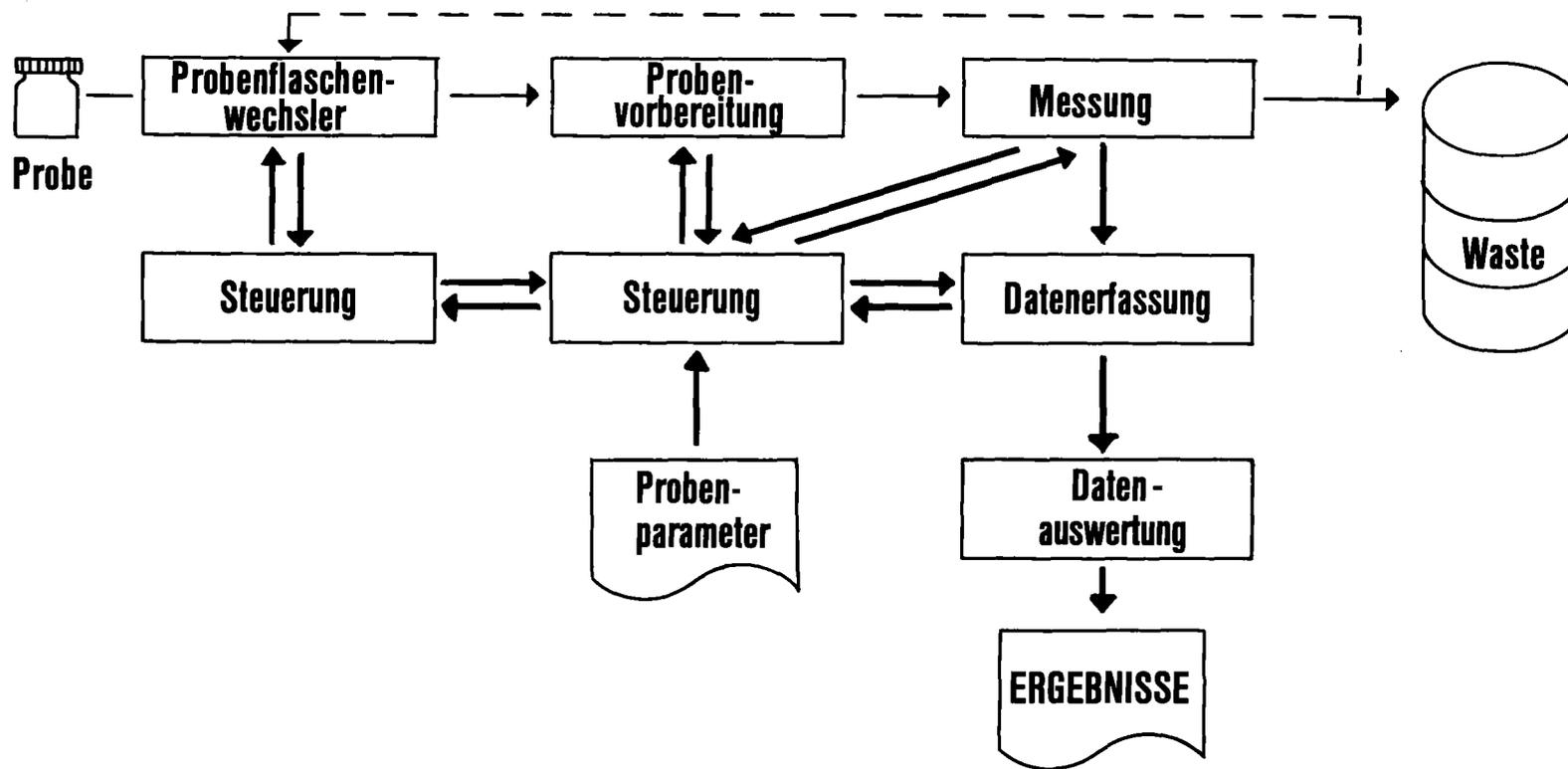
4. Laborautomation

Laborautomaten bestehen im allgemeinen aus einem Probenflaschenwechsler, einer Probenvorbereitung, die spezifisch für die jeweilige Bestimmungsmethode ist, und einer Meßapparatur (Abb. 13). Obwohl sich die Analysenautomaten hinsichtlich Umfang und Beschaffenheit voneinander stark unterscheiden, wird ein einheitlicher Aufbau - das gilt insbesondere für die Steuerung - angestrebt. Die Komplexität der Steuerung, die Meßwerterfassung und oft sehr umfangreiche Auswertung macht den Einsatz von frei programmierbaren Rechnern bzw. Mikroprozessoren zwingend erforderlich. Durch die Verwendung von Rechnern bzw. Prozessoren ist eine weitgehende Standardisierung der Hardware möglich. Wesentlicher Wert wird auf Zuverlässigkeit und Sicherheit der Automaten gelegt, um zu vermeiden, daß gefährliche Zustände (z.B. Kontamination) auftreten bzw. falsche Ergebnisse ermittelt werden. Erreicht wird dieses Ziel mittels Überwachungs- und Verriegelungseinheiten. Der Programmaufbau ermöglicht den Eingriff in den Steuerungsablauf, insbesondere zur Eingabe von Parametern, zur Durchführung von Eichmessungen und zur Fehlerdiagnose.

Ein komplexer Analysenstand kann aus mehreren Standardgeräten oder Komponenten aufgebaut sein, die mit eigener Mikroprozessor-Steuerung ausgerüstet sind. Sie werden in die Gesamtsteuerung, für die ein Rechner aus einer aufwärtskompatiblen Familie eingesetzt wird, integriert.

Neben der automatischen Steuerung erhält jeder Laborautomat eine Handsteuerung. Das ist besonders wichtig bei der Inbetriebnahme, zu Testzwecken und zum Eingreifen bei Störungen.

Für den Einsatz in der stark korrosiven Atmosphäre einer Handschuhbox bzw. einer heißen Zelle wurde ein Probenflaschenwechsler



IHCH

BLOCKDIAGRAMM EINES LABORAUTOMATEN

Abb. 13

(Abb. 14) entwickelt, der die kontinuierliche Versorgung der Analysenautomaten mit Proben gewährleistet. Er ist so konstruiert, daß er sich auch mit Handschuhen bzw. mit Manipulatoren warten läßt. Der mechanische Antrieb erfolgt pneumatisch.

Der Probenflaschenwechsler ist mikroprozessorgesteuert und kann als sogenannte selbständige Komponente (über ein spezielles Interface) an den Hauptrechner des Analysenstandes angeschlossen werden.

Für die Bestimmung von Uran in hochaktiven Abfalllösungen wurde eine automatische Apparatur, basierend auf der extraktionschromatographischen Trennung von Uran und Spaltprodukten entwickelt. Die prinzipielle Anordnung ist in Abb. 15 dargestellt, die Realisierung für Tests unter simulierten inaktiven Bedingungen ist aus Abb. 16 ersichtlich.

Die Steuerung der Apparatur sowie die Meßwerterfassung und -auswertung erfolgt durch einen Mikroprozessor. Die Apparatur kann 2 - 130 mg Uran/l HAW mit 2 - 5 % Genauigkeit in 5 - 7 Minuten bestimmen. Im Moment laufen Vorarbeiten zum Aufbau einer heißen Testeinrichtung.

Eine weitere, für die Wiederaufarbeitung wichtige Analyse-methode ist die α -Spektroskopie. Diese Methode bedarf einer relativ aufwendigen Probenvorbereitung. Sie besteht aus Pipettieren, Wiegen, Verdampfen und Glühen (Abb. 17). Die präparierten (festen) Proben werden einem Probenwechsler übergeben und ausgemessen.

Bei der Probenpräparation wird der bereits erwähnte Probenflaschenwechsler eingesetzt. Die Steuerung der eigentlichen Präparation ist ebenfalls mit einem Mikroprozessor aufgebaut. Ein Prozeßrechner vom Typ PDP 11 koordiniert die Tätigkeiten von Probenflaschenwechsler, α -Präparation und Meßapparatur und

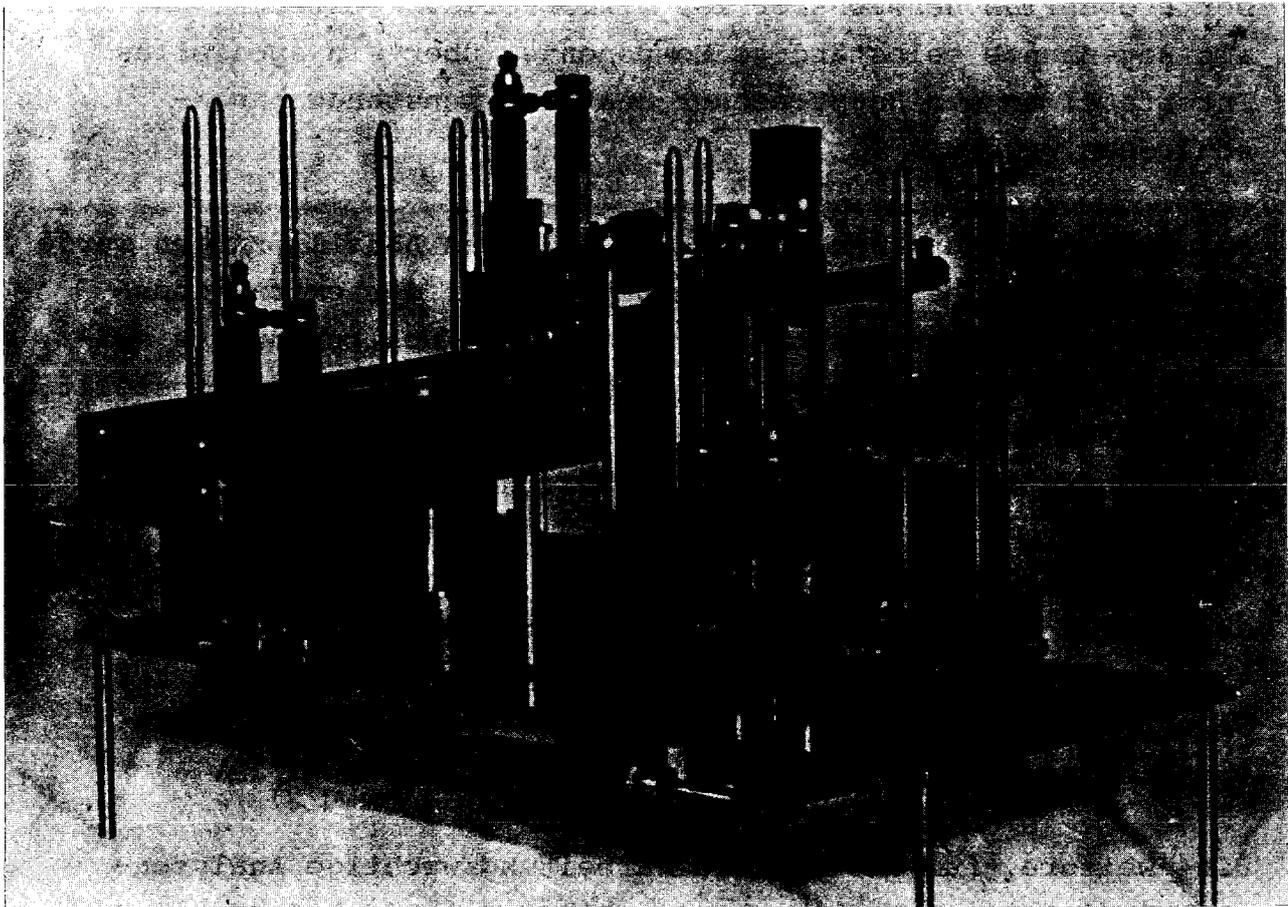
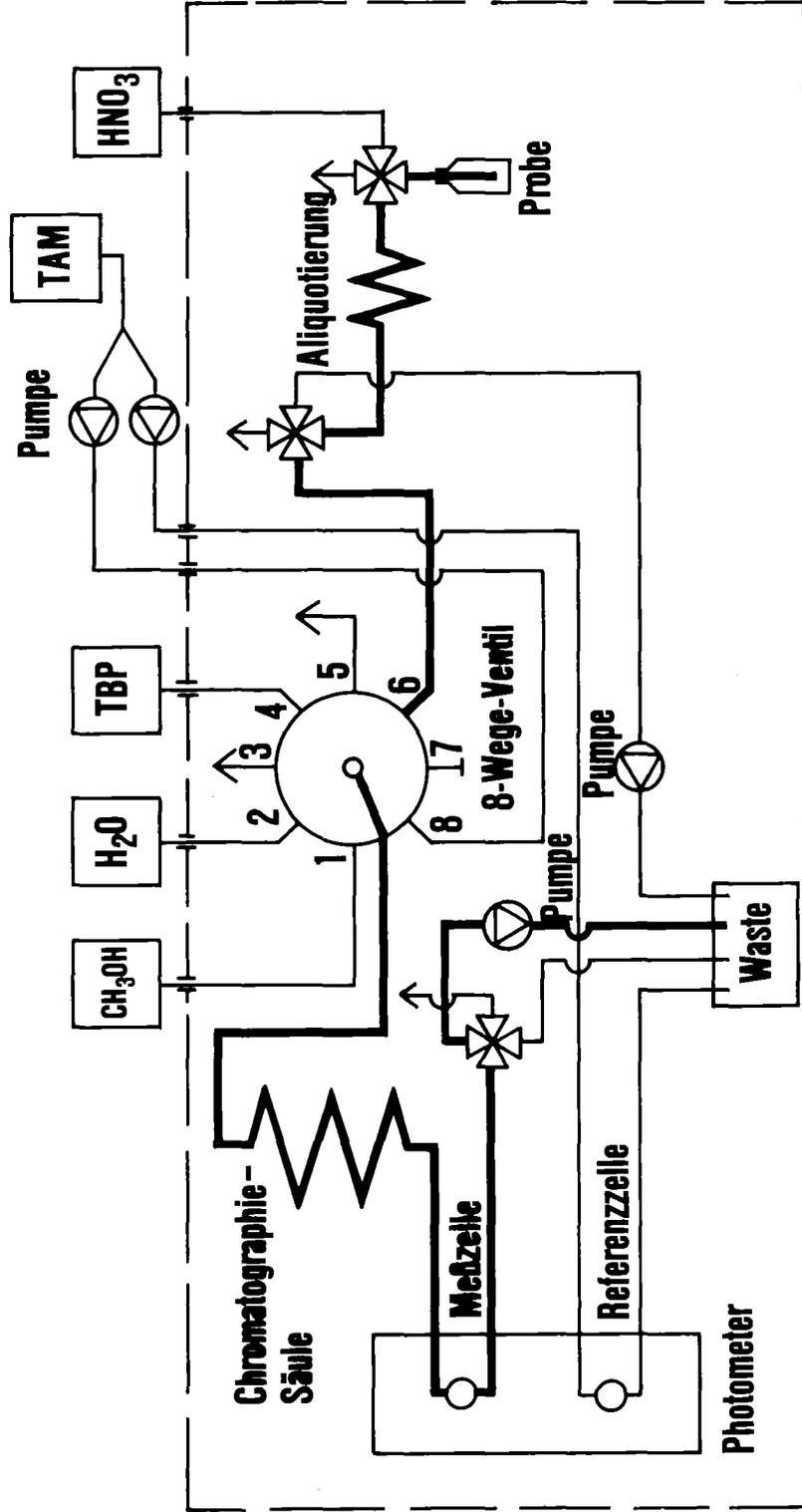


Abb. 14



GHK IHCH

Uran-Bestimmung in Waste-Lösungen

Abb. 15

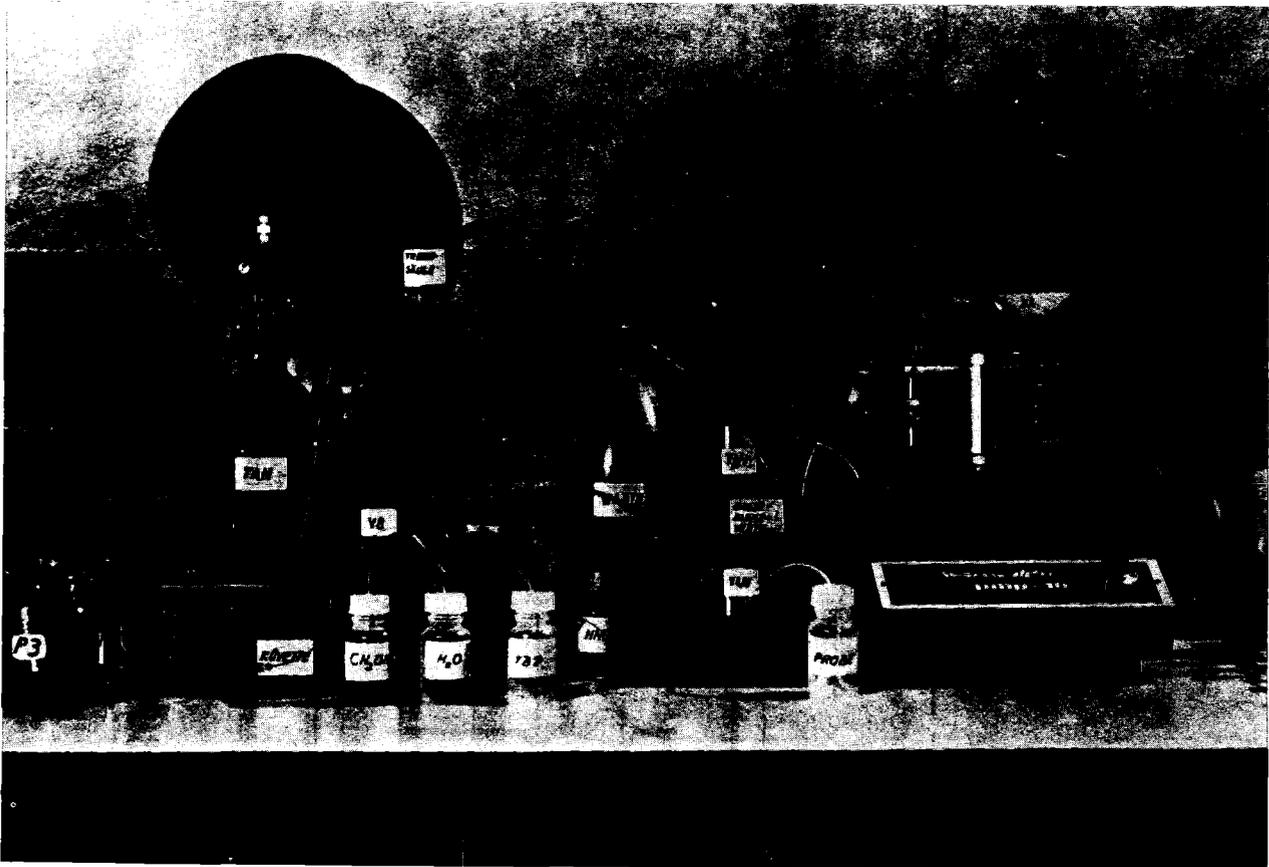


Abb. 16

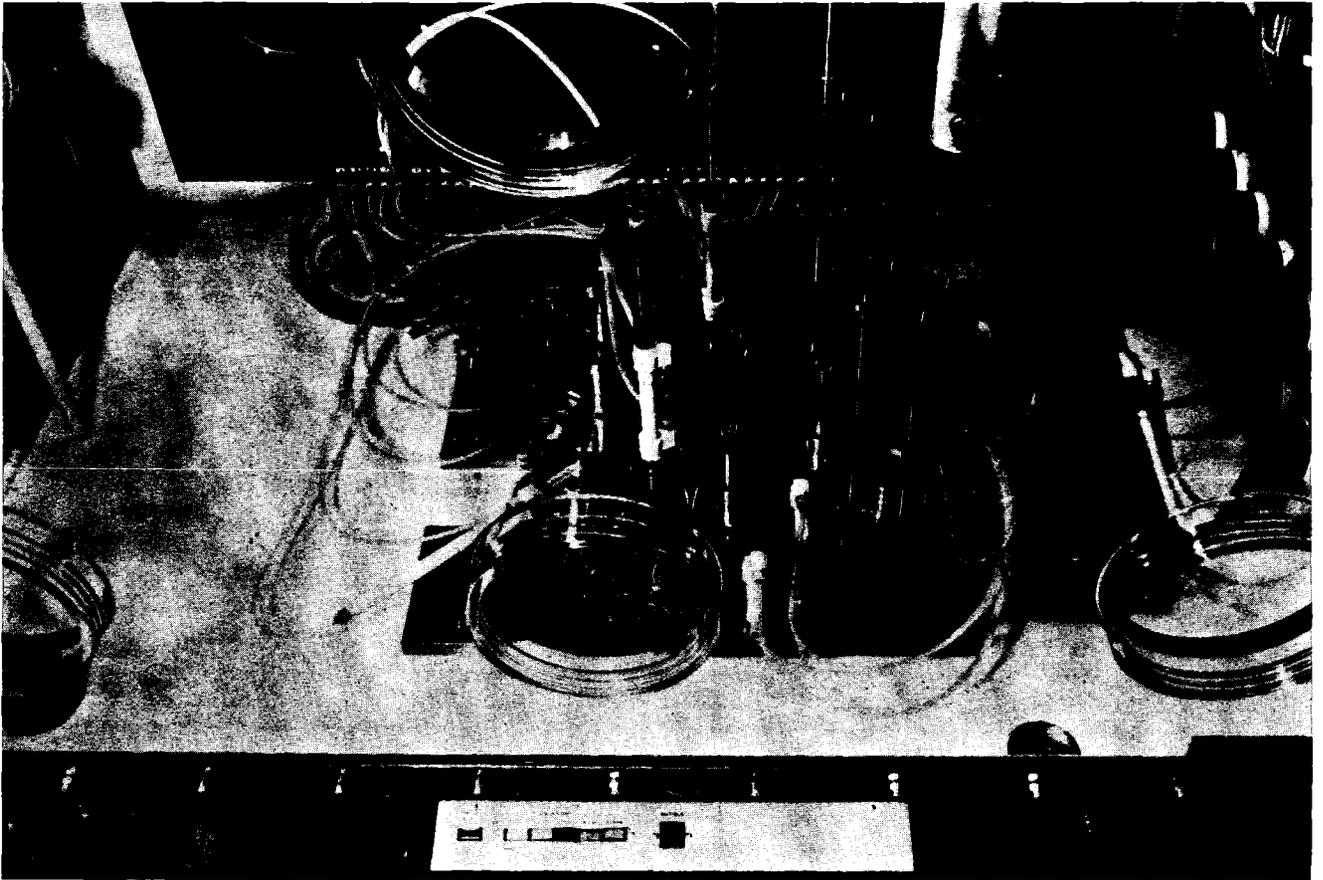


Abb. 17

übernimmt auch die Vielkanalfunktion bei der Erfassung der α -Spektren. Da die Spektrenauswertung ohne menschliche Eingriffe erfolgen soll, muß das Programm selbsttätig auswertbare Spektren erkennen und die Lage von Peaks feststellen können.

Während auf dem Gebiet der In-Line Instrumentierung schon einsatzbereite Geräte vorhanden sind, haben wir im Bereich der Laborautomatisierung noch eine längere Entwicklung vor uns, die dank der guten Zusammenarbeit von verschiedenen Instituten der Gesellschaft für Kernforschung auch gemeistert werden wird.

DV-System für das Betriebslabor einer Wiederaufarbeitungsanlage

R. Friehmelt, GfK/IDT

H. Bokelund, GWK

Zielsetzung

Was man mit DV-Methoden in der chemischen Analytik erreichen kann, zeigen eindrucksvoll die Durchsatz-, Zuverlässigkeits- und Genauigkeitssteigerungen in der Industrie und im medizinisch-klinischen Bereich. Deshalb liegt es nahe, die Einsetzbarkeit von DV-Methoden in einer Wiederaufarbeitungsanlage zu prüfen.

Für den Einsatz von DV-Methoden im Bereich der Analytik werden die wichtigsten Ziele zusammengefaßt. Für die Analysenergebnisse wird angestrebt:

- Erhöhung der Zuverlässigkeit
- Erhöhung der Genauigkeit
- Beschleunigung der Auswertung und Bereitstellung
- Gezielter Zugriff auf archivierte Werte

Eine wesentliche Voraussetzung für die sichere Handhabung von Spalt- und Abfallstoffen ist die Zuverlässigkeit aller Analysenergebnisse. Von der Bilanzierung und der Spaltstoffüberwachung werden höchste Ansprüche an die Genauigkeit der Analytik gestellt. Wichtiger Auslegungspunkt für eine große Wiederaufarbeitungsanlage ist die Durchsatzoptimierung. Deshalb sind eventuelle Abweichungen des Aufarbeitungsprozesses von den Sollvorgaben des Standardfließschemas so schnell wie möglich zu erkennen. Eine exakte Dokumentation, die den gezielten Zugriff auf die archivierten Werte erlaubt, soll eine wirksame Unterstützung für die Planung der großen Wiederaufarbeitungsanlage bieten.

Aufgaben des DV-Systems

Zur Erreichung der genannten Ziele werden dem DV-System folgende Aufgaben übertragen:

a) Datenerfassung

Erfaßt werden alle Analysenaufträge an das Labor, die Identifikationen aller Probenträger, die im Analytischen Labor erzeugten Rohwerte und die Transferdaten von Prozeßbehältern, insbesondere ihre Füllstände.

b) Auswertung

Nach methodenabhängigen Auswertevorschriften werden die Analyseergebnisse ermittelt und mit Hilfe der Transferdaten die aufgearbeiteten Stoffmengen berechnet.

c) Ergebnisprüfung

Vor ihrer Freigabe werden alle Ergebnisse geprüft. Neben Grenzwertabfragen werden Beziehungen zwischen den verschiedenen Bestimmungsgrößen eines Analysenauftrags (z.B. die Dichte-Säuremolarität-Urskonzentration-Beziehung) ausgenutzt, Trends in den Ergebnissen einzelner Probennahmestellen verfolgt und Korrelationen aus der Lage der Probennahmestellen im Fließschema ausgewertet.

d) Qualitätskontrolle der Analytik

Durch regelmäßig eingeschobene Prüfanalysen von Proben bekannter Zusammensetzung und deren unverzügliche Auswertung wird laufend die Qualität der Analyseergebnisse kontrolliert.

e) Auftragsüberwachung und Probenverfolgung

Das DV-System überwacht parallel den Bearbeitungsstand aller Analysenaufträge und Proben. Dadurch wird die Gefahr von Probenverwechslungen verringert und die termingerechte Bereitstellung der

Analysenergebnisse überwacht. Das DV-System übernimmt außerdem die Verwaltung der Probennehmermagazine.

f) Unterstützung der Probenverteilung

Das DV-System schlägt die Verteilung der Aufträge und Proben auf die Arbeitsplätze nach dem für das Standard-Fließschema gültigen Arbeitsplan vor.

g) Ergebnisdarstellung

Alle ermittelten Ergebnisse werden unverzüglich an den Auftraggeber gemeldet. Die erforderlichen Protokolle, Bilanzen und Übersichten werden automatisch erstellt.

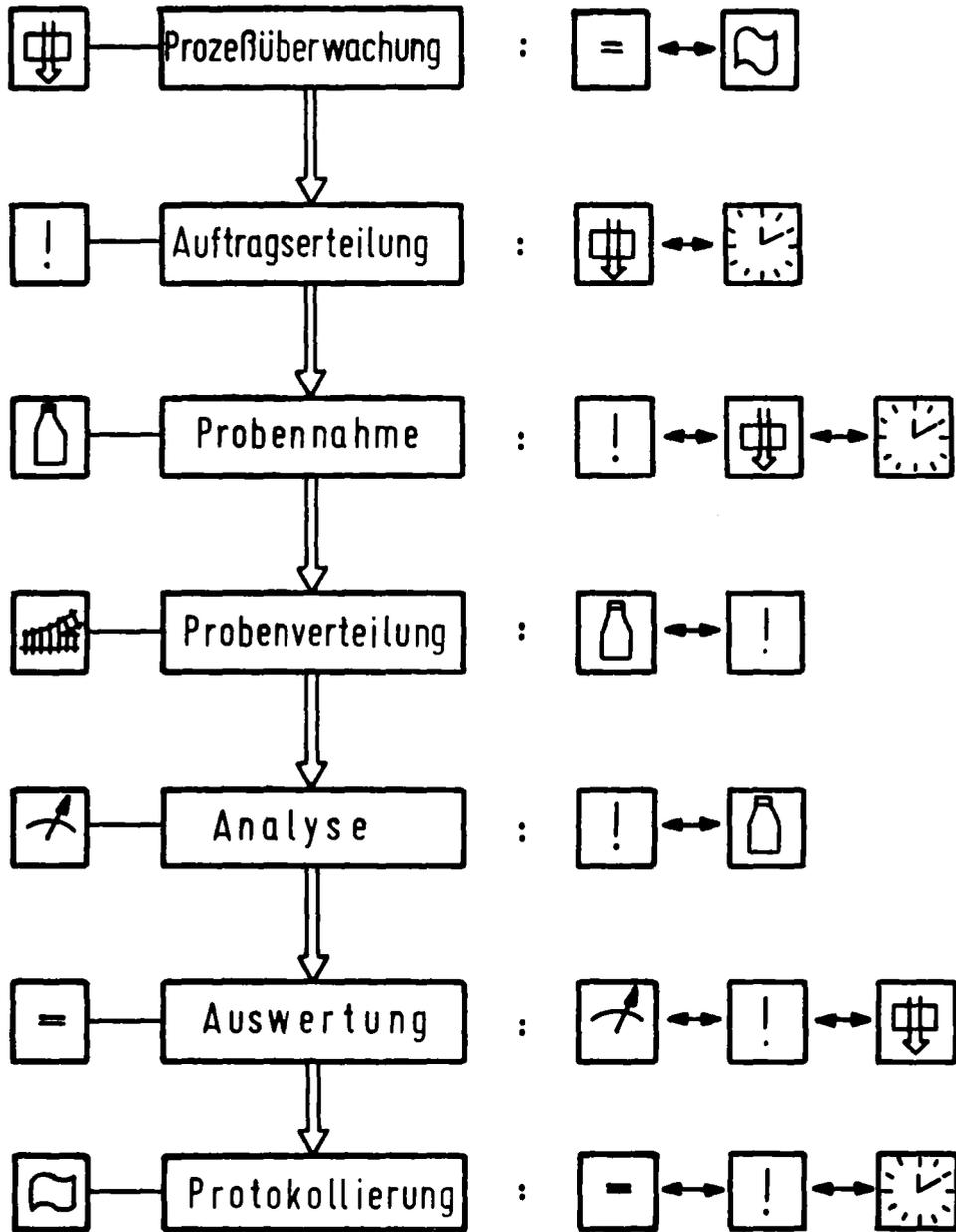
h) Datenhaltung

Die Speicherung aller Ergebnisse ermöglicht jederzeit die schnelle Bereitstellung früherer Ergebnisse. Diese können nach unterschiedlichen Kriterien (für bestimmte Zeiträume, Probennahmestellen, Bestimmungsgrößen oder Systemzustände) ausgewählt werden.

Es sei angemerkt, daß das DV-System grundsätzlich keine Steueraufgaben übernimmt.

Informationsverknüpfungen und Einbettung

Abb. 1 enthält die wichtigsten Arbeitsschritte der Analytik von der Auftragserteilung über die Probennahme, die Probenverteilung und die Analyse bis zur Auswertung. Jedem Arbeitsschritt ist am linken Bildrand ein Symbol zugeordnet. Rechts im Bild sind die wesentlichen Informationsverknüpfungen dargestellt, die in den einzelnen Arbeitsschritten notwendig sind. Beispielsweise sind bei der Auftragsertei-

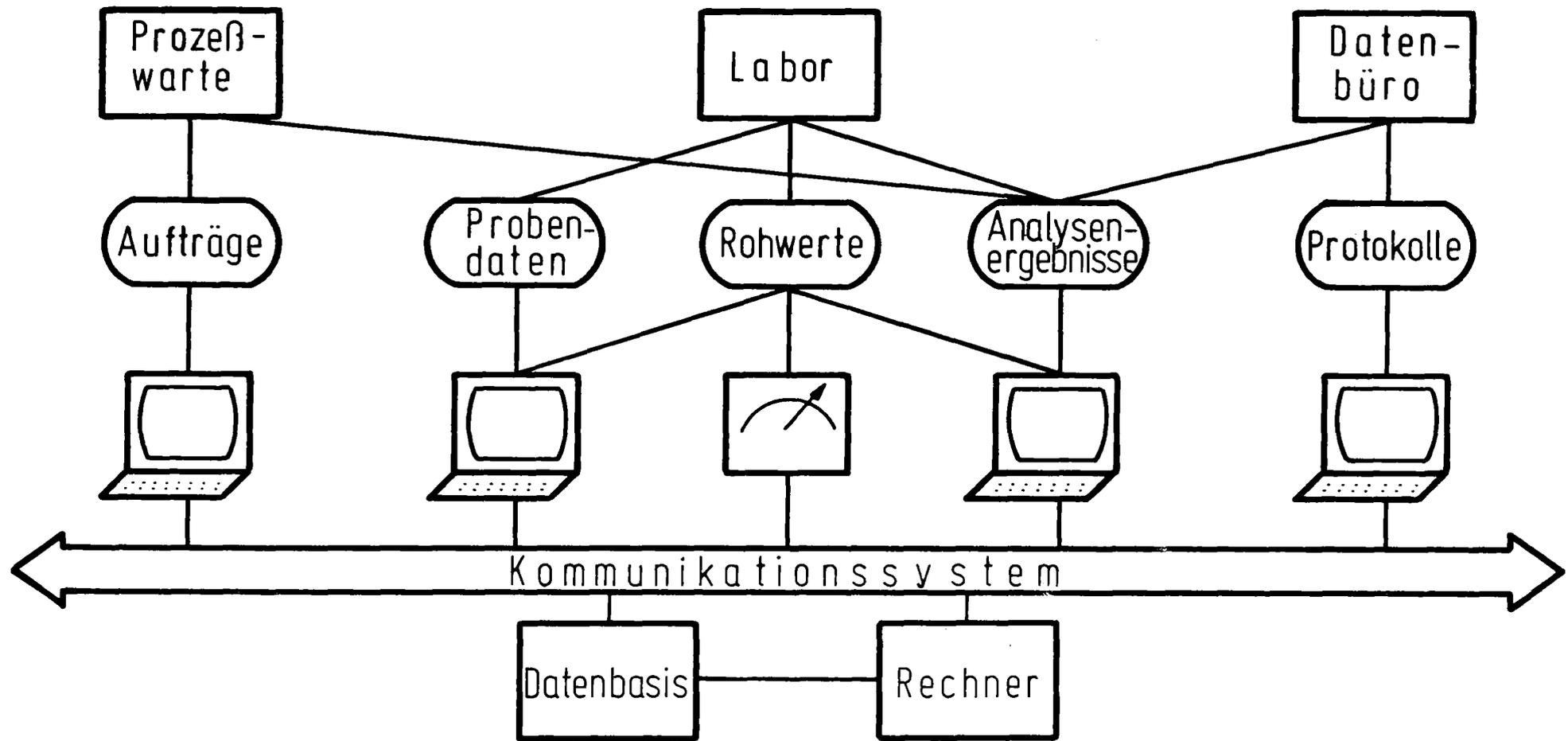


lung die Auftragsdaten, im Bild durch das Symbol für Prozeßüberwachungsinformation gekennzeichnet, mit dem Zeitpunkt der Auftragserteilung zu verknüpfen. Bei der Probennahme ist aus den Auftragsdaten die Probennahmestelle abzuleiten und mit dem Zeitpunkt der Probennahme zu verknüpfen. Bei der verwirrenden Vielfalt der im Bild verdeutlichten Informationsverknüpfungen erscheint der Einsatz eines DV-Systems sinnvoll.

Darüber hinaus geht aus Abb. 1 hervor, daß zweckmäßigerweise das DV-System nicht auf die Analytik beschränkt wird, sondern die Prozeßwarte als Auftraggeber ebenso einbezogen wird wie das Datenbüro, das für die Protokollierung zuständig ist. Dies gilt speziell für die derzeitige Organisation der Wiederaufarbeitungsanlage Karlsruhe (WAK). Bei einer großen Wiederaufarbeitungsanlage sind die Schnittstellen für ein DV-System innerhalb eines Gesamtkonzepts geeignet festzulegen.

Die Einbettung des DV-Systems in den derzeitigen Betriebsablauf der WAK geht aus Abb. 2 hervor. In der Mitte ist der Systemkern für das analytische Labor zu erkennen, der als wichtigste Informationen Proben-
daten, Rohwerte und Analyseergebnisse mit dem unten angedeuteten Rechnersystem austauscht. Die Analysen- und Transferaufträge werden von der Prozeßwarte in das DV-System eingegeben, die Protokolle an das Datenbüro ausgegeben.

Wie in Abb. 2 angedeutet, ist das System im wesentlichen ein Teilnehmersystem. An jeder Dialogstation, also in der Prozeßwarte, am Probennahmepult und in der Nähe jedes Arbeitsplatzes im Analytischen Labor, sind über das Kommunikationssystem alle im DV-System enthaltenen Informationen verfügbar. Durch die direkte Eingabe der Rohwerte über das Meßgerät-Symbol in das Kommunikationssystem soll die vorgesehene Schnittstelle für den direkten Anschluß von automatisierten Analysenständen angedeutet werden.



Einbettung des DV-Systems
Abb. 2

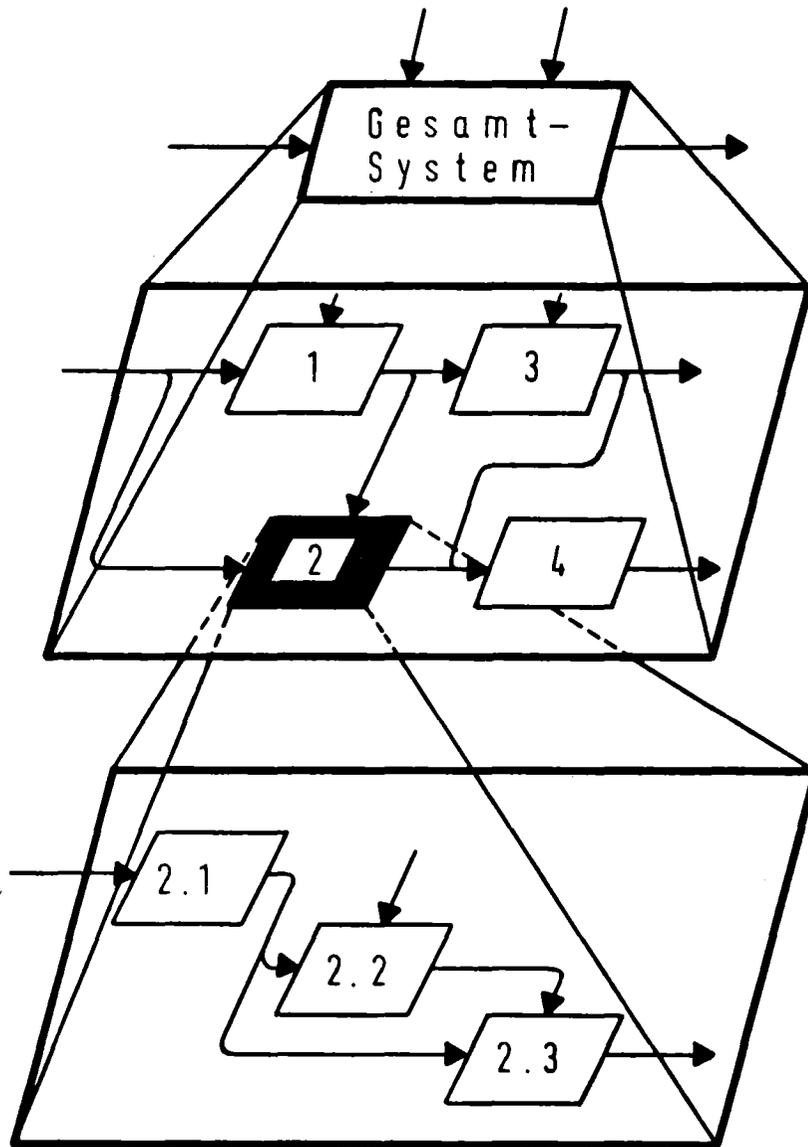
Systemplanung

Um ein System zu entwickeln, das die genannten Anforderungen mit hoher Zuverlässigkeit erfüllt, ist nach einer gründlichen Systemanalyse der gesamte Handlungsablauf durch sogenannte Aktigramme grafisch dargestellt worden. Die Grundzüge der verwendeten Darstellungsmethode SADT ("Structured Analysis and Design Technique", /1/) werden kurz erläutert (Abb. 3). Das zu beschreibende Gesamtsystem wird schrittweise in Aktionsblöcke zerlegt. Die kastenförmig dargestellten Aktionsblöcke (wie z.B. "Prozeß überwachen", "Probe ziehen") sind durch pfeilförmig verdeutlichte Informations- und Materialflüsse (wie z.B. "Analyseergebnis", "Probe") miteinander verknüpft. Unterschieden werden Eingangs- informationen, die von den Aktionsblöcken benutzt oder verbraucht werden (von links in die Blöcke mündend), Kontroll- oder Steuerinfor- mationen (von oben), Berechnungsvorschriften oder andere Hilfsinformatio- nen oder -mechanismen (von unten) und Ausgangsinformationen (nach rechts aus den Blöcken herauskommend).

Der hierarchische Aufbau der Aktigramme unterstützt die systematische Zerlegung von Handlungsabläufen. Jeder Aktionsblock kann so weit zer- legt werden, wie es für die Systemplanung notwendig erscheint. Kom- plizierte oder kritische Aktionen werden ggf. bis zu ihren Einzelfunk- tionen aufgelöst. Die Zahl der Detaillierungsstufen liegt im vorliegen- den Anwendungsfall zwischen 3 und 6 .

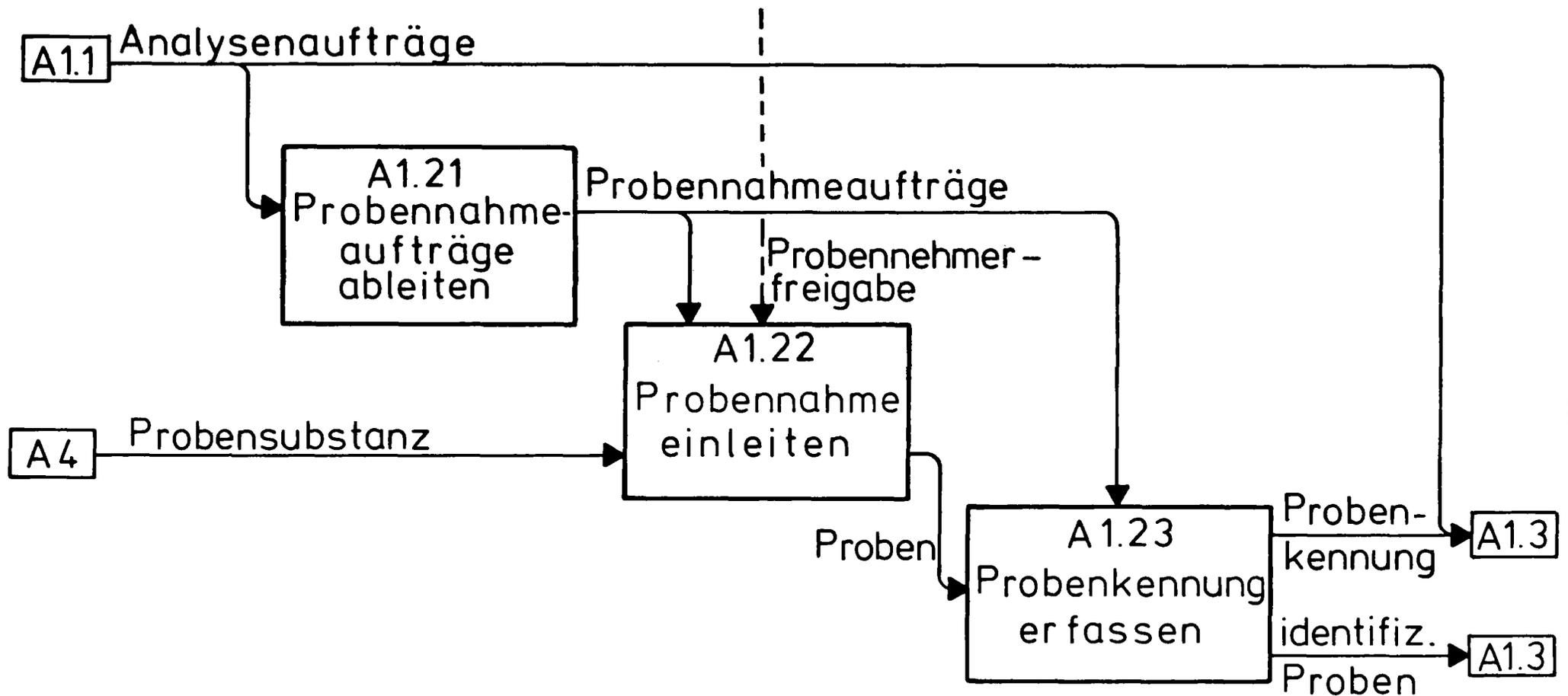
Zur Veranschaulichung dient eines der während der Systemplanung ent- standenen Aktigramme (Abb. 4). Der hier verfeinerte Block "Proben zie- hen" gehört zur Detaillierungsstufe 3 . Er ist einer von vier Blöcken des übergeordneten Blocks A1 "Meßwerte erfassen". Eingänge aus anderen Blöcken sind die Analysenaufträge aus dem Block A1.1 "Auftragsertei- lung" und die Probensubstanz aus dem Prozeß (A4). Die Verknüpfungen am Bildrand ergeben eine eindeutige und klare Schnittstellenbeschreibung. Nach Ableitung der Probennahmeaufträge aus den Analysenaufträgen in

/1/ Structured Analysis and Design Technique. SofTech, Inc.,
460 Totten Pond Road, Waltham, Massachusetts 02154.



Strukturierte Zerlegung nach
der SADT - Methode /1/

Abb. 3



Block A 1.2 "Proben ziehen" als Beispiel
 Abb. 4 eines Aktigramms

A1.21 können die Aktion "Probennahme einleiten" und nach Vorliegen der entsprechenden Proben die Aktion "Probenkennung erfassen" ablaufen. Die erzeugte Information Probenkennung wird in den entsprechenden Analysenauftrag eingetragen und zusammen mit den identifizierten Proben an den Aktionsblock A1.3 "Laboranalysen durchführen" weitergegeben.

Alle hier dargestellten Einzelaktivitäten A1.21 bis A1.23 sind bei der Systemplanung weiter detailliert worden. Der Übersichtlichkeit halber ist die Abbildung 4 stark vereinfacht worden. Insbesondere fehlt der Block "Probennehmermagazine verwalten" völlig. Lediglich die Probennehmerfreigabe ist als Kontrollinformation (von oben in A1.22 mündend) angedeutet. Auch die Berechnungsvorschriften und Hilfsinformationen sind der Übersichtlichkeit halber weggelassen worden.

In der Praxis hat sich bewährt, die Aktigramme ggf. mit Erläuterungen zu versehen. Als Beispiel sei an dieser Stelle erwähnt, daß der Begriff "Probennahmeauftrag" in der WAK derzeit von den Analytikern nicht benutzt wird. Er hat sich bei der Systemplanung zur Datenstrukturierung als nützlich erwiesen, kann aber, wenn der Anwender es wünscht, völlig systemintern behandelt werden und braucht für den Analytiker überhaupt nicht sichtbar zu werden.

Stand des Vorhabens

Die während der Systemplanung erstellten etwa 30 Aktigramme bilden eine gute Grundlage für den Systementwurf. Sie sind vom Anwender leicht verstanden worden. Auf ihrer Grundlage ist inzwischen die Systemspezifikation zwischen Systemplanern und Anwendern abgestimmt worden.

Die Aktigramme betonen, obwohl sie auch die Datenflüsse darstellen, stark die Aktionen. Zur detaillierten Spezifikation der Dialogdaten wurde folgende Methode angewandt. Die Ein- und Ausgabedaten des DV-Systems sind für alle Dialoge zwischen Anwender und DV-System in Form einer Matrix festgelegt worden, die bei der Zusammenstellung der Daten

als Fragebogenschema gedient hat. Zu jeder Variablen sind als wichtigste Attribute u. a. angegeben:

- E/A-Kennung (Ein- oder Ausgabevariable)
- E/A-Art (manuelle oder direkte Eingabe oder Rechnervorschlag)
- Einheit (physikalische bzw. chemische)
- Format (Anzahl Ziffern oder Zeichen)
- Prüfmöglichkeiten (Grenzwerte, Korrelationen)
- Lebensdauer (Aufbewahrungsfrist im System).

Die einzelnen Dialoge sind über die Nummern der Aktigramme eindeutig in die Beschreibung des Betriebsablaufs eingebunden. In einer Dialogübersicht ist angegeben, an welchen Dialogstationen der Dialog geführt werden kann, welcher Personenkreis zur Führung des Dialogs berechtigt ist und welche vom DV-System prüfbareren Bedingungen vor Beginn des Dialogs erfüllt sein müssen. Außerdem sind die Fehlerausgänge in den Dialogen beschrieben worden.

Schlußbemerkungen

Inwieweit sich die bei der Systemplanung angewandte Sorgfalt auszahlt, kann erst nach Fertigstellung und Test des DV-Systems beurteilt werden. Mit Blick auf die große Wiederaufarbeitungsanlage ist die WAK insoweit als Pilotanlage anzusehen, als sie höchste Flexibilität in ihrer Betriebsweise zeigen muß. Diese Flexibilität muß sich in dem geplanten DV-System widerspiegeln. Der vorliegende transparente Entwurf gestattet mit vertretbarem Aufwand eine ständige Abstimmung zwischen Anwender und Systementwickler bis zur Inbetriebnahme des Systems. Diese Vorgehensweise und die geplante Implementierung des Programmsystems nach dem Baukastenprinzip erscheinen als ein erfolgversprechender Weg für die Demonstration der Wirksamkeit von DV-Methoden in der Analytik von Wiederaufarbeitungsanlagen.