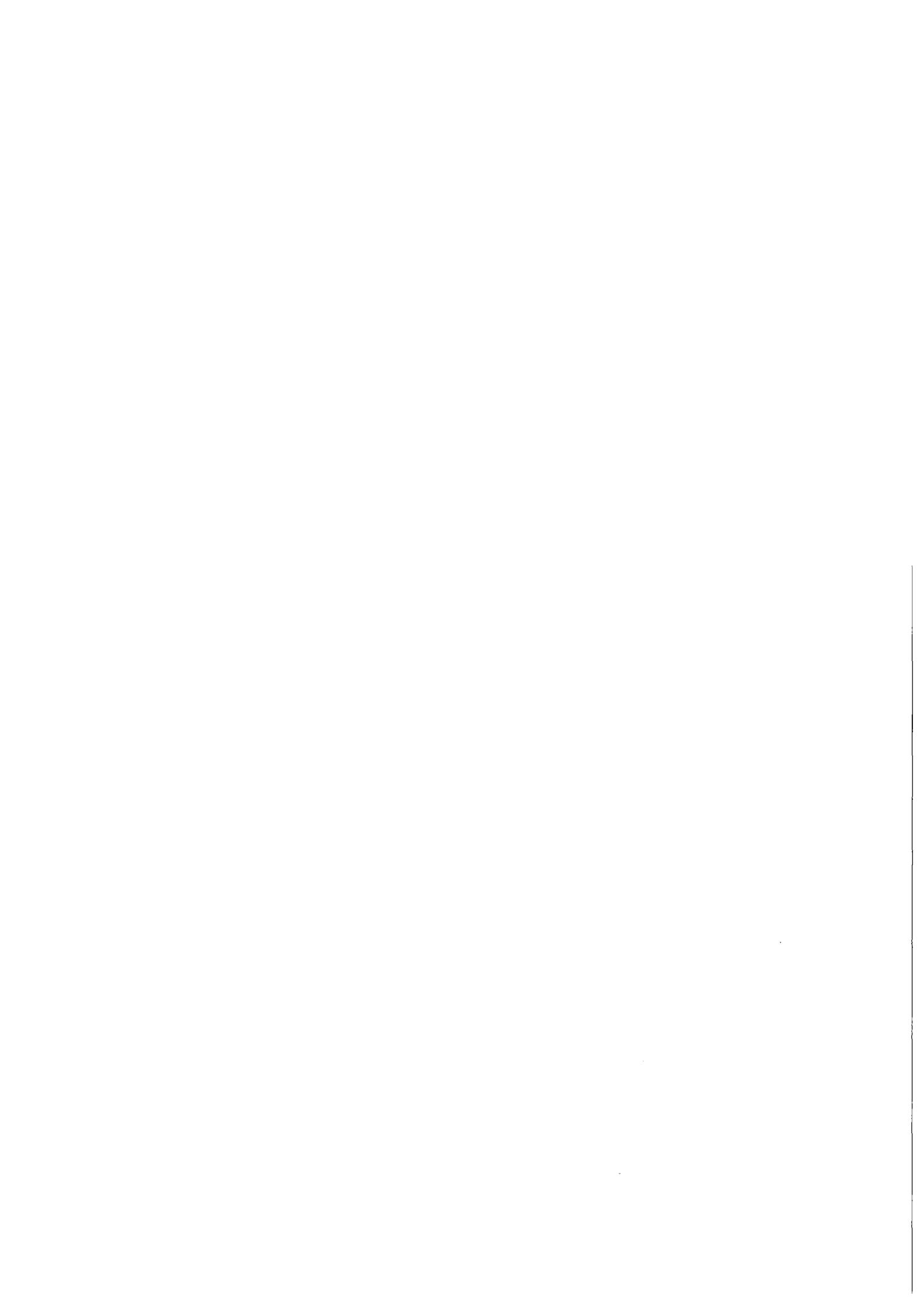


KfK 3030  
Februar 1981

# **Verfestigung von aktinidenhaltigen Abfällen in keramischer Matrix**

Th. Dippel, H. Kartes, U. Riege  
Institut für Nukleare Entsorgungstechnik  
Projekt Wiederaufarbeitung und Abfallbehandlung

**Kernforschungszentrum Karlsruhe**



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

Institut für Nukleare Entsorgungstechnik

Projekt Wiederaufarbeitung und Abfallbehandlung

KfK 3030

PWA 32/80

Verfestigung von aktinidenhaltigen Abfällen  
in keramischer Matrix

Th. Dippel, H. Kartes, U. Riege

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH, Karlsruhe

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

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH  
ISSN 0303-4003

## Inhaltsverzeichnis

	Seite
1. Einleitung	1
2. Art und Zusammensetzung der Alphaabfälle	2
3. Beschreibung der Laboranlage für die Herstellung von Keramikprodukten	4
4. Herstellung von Keramikprodukten	6
5. Erfahrungen bei der Tablettenherstellung	9
6. Charakterisierung der Produkte	10
7. Ergebnisse	15
8. Literaturverzeichnis	18

## Zusammenfassung

### Verfestigung von aktinidenhaltigen Abfällen in keramischer Matrix

Im Institut für Nukleare Entsorgungstechnik wurden keramische Materialien auf ihre Eignung als Matrix für aktinidenhaltige Abfälle untersucht. Als Ausgangsmaterial wurden handelsübliche Arten von Kaolin, Bentonit, Feldspat und Quarz benutzt. Die alphahaltigen Abfälle waren Auflöserrückstände (Feedklärschlamm), flüssige Konzentrate aus der MOX-Brennstoffherstellung (Alphakonzentrate), Asche und Rückstände aus dem Naßverbrennungsprozeß. In die Untersuchungen wurden außerdem aktinidenreiche Schlämme einbezogen, wie sie bei der Abtrennung von Aktivitätsträgern aus MAW-Konzentraten anfallen.

Zur Verfestigung radioaktiver Abfälle in einer keramischen Matrix werden die pulverförmigen keramischen Rohmaterialien mit dem Abfall gemischt, dann zu Tabletten geformt und diese getrocknet und gesintert. Zu diesen Operationen wurden in der keramischen Technik übliche Apparate benutzt. Sie waren so gewählt worden, daß ein fernbedienter Betrieb möglich ist. Die Betriebserfahrungen zeigten, daß diese Apparate zum Einsatz in technischem Maßstab geeignet sind.

Nach mehreren inaktiven Untersuchungen wurden folgende Keramikprodukte mit 20 Gew.-% Alphaabfall hergestellt:

- 2 kg Keramiktabletten mit Asche (Plutoniumgehalt 15 Gew.-%)
- 15 kg Keramiktabletten mit Alphakonzentrat (Uran, Plutonium und Americium, Pu-Gehalt 11 g)
- ca. 3 kg Keramiktabletten mit alphasdotierten Simulaten von Feedklärschlamm und von Rückständen der Naßverbrennung.

Die Dichte der Keramiktabletten war 1,7 - 2,3 g/cm<sup>3</sup>. Die Druckfestigkeit - als Maß für die mechanische Festigkeit - lag im Bereich konventioneller keramischer Produkte. Untersuchungen mit der Mikrosonde und autoradiographische Aufnahmen zeigten eine homogene Verteilung des Plutoniums in der Matrix.

Auslaugversuche in destilliertem Wasser und quinäer Salzlauge bei Raumtemperatur wurden nach dem ISO-Norm-Entwurf durchgeführt. Die Auslaugraten für Plutonium lagen dabei zwischen  $5 \cdot 10^{-6}$  und  $5 \cdot 10^{-8}$  g/cm<sup>2</sup>·d<sup>-1</sup>.

Zur Untersuchung des Langzeitverhaltens wurden Tabletten mit <sup>238</sup>PuO<sub>2</sub> gesintert. In neun Montaten hatten sie eine Dosis von  $1 \cdot 10^{11}$  rad erhalten. Im Vergleich mit unbestrahlten Proben konnten keine signifikanten Änderungen der Auslaugrate für Plutonium beobachtet werden. Auch wurde keine gespeicherte Energie in den Keramikprodukten gefunden.

Die bisherigen Ergebnisse lassen erkennen, daß die Verfestigung in einer keramischen Matrix ein erfolgversprechender Prozeß für die Konditionierung von Alphaabfällen sein kann.

## Summary

### Solidification of Alpha-bearing Wastes in a Ceramic Matrix

At the Karlsruhe Nuclear Research Center ceramic materials are evaluated as a matrix for alpha-bearing wastes, i.e. dissolver residues from reprocessing, liquid alpha-concentrates, ashes and residues from the acid digestion process. Included in these experiments were  $\alpha$ -containing sludges as they are generated by the separation of the active species from MLW-concentrates. Caoline, clay, feldspar and quartz are selected as the raw materials as in the ceramic industry.

Incorporation of radioactive wastes in a ceramic matrix was done by mixing of the powdered matrix material with the waste, forming pellets, drying and sintering the pellets. Standard machines and equipment were used for these operations. The machines had been selected so as to work under remote operation conditions. The operation experience showed that the machines are suitable for application in a technical scale.

After several inactive runs the following radioactive products which contained 20 w/o of waste were prepared:

- 2 kg of ceramic pellets containing ashes from incineration with a plutonium content of 15 w/o;
- 15 kg of ceramic pellets with concentrates of liquid alpha-bearing wastes containing uranium, plutonium and americium; (total plutonium content: 11 g) and
- about 3 kg of ceramic pellets with alpha doped simulates of dissolver sludges and of residues from the acid digestion process.

The density of the product was 1.7-2.3 g/cm<sup>3</sup>. The compression strength of the low-porosity samples was similar to that of standard ceramic ware. Microprobe investigations and  $\alpha$ -autoradiographs showed a homogeneous distribution of the actinides in the product. The leaching experiments were performed at room

temperature in distilled water and salt brine according to the ISO-draft conditions. The leaching rates for plutonium were in the range of  $5 \cdot 10^{-6}$  to  $5 \cdot 10^{-8}$  g.cm<sup>-2</sup>.d<sup>-1</sup>.

For studies of the long term radiation stability, samples containing <sup>238</sup>PuO<sub>2</sub> were prepared. After nine months they had received a dose of  $1 \times 10^{11}$  rad. Compared with unirradiated samples no significant changes were observed in the leach rates. No stored energy could be detected.

The results from the experiments carried out so far show that the incorporation in ceramic matrixes can be a promising process for the immobilization of different types of alpha-bearing wastes.

## 1. Einleitung

Neben der Verglasung, Bituminierung und Zementierung zur Verfestigung radioaktiver Abfälle wird seit 1978 im Institut für Nukleare Entsorgungstechnik des Kernforschungszentrums Karlsruhe an der Entwicklung eines Verfahrens zur Verfestigung aktinidenhaltiger Abfälle in einer keramischen Matrix gearbeitet.

Für Abfälle mit Aktiniden ist wegen deren Aktivität ein Matrixmaterial notwendig, das über sehr lange Zeit beständig gegen hohe Strahlungsdosen ist. Deshalb kommen dafür grundsätzlich die für die Verfestigung hochradioaktiver Abfälle entwickelten Matrixgläser in Betracht. Es bestehen jedoch Verträglichkeitsprobleme zwischen einzelnen Bestandteilen dieser Abfälle und dem Glas. Ferner liefern Matrixgläser nur dann Verfestigungsprodukte hoher Qualität, wenn Abfälle mit gleichmäßiger Zusammensetzung verfestigt werden. Diese Voraussetzung ist bei den aktinidenhaltigen Abfällen nicht gegeben. Ihre chemische Zusammensetzung zeigt starke Unterschiede.

Aktinidenhaltige Abfälle fallen bei der Wiederaufarbeitung als Rückstand bei der Klärung der Speiselösung (Feedklärschlamm), bei der Herstellung von  $UO_2/PuO_2$  Kernbrennstoffen als Alphakonzentrate und bei der Behandlung fester brennbarer Abfälle als Asche aus der Verbrennung sowie als Rückstand der Naßveraschung an. Mittelaktive, mit Alphastrahlern angereicherte Schlämme (MAW-Schlamm) gehören ebenfalls zu diesen Abfallarten. Neben relativ hohen Gehalten an Plutonium und Americium enthalten sie je nach Abfallart Spaltprodukte, wie Ruthenium, Zirkonium sowie als Prozeßchemikalien Chloride, Sulfate, Phosphate und Fluoride. Ein endlagerfähiges Produkt für diese Abfälle muß hauptsächlich folgende Eigenschaften besitzen:

- Strahlungsbeständigkeit
- Temperaturbeständigkeit
- Auslaugbeständigkeit

- keine Radiolysegasbildung durch interne Alphabestrahlung
- mechanische Stabilität
- chemische Verträglichkeit der Abfallbestandteile mit der Matrix.

Gleichzeitig soll dieses Produkt größtmögliche Aufnahmefähigkeit für die aktinidenhaltigen Abfälle besitzen, damit kleinste Produktvolumina erreicht werden. Schwankungen in der Abfallzusammensetzung sollen möglichst keinen Einfluß auf die Produktqualität haben. Als keramische Ausgangsstoffe werden handelsübliche Qualitäten benutzt.

Zur Herstellung keramischer Verfestigungsprodukte ist ein Kalzinations- und Sinterprozeß bei hoher Temperatur erforderlich. Dabei wird aus dem Gemisch von radioaktivem Abfall und keramischem Ausgangsmaterial während der Kalzinationsphase Wasser verdampft; Salze und organische Verbindungen werden zersetzt. Dies führt dazu, daß in der Keramik keine Radiolysegase mehr gebildet werden können. In der Sinterphase versetzen sich die Partikel des Sintergutes. Damit geht eine Verdichtung einher. Die Poren werden nahezu vollständig geschlossen. Es verbleibt ein mechanisch stabiler Körper. Benutzt man alkaliarme aluminosilikatische Ausgangsmaterialien, so ist die Bildung leichtlöslicher Verbindungen während des Sinterprozesses weitgehendst ausgeschlossen. Man kann deshalb davon ausgehen, daß ein solches Sinterprodukt eine hohe Beständigkeit gegen Auslaugung in wäßrigen Medien besitzt. Inwieweit eine Keramik strahlenbeständig ist, d.h. ob durch die Strahlung in der Matrix qualitätsmindernde Veränderungen ausgelöst werden, muß experimentell ermittelt werden. Zeitrafferversuche sind dazu geeignet.

## 2. Art und Zusammensetzung der Alphaabfälle

In Tabelle 1 sind die Arten und die Mengen an aktinidenhaltigen Rohabfällen für eine Wiederaufarbeitungsanlage von 1400 t/a mit

angeschlossener  $UO_2/PuO_2$ -Brennelementfertigung dargestellt /1/. Die brennbaren Festabfälle enthalten die größte Menge an Plutonium. Es kann mit dem Naßveraschungsprozeß zurückgewonnen werden /2/. Der verbleibende Rückstand ist jedoch noch ein aktinidenhaltiger Abfall. Den höchsten spezifischen Plutoniumgehalt von 0,5 g/l haben die flüssigen Alphakonzentrate.

### Feedklärschlamm

Die Zusammensetzung und die Aktivität des Feedklärschlammes hängt stark vom Abbrand, der Lagerzeit und der Art der Herstellung des Brennstoffes ab. Er hat nach 7 Jahren Kühlzeit etwa folgende Zusammensetzung und Eigenschaften:

Aktivität:	1,5	(Ci/g)
Wärmeleistung:	7	(W/kg)
Menge:	3 - 5 kg/t Brennstoff	
	davon ca. 2 kg Spaltprodukte	
	(40% Ru; 7% Rh; 7% Pd; 3% Tc; 17% Mo;	
	26% andere Spaltprodukte)	
	300 g Zirkonspäne/t Brennstoff	
	180 g $UO_2$ /t Brennstoff	
	40 g $PuO_2$ /t Brennstoff	

Der Feedklärschlamm fällt als schwach salpetersaure Suspension nach dem Abspülen von der Klärzentrifuge an (DWK-Konzept: 2 Gew.-% Feedklärschlamm in der Suspension).

Die Zusammensetzung des für diese Untersuchungen benutzten Simulates auf Basis der bisher bekannten Daten ist in Tabelle 2 angegeben.

### Alphakonzentrate

Sie fallen als Chemie- und Analytikabwässer bei der  $UO_2/PuO_2$ -Brennstoffertigung an. Ihre Zusammensetzung zeigt Tabelle 3.

### Asche aus trockener Verbrennung

Für Aschen aus der trockenen Verbrennung von Alphakbfällen ist hier die Zusammensetzung eines Rückstandes aus der Verbrennung von Abfall aus der Eurochemic-Anlage /3/ angegeben (Tab. 4). Hauptbestandteile der pulverigen Asche sind  $\text{Na}_2\text{O}$ ,  $\text{CaO}$  und  $\text{K}_2\text{O}$ . Als Anionen werden  $\text{Cl}^-$  mit 1% und  $\text{F}^-$  mit 0,02 Gew.-% bestimmt.

### Rückstand der NaBveraschung

Die bei der NaBveraschung von brennbaren aktinidenhaltigen Abfällen und der anschließenden Plutoniumrückgewinnung verbleibenden Rückstände enthalten Restmengen an Plutonium und Americium, so daß sie weiterhin als aktinidenhaltiger Abfall zu behandeln sind. Je Kilogramm Abfall fällt ca. 0,1 kg Rückstand an.

Nach der Rezyklierung der Schwefelsäure und der Plutoniumrückgewinnung besteht der Rückstand im wesentlichen aus  $\text{Al}_2\text{O}_3$ ,  $\text{SiO}_2$ ,  $\text{ZnO}_2$  und anderen Oxiden sowie Zinkstearat. Die Zusammensetzung des Simulats ist in Tabelle 5 dargestellt.

### MAW-Schlamm

Diese Schlämme entstehen durch die Abtrennung der Aktivitätsträger aus MAW-Konzentraten durch Fällung /4/. Hauptbestandteil des Schlammes ist Natriumnitrat; weiter sind Nitrate und Hydroxide von Al, Fe, Cr, Ca, Mg, Sr, Cs u.a. vorhanden. In Tabelle 6 ist das Simulat für diese Abfallart zusammen dargestellt.

### 3. Beschreibung der Laboranlage für die Herstellung von Keramikprodukten

Die Apparaturen zur Vorbehandlung der Abfälle und zur Herstellung der Keramikprodukte waren in zwei alphasicheren Handschuhboxen von je  $\text{m}^3$  Volumen eingebaut worden. Diese Handschuhboxen waren aus

rostfreiem Stahl gefertigt und mit Plexiglasscheiben ausgestattet worden. Ihr Abluftsystem und die Wanddurchführung waren Standardbauteile, wie sie in der Handschuhboxentechnik allgemein Verwendung finden.

Für die Vorbehandlung, d.h. die Aufkonzentrierung und Denitrierung der flüssigen Abfälle wurden Glasapparate benutzt (Abb.1). Die Kapazität des innenbeheizten Umlaufverdampfers war 0,5 l/h. Die Denitrierapparatur konnte 2 l Abfallkonzentrat in 8 h verarbeiten. Aus diesen Apparaturen austretende Abgase wurden in einer Füllkörperkolonne gewaschen. Dadurch wurde das Boxenabluftsystem vor korrosiven Abgasbestandteilen geschützt.

Zur Herstellung der Keramikprodukte war ein Mischer, ein Gerät zur Formung der Keramikkörper und ein Sinterofen erforderlich. Als Mischer wurde ein Gerät mit Austragspreßschnecke (Mischer-Extruder) eingesetzt (Abb. 2). Er hatte ein Nutzvolumen von 2 l. Das Mischwerk läuft bei diesem System mit 45 UpM. Die Drehzahl der Ausgangsschnecke ist variabel, um optimale Auspreßbedingungen einstellen zu können. Die Verarbeitungszeit für eine Mischerfüllung, d.h. Mischen mit Auspressen des Mischgutes in Strangform beträgt 20 Minuten. Der Strang wird einem Abschneider zugeleitet (Abb.3), der den Strang in zylinderförmige Körper ( $l = 20 \text{ mm}$ ,  $d = 20 \text{ mm}$ ) zerteilt. Diese werden von einem Transportband aus dem Schneidbereich transportiert. An dessen Ende werden sie abgenommen und auf Paletten aus Alsint ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ ) gestellt. Als Sinteröfen wurden zwei Rohröfen benutzt. Ihre Betriebstemperatur ist maximal  $1300^\circ\text{C}$ . Sie können 1 kg Sintergut aufnehmen. Der Sintercyclus, einschließlich der Abkühlzeit der Öfen auf Raumtemperatur war 24 h. Die Öfen können zum Betrieb mit Schutzgas dicht verschlossen werden.

Alle Apparate waren mit Meß- und Regelgeräten ausgestattet. Damit war es möglich, jederzeit den Ist-Zustand der Apparate zu beurteilen, den Betriebsablauf zu beeinflussen und Störungen rechtzeitig zu erkennen. Zusätzlich schützten Sicherheitsschaltungen die Appa-

rate und Handschuhboxen vor den Folgen von Kühlwasserausfall, überhöhter Temperatur und unzulässigem Druckaufbau.

#### 4. Herstellung von Keramikprodukten

Zur Herstellung keramischer Verfestigungsprodukte wird der Abfall mit Kaolin, Kaolin-Bentonit-Mischung oder einem Gemisch aus Kaolin, Feldspat und Quarz angeteigt und verknetet. Dabei erfolgt eine homogene Verteilung der radioaktiven Partikel in der porösen Masse. Durch Pressen eines Stranges und anschließendes Zerteilen wurden zylindrische Grünlinge hergestellt. Im Sinterprozeß wurden die Grünlinge zu dichten keramischen Tabletten gebrannt. Durch die damit verbundene Temperaturbehandlung wurden die vorhandenen Plutoniumverbindungen in schwerlösliches Plutoniumoxid umgewandelt. Andere Aktiniden und die Spaltprodukte können mit dem Matrixmaterial Verbindungen bilden /6/. Die Edelmetalle, die im Feedklärschlamm als Metall vorliegen, bleiben in dieser Form im Verfestigungsprodukt eingeschlossen.

Aus den keramischen Tabletten läßt sich ein monolythischer Block erzeugen. Dazu kann Glas, Metall oder keramischer Stoff benutzt werden. Auf diese Weise wird eine zusätzliche Barriere zum Schutz der Tabletten gegen äußeren Angriff geschaffen.

Soweit zur Herstellung alphasdotierte Simulate benutzt wurden, war der Plutoniumgehalt mit 2 Gew.-% festgelegt worden, um bei den Auslaugversuchen in den Auslauglösungen noch gut erfaßbare Plutoniumkonzentrationen zu erhalten. Je nach Abfallart und Abfallgehalt lagen die Sinterzeiten zwischen 1 und 3 Stunden und die Sintertemperaturen zwischen 1100 und 1300°C. In Abbildung 4 ist der Verarbeitungsweg der einzelnen Abfälle zusammengefaßt. Typische Keramiktabelle zeigt die Abbildung 5.

#### 4.1 Verfestigung von Feedklärschlamm

Für die Herstellung der Keramiktabletten wurde das in Tabelle 2 beschriebene Simulat verwendet. Als Matrix wurde Kaolin und ein Gemisch aus Kaolin und Bentonit (3:2) verwendet. Mit den beiden Matrixmaterialien wurden jeweils 500 g Keramikprodukt hergestellt. Die Grünlinge wurden nach dem Trocknen 1,5 h bei 1300°C gesintert. Die erreichte Dichte beträgt 2,3 (g/cm<sup>3</sup>). Der Aktivitätsverlust beim Sintern betrug 2·10<sup>-5</sup>% der eingesetzten Aktivität. Dieser Wert wurde durch die Bestimmung der Alphaktivität in den Waschlösungen der Abgaswäsche erhalten.

#### 4.2 Verfestigung von Alphakonzentraten

Es wurden 50 l Alphakonzentrat aus der Brennstoffertigung verarbeitet. Der Plutoniumgehalt betrug 11 g, der Uran-Gehalt 234 g, die Gesamtaktivität 95,2 Curie. Die Lösungen wurden soweit aufkonzentriert, daß der Feststoffgehalt ein Keramikprodukt mit 20 Gew.-% Feststoffen ergab. Der Aufkonzentrierungsschritt verlief ohne Schwierigkeiten. Die erwarteten Niederschläge blieben minimal. Daneben trat teilweise starkes Schäumen auf, das aber zu keiner Beeinträchtigung der Experimente führte. Es wurden beim Aufkonzentrieren ein durchschnittlicher Dekontaminationsfaktor von 10<sup>4</sup>, bezogen auf das Kondensat, erzielt.

Die im Konzentrat enthaltene Salpetersäure wurde durch Reduktion mit Ameisensäure entfernt. Die Gesamtzeit für die Denitrierung betrug 7 Stunden. Es wurde kein außergewöhnliches Schäumen während des Denitrierungsprozesses festgestellt. Eine ausgeprägte Bildung von Niederschlägen fand nicht statt.

Die nach dieser Vorbehandlung vorliegenden 5 Alphakonzentratlösungen (6,5 l) mit Plutoniumgehalten von 0,04 bis 3,3 g/l, Urangehalten von 2 bis 95 g/l und Americiumgehalten von 0,05 bis 0,25 g/l

wurden mit  $\text{Ca}(\text{OH})_2$  neutralisiert und mit verschiedenen Gemischen keramischer Rohstoffe zu insgesamt 15 kg Keramiktabletten gesintert. Die Dichten der Tabletten lagen um  $2 \text{ g/cm}^3$ . Die Aktivitätsverluste beim Sinterprozeß betragen  $2 \cdot 10^{-4}\%$  der gesamten Aktivität.

#### 4.3 Verfestigung von plutoniumhaltiger Asche

Für die Herstellung von Keramiktabletten wurde plutoniumhaltige Asche verwendet. In Tabelle 4 ist ihre Zusammensetzung angegeben. Als Matrixmaterial wurde Kaolin und ein Gemisch aus Kaolin und Bentonit (3:1) verwendet. Die Grünlinge wurden bei  $1300^\circ\text{C}$  1,5 h gesintert. Die Dichte der Tabletten lag zwischen 1,9 und  $2,0 \text{ g/cm}^3$ . Diese Keramiktabletten waren an der Oberfläche teilweise verglast und zeigten starke Ribbildung.

#### 4.4 Verfestigung von Rückständen der Naßveraschung

Für die Herstellung der Keramiktabletten wurde das in Tabelle 5 beschriebene Simulat verwendet. Es wurde mit  $\text{Ca}(\text{OH})_2$  neutralisiert. Als Matrix diente eine Mischung aus Kaolin und Bentonit (3:1). Aus 200 g alphasdotiertem Rückstand der Naßveraschung wurden 500 g Keramikprodukt hergestellt. Die Sinterzeit betrug 3 Stunden bei  $1300^\circ\text{C}$ . Die Dichte der Keramikprodukte wurde zu  $1,9 \text{ g/cm}^3$  bestimmt. Der Aktivitätsverlust beim Sinterprozeß betrug  $2 \cdot 10^{-5}\%$  der eingesetzten Aktivitätsmenge.

#### 4.5 Verfestigung von MAW-Schlamm

Für die Herstellung der Keramiktabletten wurde das in Tabelle 6 beschriebene Simulat verwendet. Als Matrix wurde eine Mischung aus Kaolin und Bentonit (3:1) verwendet. Insgesamt wurden aus 200 g alphasdotiertem MAW-Fällschlamm 500 g Keramik hergestellt. Nach dem Trocknen wurde 2 Stunden bei  $1100^\circ\text{C}$  gesintert. Die Dichte der Produkte beträgt  $1,9 \text{ g/cm}^3$ . Der Aktivitätsverlust beim Sinterprozeß erreichte  $2 \cdot 10^{-5}\%$  der verfestigten Aktivitätsmenge.

## 5. Erfahrungen bei der Tablettenherstellung

### 5.1 Sublimation von Molybdänoxid

Beim Sintern von Tabletten mit Feedklärschlamm sublimiert das  $\text{MoO}_3$ , da seine Sublimationstemperatur mit  $1155^\circ\text{C}$  unter der Sinter-temperatur von  $1300^\circ\text{C}$  liegt. Um die Sublimation soweit wie möglich zu unterdrücken, wurde dem Feedklärschlamm  $\text{Ca(OH)}_2$  beigegeben zur Bildung von Kalziummolybdat während des Sintervorganges. Die Menge des  $\text{Ca(OH)}_2$  wurde dabei so bemessen, daß stets ein geringfügiger Überschuß in bezug auf das vorliegende  $\text{MoO}_3$  vorhanden war. Der Schmelzpunkt von Kalziummolybdat liegt bei  $1445^\circ\text{C}$ . Es war auf diese Weise möglich, die Molybdänverluste auf unter 5 Gew.-% des im Sintergut vorhandenen Molybdänoxid zu senken.

### 5.2 Verflüchtigung von Rutheniumdioxid

Es war erwartet worden, daß sich das im Feedklärschlamm enthaltene Rutheniumdioxid während des Sinterprozesses vollständig verflüchtigt. Die Analyse der gesinterten Tabletten zeigte, daß die Verflüchtigung von Rutheniumoxid 3 Gew.-% nicht überschreitet, gleichgültig ob unter Stickstoff oder Luft gesintert wird.

### 5.3 Aktivitätsverluste während des Sinterprozesses

Die Aktivitätsverluste während des Sinterprozesses sind äußerst gering. Mit dem Ofenspülgas ausgetragene Aktivität sammelt sich in der Waschlösung der Abgaswäsche an. Sie beträgt ca.  $10^{-4}$  bis  $10^{-5}\%$  der Aktivität des Sintergutes. Damit können diese Waschlösungen als schwachaktiver Abfall abgegeben werden.

## 6. Charakterisierung der Produkte

### 6.1 Strukturuntersuchungen

Die Verteilung der Aktiniden im Keramikprodukt wurde durch Alpha-autoradiografie bestimmt. Die Präparation der Proben erfolgte durch Zerschneiden der Keramiktabletten, Einbetten dieser Proben in ein Kalteinbettmittel und anschließendes Schleifen und Polieren der eingebetteten Proben. Die Abbildung 5a zeigt eine Autoradiografie der Keramikprodukte. Alle Keramiken haben eine gleichmäßige Aktivitätsverteilung.

An mehreren Tabletten wurden Struktur- und Gefügeuntersuchungen durchgeführt. Bei allen Proben sind kleine Risse in der Matrix feststellbar, außerdem sind je nach Abfallart, die in die Keramik inkorporiert ist, bis zu 10 Vol.-% Poren vorhanden. Das geringste Porenvolumen haben Tabletten die Alpha-Konzentrate enthalten.

An Tabletten mit Feedklärschlamm wurde festgestellt, daß ein kleiner Teil des Rutheniums in der Matrix gelöst ist, während der größte Teil in Form von metallischen Ausscheidungen vorliegt. Die Zircalloyspäne sind zu polykristallinem  $ZrO_2$  (Baddeleyit) oxidiert und liegen ebenfalls in separater Form vor. Andere Bestandteile des Feedklärschlammes, wie  $MoO_3$ ,  $CeO_2$  und  $MnO_2$  werden unter Bildung von Verbindungen in die Matrix eingebaut. So bildet  $MoO_3$  mit  $CaO$  Kalziummolybdat.

### 6.2 Mechanische Stabilität

Die mechanische Stabilität der verschiedenen Keramikprodukte wurde durch einen Druckfestigkeitstest ermittelt. Die Bestimmung erfolgte nach DIN-Test 52105 /7/, der zur Ermittlung der Druckfestigkeit von Naturstein angewendet wird. Für den Test sind als Proben Würfel oder Zylinder mit einem Durchmesser von 50 mm vorgeschrieben.

Obwohl hier mit den Abmessungen der Pellets (15 bis 20 mm) die Bedingungen des DIN-Testes nicht eingehalten wurden, ist ein Vergleich der Keramikprodukte untereinander möglich. Zur gleichmäßigen Druckbelastung wurden die Tabletten planparallel geschliffen. Für die Tests wurde eine in einer Handschuhbox installierte hydraulische Laborpresse mit einer maximalen Druckkraft von 20 t verwendet. Für jedes Produkt wurden 5 Einzelmessungen vorgenommen und der Mittelwert gebildet. Minimal- und Maximalwerte sowie die Mittelwerte der Druckfestigkeit der verschiedenen Keramikprodukte sind in Tabelle 7 dargestellt. Die höchsten Festigkeitswerte von 1500 kp/cm<sup>2</sup> erreichten die Alpha-Konzentrat-Keramikprodukte mit einer Porzellanmatrix (Feldspat, Quarz, Kaolin).

### 6.3 Porosität

Die Bestimmung der Porosität (offene Poren) erfolgte nach DIN 51056 /8/. Diese Norm wird zur Prüfung für keramische Roh- und Werkstoffe angewendet. Dazu werden getrocknete und gewogene Proben bis zur Gewichtskonstant in destilliertem Wasser gelagert. Aus der Wasseraufnahme, dem Probengewicht und der Probendichte kann die offene Porosität berechnet werden. Tabelle 7 enthält als Mittelwert dreier Einzelmessungen die für verschiedene Keramikprodukte gefundene offene Porosität.

Die Ergebnisse der Porositätsmessungen zeigen, daß die Keramiktabletten mit MAW-Schlamm sehr porös sind. Alle anderen Werte liegen zwischen 3 und 10 Vol.-%. Diese Werte decken sich mit mikroskopischen Untersuchungen, bei denen bis zu 10% Poren in der keramischen Matrix festgestellt wurden.

### 6.4 Strahlenbeständigkeit

Die Strahlenbeständigkeit der Keramikprodukte wurde mit Hilfe von Zeitrafferexperimenten ermittelt. Dazu wurden Keramiktabletten mit Feedklärschlamm und Alphakonzentrat (s. Kap. 2) hergestellt. Bei

20 Gew.-% Abfallanteil enthielten die Tabletten 0,002 g Pu bzw. 0,0003 g Pu +). Bei zehntausendjähriger Lagerung würden diese Produkte eine Dosis von  $25 \cdot 10^{11}$  rad bzw.  $3 \cdot 10^3$  rad aufnehmen. Fügt man den Keramikprodukten 8 Gew.-% Pu-238 zu, so erhalten die Tabletten mit Feedklärschlamm diese Dosis nach 19 Monaten, die Tabletten mit Alphakonzentrat diese Dosis nach 3 Monaten.

Seit Mitte 1979 wurden an diesen Keramikprodukten folgende Untersuchungen durchgeführt:

- Energiespeicherung

Mit der quantitativen Differentialthermoanlage wurde die in Abhängigkeit von der Alphadosis in den Keramikprodukten gespeicherte Energie gemessen. Als Vergleichsstandard wurden entsprechende inaktive Keramiken verwendet.

Als Meßapparatur diente ein Differentialthermoanalyse-Gerät (Typ 404, Firma Netzsch Gerätebau GmbH/Selb) mit Meßkopf für Dynamische Differential-Kalorimetrie (DDK). Die Messungen erfolgten an je 100 mg der auf eine Korngröße von 0,5 - 1,5 mm zerkleinerten Pellets. Die Vergleichssubstanzen waren in gleicher Weise hergestellte inaktive Feedklärschlamm- und Alphakonzentrat-Keramiken ohne Zusatz von PuO<sub>2</sub> und UO<sub>2</sub>. Für jedes Keramikprodukt wurden drei Einzelmessungen durchgeführt.

Nach siebenmonatiger Lagerzeit wurde zum ersten Mal die gespeicherte Energie gemessen. Bis zu diesem Zeitpunkt hatten die Keramikprodukte eine Alpha-Dosis von  $8 \cdot 10^{10}$  rad aufgenommen.

+) Isotopenzusammensetzung: Pu-238 2 Gew.-% Pu-241 14 Gew.-%  
Pu-239 54 Gew.-% Pu-242 5 Gew.-%  
Pu-240 25 Gew.-%

Nach weiteren zwei Monaten wurde diese Messung wiederholt. Die aufgenommene Alpha-Dosis betrug dann  $1 \cdot 10^{11}$  rad. Dies entspricht einer Lagerzeit von etwa 1500 Jahren für das Keramikprodukt mit Feedklärschlamm und von mehr als 10 000 Jahren für das Keramikprodukt mit Alpha-Konzentrat.

In keinem Fall konnte in den Tabletten eine gespeicherte Energie gemessen werden. Eine Veränderung der Qualität des Keramikprodukts, die durch gespeicherte Energie ausgelöst werden könnte, ist deshalb nicht zu erwarten.

#### - Auslaugung

Über einen Zeitraum von 9 Monaten konnte keine Abhängigkeit der Auslaugung für Plutonium von der im Keramikprodukt aufgenommenen Dosis nachgewiesen werden (s. 6.5).

#### 6.5 Auslaugbeständigkeit

Die Auslaugrate von Plutonium wurde für die verschiedenen Keramikprodukte in destilliertem Wasser und gesättigter Lagerstättenlauge bei Raumtemperatur und Normaldruck bestimmt. Als gesättigte Lagerstättenlauge wird eine quinäre Lauge (34%  $MgCl_2$  + 2%  $MgSO_4$  + 0,6%  $KCl$  + 0,2%  $NaCl$  + 63,2%  $H_2O$ ) verwendet.

Die Bestimmung erfolgte nach einem ISO-Normal-Entwurf und wurde als Blockauslaugung an unbehandelten Keramiktabletten durchgeführt. Als Probenbehälter wurden Polyäthylenflaschen verwendet. Das Volumen der Auslauglösung betrug 50 ml. Beim Probenwechsel wurde die Tablette, die mit einem Platindraht am Deckel der Flasche befestigt war und frei in der Auslauglösung hing, mit dem Deckel aus der Lösung herausgenommen und in eine Flasche mit frischer Lösung gehängt. Die benutzte Flasche wurde verschlossen und zur Analyse gegeben. Die Bestimmung des Plutoniumgehalts erfolgte mittels Gammaspektrometrie und Gammazählung über die 150 keV-

Linie des Plutoniumisotops 241. Der Gammaskpektrometer war mit Lösungen, die eine bekannte Konzentration an Pu-241 enthielten, geeicht worden. Für die Eichmessungen wurde gleiches Probenvolumen und gleiche Probenbehälter wie bei den Auslaugproben verwendet. Bei der Wahl der Intervalle für den Probenwechsel mußte die Meßgrenze des gewählten Meßverfahrens berücksichtigt werden, so daß sich teilweise größere Abstände für den Probenwechsel ergaben als im ISO-Norm-Entwurf vorgeschlagen werden.

Mit den Resultaten aus der Gammaskpektrometrie wurde die Auslaugrate nach folgender Formel berechnet:

$$R = \frac{a_n}{A_0 \cdot F \cdot t_n}$$

R = Auslaugrate ( $\text{g} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{d}^{-1}$ )

$a_n$  = Pu-241-Aktivität, die während jeder Auslaugperiode ausgelaugt wurde ( $\text{s}^{-1}$ )

$A_0$  = spez. Pu-Aktivität der Probe ( $\text{s}^{-1} \cdot \text{g}^{-1}$ )

F = ausgelaugte Fläche ( $\text{cm}^2$ )

$t_n$  = Auslaugperiode in Tagen (d)

Die Auslaugraten von Plutonium aus den verschiedenen Keramikprodukten sind in den Abbildungen 6, 7, 8, 9 dargestellt. Sie liegen zwischen  $1 \cdot 10^{-5}$  und  $5 \cdot 10^{-8} \text{ g/cm}^2 \cdot \text{d}$ . Die Zusammensetzung der Matrix - Kaolin, Kaolin/Bentonit, Kaolin/Feldspat/Quarz - hat keinen signifikanten Einfluß auf die Auslaugbarkeit des Keramikprodukts. Besonders deutlich ist dies bei den Keramiken mit Alphakonzentraten (Abb. 9) zu erkennen. Ein Unterschied in der Auslaugbarkeit hinsichtlich der Auslaugmedien besteht nicht. Die Abweichungen liegen innerhalb der Genauigkeit des Bestimmungsverfahrens. In Abbildung 10 ist der Verlauf der Auslaugraten für quaternäre Salzlauge über längere Zeit zusammengefaßt. Er bezieht sich auf Tabletten mit Kaolin-Bentonit-Matrix. Im Mittel bewegt sich die Auslaugrate für

Plutonium hier um den Wert  $10^{-7} \text{ g}\cdot\text{cm}^{-2}\cdot\text{d}^{-1}$ . Die Auslaugbarkeit von Tabletten mit Alphakonzentrat tendiert zu Werten um  $5\cdot 10^{-7} \text{ g}\cdot\text{cm}^{-2}\cdot\text{d}^{-1}$ .

Bei den Zeitrafferexperimenten war die Auslaugrate für Pu-238 mit  $2\cdot 10^{-6} \text{ g}\cdot\text{cm}^{-2}\cdot\text{d}^{-1}$  gemessen worden. Das Auslaugmedium war destilliertes Wasser bei Raumtemperatur.

## 7. Ergebnisse

Die untersuchten Keramiktabletten erfüllen die an ein Endlagerprodukt zu stellenden Anforderungen. Sie können reproduzierbar hergestellt werden. Gegen ihre Produktion im technischen Maßstab bestehen keine grundsätzlichen Einwände. Kaolin allein als Matrixmaterial führt zu unbefriedigenden Keramikprodukten. Die Mischung aus Kaolin und Bentonit liefert Tabletten mit geringer Porosität, deren mechanische Festigkeit (60 - 120 MPa) unter der von Steinzeug (140 bis 200 MPa) liegt, jedoch die von Beton (40 - 60 MPa) übersteigt. Die Auslaugraten der Keramikprodukte für Plutonium liegen in der gleichen Größenordnung wie die von Borosilikatglasprodukten mit hochaktivem Abfall (Tab. 8). Dasselbe gilt für den Materialabtrag durch Laugung unter erhöhtem Druck und erhöhter Temperatur. Der Vorteil der keramischen Matrix gegenüber Borosilikatglas besteht deshalb in ihrer Eigenschaft stark unterschiedliche Abfälle aufnehmen zu können, wie sie mit den hier verarbeiteten Abfällen gegeben waren. Außerdem kann diese keramische Matrix neben anderen Verbindungen Molybdänoxid und Sulfate in Konzentrationen aufnehmen, die in Gläsern zur Bildung zweiter Phase und somit zu einer erheblichen Verminderung der Qualität der Glasprodukte führen

Orientierende Versuche zeigten, daß sich bei der Verfestigung von Alphakonzentrat die Porosität weiter verringern und die mechanische Festigkeit noch erhöhen läßt, wenn man als Matrix eine Mischung aus Kaolin, Feldspat und Quarz verwendet. Die Auslaugbestän-

digkeit für Plutonium konnte dadurch jedoch nicht verbessert werden.

Die praktischen Erfahrungen beim Betrieb des Mischer-Extruders, des Strangabschneiders und der Sinteröfen in den Handschuhboxen zeigen, daß es möglich ist, einen technischen Prozeß zu entwickeln, der diese Apparate benutzt. Es existieren keine Verträglichkeitsprobleme zwischen den keramischen Ausgangsmaterialien bzw. den Alphaabfällen und den Werkstoffen der Apparate. Die Anpassung des technischen Prozesses an den fernbedienten Betrieb in heißen Zellen oder abgeschirmten Handschuhboxen ist möglich.

Die benutzten Apparate sind in Kapazitäten verfügbar, wie sie für die Verarbeitung der meisten aktinidenhaltigen Abfälle ausreichen. In einer 350 t/a Wiederaufarbeitungsanlage fallen zum Beispiel ca. 1200 kg Feddklärslamm an. Um diese in keramische Tabletten mit 20 Gew.-% Abfall zu verfestigen, sind folgende Kapazitäten erforderlich:

- für den Mischer-Extruder und Strangabschneider  
0,4 kg/h (bez. auf den Abfall; 2 Schichten, 200 d/a)
- für den Sinterofen  
6 - 7 kg/d (bez. auf den Abfall; 200 d/a)

Diese Kapazität des Mischer-Extruders entspricht der des zu diesen Versuchen benutzten Apparatetyps. Sinteröfen, die im Chargenbetrieb arbeiten, sind in dieser Kapazität verfügbar.

Gewinnt man aus den stark plutoniumhaltigen festen brennbaren Abfällen mit dem Naßverbrennungsverfahren das Plutonium zurück, so würden aus dieser Wiederaufarbeitungsanlage ca. 6 t Sulfate zur Verfestigung anfallen. Zu ihrer Verarbeitung wäre ein Mischer-Extruder mit einer Kapazität von 2 kg/h (2 Schichten, 200 d/a) erforder-

derlich. Für das Sintern der insgesamt ca. 40 t Tabletten ist ein Durchstoßofen von Vorteil. Durchstoßöfen mit dieser Kapazität sind verfügbar und bei der MOX-Brennstoffherstellung eingesetzt. Bei der normalen Verbrennung dieses Abfalls entstehen etwa 2,5 t Asche. Ihre Verarbeitung erfordert Apparatkapazitäten in der gleichen Größenordnung. Dasselbe trifft für die flüssigen Alpha-Konzentrate zu, die mit 5 m<sup>3</sup> Rohvolumen und einer Salzfracht nach Denitrierung und Neutralisation von ca. 2 t anfallen.

8. Literaturverzeichnis

- /1/ Krause, H., Scheffler, K.:  
Alpha-waste conditioning concepts on the basis of  
waste arisings, actinide distribution and their  
influence on final disposal products.  
In: Proceedings of the Technical Seminar on the  
Treatment, Conditioning and Storage of Solid  
Alpha-Bearing Waste and Cladding Hulls, Paris  
5-7 Dec. 1977. Paris, OECD (1978) S. 115-126
- /2/ Wieczorek, H., Kemmler, G., Krause, H., Lahr, H.:  
Treatment of plutonium containing waste by acid digestion.  
International Symposium on the Management of Alkpha-  
Contaminated Wastes, Wien, 2-6 June 1980  
IAEA-SM-246/20
- /3/ Swennen, R.:  
Verification of measured quantities of plutonium in  
solid wastes.  
Final Report on IAEA Research Contract 1453 -RB  
(June 1976)
- /4/ Kunze, S. et al.:  
Behandlung von MAW-Abfallösungen - Fällung.  
In: KfK-2749 (1979) S. 3
- /5/ Kelm, M., Oser, B., Drobnik, S.:  
Denitration of Aqueous Waste Solution from Nuclear  
Fuel Reprocessing  
ENC '79 Conference, Hamburg, Germany, May 6-11, 1979  
Trans. Nucl. Soc. 31, S. 525-527, 1979

- /6/ McCarthy, G.J.:  
High-level waste ceramics: Materials considerations  
process simulation, and product characterization.  
Nuclear Technology, 32 (1977) S. 92-105
- /7/ Prüfung von Naturstein - Druckversuch  
Deutsche Normen, DIN 52 105 (August 1965)
- /8/ Prüfung keramischer Roh- und Werkstoffe -  
Bestimmung des offenen Porenraumes.  
Deutsche Normen, DIN 51 056 (Sept. 1959)

Tabelle 1: Anfall an aktinidenhaltigen Rohabfällen aus einer Wiederaufarbeitungsanlage mit 1400 jato und angeschlossener  $UO_2/PuO_2$ -Brennelementfertigung

Anfallort	Abfallart	Volumen Rohabfall $m^3/a$	Pu-Gehalt kg/a	U-Gehalt kg/a	Andere Aktiniden (Ci/a)
Wiederauf- arbeitung	HAW- Konzentrat	600	51	2700	$4 \cdot 10^6$
	MAW- Konzentrat	1700	13	2040	$4 \cdot 10^3$
	BE-Hülsen	700	64	7000	-
	Feedklär- 1) schlamm	5600 kg/a	35	300	-
$UO_2/PuO_2$ - Brennelement- fertigung	flüssige Abfälle	20	8	90	$4 \cdot 10^4$
	nicht brennb. Festabfälle	200	2	160	-
	brennbare Festabfälle	nicht sort. 3000	125	2000	-
		1000 2000	120 5	1920 80	-

1) Zentrifugation; ca. 4 kg Rückstand je t Brennstoff mit 5% Uran und 0,3 - 1% Plutonium

Tabelle 2: Simulat von Feedklärschlamm mit Uran und Plutonium für alphaaktive Versuche

Zusammensetzung	Gew.-%
432 g Ru (= 20% d. Spaltprod.)	17,4
432 g RuO <sub>2</sub> (= 20% d. Spaltprod.)	17,4
302 g Pd (Pd + Rh)	12,2
554 g MoO <sub>3</sub> (= 17% Mo)	22,4
100 g MnO <sub>2</sub> (=3% Tc)	4,0
20 g Sb <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0,8
20 g Ce <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0,8
1860 g Spaltprodukte	75,0
180 g UO <sub>2</sub>	7,3
4 g PuO <sub>2</sub>	0,16
184 g Aktiniden	7,4
300 g Zircaloy Späne	12,1
94 g St. 1.4541	3,8
10 g St. 1.4568	0,4
28 g Inconel 718	1,1
432 g Späne	17,4
Total: 2476 g Rückst.	100

Tabelle 3: Zusammensetzung eines flüssigen/wäßrigen Alpha-Konzentrats aus der MOX-Brennstoffherstellung

Bestandteile	Konzentration
H <sub>2</sub> SO <sub>4</sub>	max. 1 m
H <sub>3</sub> PO <sub>4</sub>	max. 1 m
HNO <sub>3</sub>	max. 4 m
HCl	max. 0,1 m
HF	max. 0,01 m
Plutonium	0,1 - 0,5 g/l
Uran nat.	0,1 - 10 g/l
U-235	max. 2,5 g/l
Am-241	0,1 g/l
Na <sup>+</sup> , K <sup>+</sup> , Ca <sup>2+</sup> , Fe <sup>3+</sup> , Al <sup>3+</sup>	< 0,5 m/l

Tabelle 4: Zusammensetzung von plutoniumhaltiger Asche

Bestandteile	Gew.-%
PuO <sub>2</sub>	14,8
Na <sub>2</sub> O	43
CaO	23
K <sub>2</sub> O	14
BaO	2
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	1
SiO <sub>2</sub>	1
NiO	1
Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub> , MnO <sub>2</sub>	
TiO <sub>2</sub> , ZnO	
B <sub>2</sub> O <sub>3</sub> , MgO	jeweils
Cr <sub>2</sub> O <sub>3</sub> , CuO	< 1
PbO, SrO	
ZrO <sub>2</sub> , MoO <sub>3</sub>	
WO <sub>3</sub> , CoO	

Tabelle 5: Zusammensetzung des Rückstandes der Naßver-  
aschung nach der Druckfiltration (mit Uran und  
Plutonium dotiert)

Bestandteil	Gew.-%
H <sub>2</sub> SO <sub>4</sub>	80
H <sub>2</sub> O	10
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	3
SiO <sub>2</sub>	3
ZnO <sub>2</sub>	2
CaO, SnO, MgO	2
K <sub>2</sub> O, TiO, Te <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	
Uran	3
Plutonium	0,2

Tabelle 6: Simulat eines MAW-Schlammes für alpha-  
aktive Versuche

Bestandteil	Gew.-%
H <sub>2</sub> O	50
NaNO <sub>3</sub>	40
Mg (NO <sub>3</sub> ) <sub>2</sub> · 6H <sub>2</sub> O	3
Al (NO <sub>3</sub> ) <sub>3</sub> · 9H <sub>2</sub> O	1,2
Fe (NO <sub>3</sub> ) <sub>3</sub> · 9H <sub>2</sub> O	1,1
Ca (NO <sub>3</sub> ) <sub>2</sub> · 4H <sub>2</sub> O	1,1
Na <sub>2</sub> CO <sub>3</sub>	1,0
Sr (NO <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>	0,1
Fe (II)SO <sub>4</sub> · 7H <sub>2</sub> O	0,1
UO <sub>2</sub>	2
PuO <sub>2</sub>	0,5

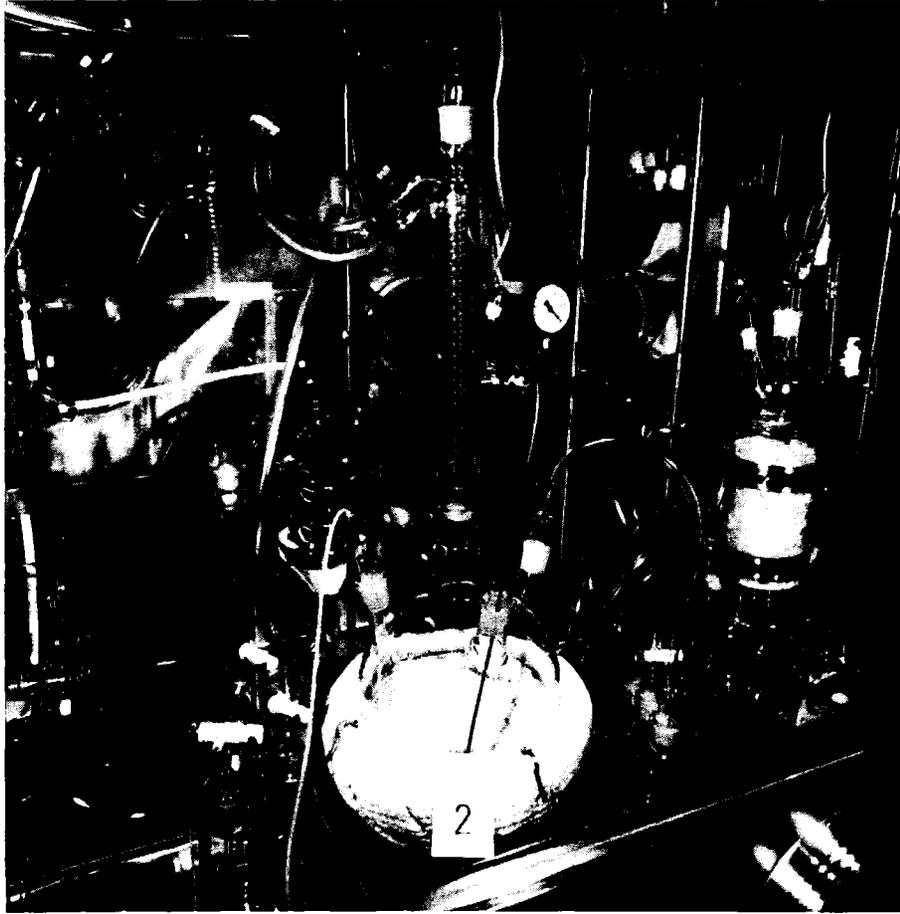
Tabelle 7: Druckfestigkeit (nach DIN 52105) und offene Porosität (nach DIN 51056) von Keramikprodukten

Versuchsnummer	Zusammensetzung	Druckfestigkeit (Kp/cm <sup>2</sup> ) Mittel	Offene Porosität (Vol.-%)
VA-71	20% Pu-Asche 80% Kaolin	700 ± 160	9,0 ± 0,5
VA-73	20% Pu-Asche 20% Bentonit 60% Kaolin	640 ± 100	5,4 ± 1,6
VA-74	20% Feedklär- schlamm 80% Kaolin	340 ± 60	7,1 ± 0,6
VA-75	20% Feedklär- schlamm 20% Bentonit 60% Kaolin	760 ± 120	2,8 ± 0,1
VA-76	9% MAW-Kalzinat <sup>+) </sup> 23% Bentonit 68% Kaolin	480 ± 50	2,2 ± 1,6
VA-77	20% Rückst. d. Naßverasch. 20% Bentonit 60% Kaolin	1170 ± 80	8,8 ± 2,0
VA-71/79-1	20% Alphakonzentrate 80% Kaolin	870 ± 140	7,3 ± 0,5
VA-71/79-2	20% Alphakonzentrate 20% Bentonit 60% Kaolin	1030 ± 80	8,0 ± 0,2
VA-71/79-3	20% Alphakonzentrate 20% Feldspat 20% Quarz 40% Kaolin	1520 ± 130	4,6 ± 0,7

+) 9 Gew.-% MAW-Kalzinat aus 20 Gew.-% MAW-Schlamm

Tabelle 8: Auslaugraten von Borosilikatprodukten mit HAW  
und alpha-haltigen Keramikprodukten

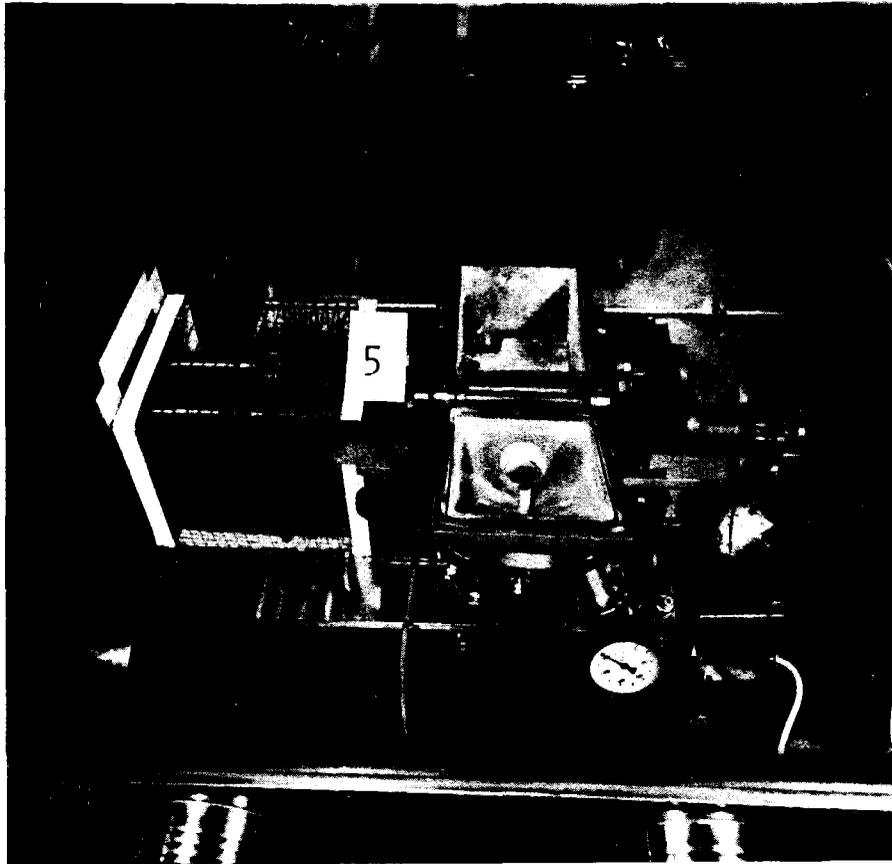
	Borosilikat- glas	Keramik- produkt
Auslaugraten für Pu $\text{g}\cdot\text{cm}^{-2}\cdot\text{d}^{-1}$ ( $20 \pm 3^\circ\text{C}$ )		
H <sub>2</sub> O	$10^{-6} - 10^{-7}$	$5\cdot 10^{-6} - 5\cdot 10^{-8}$
quinäre Salzlauge	$10^{-5} - 10^{-6}$	$3\cdot 10^{-6} - 5\cdot 10^{-8}$
Gesamter Material- abtrag [ $\text{g}\cdot\text{cm}^{-2}\cdot\text{d}^{-1}$ ] ( $200^\circ\text{C}$ , 8 MPa, H <sub>2</sub> O)	$1\cdot 10^{-6}$	$2\cdot 10^{-6} - 5\cdot 10^{-6}$



---

KfK

Abb. 1: Denitrator mit Rückfluß-  
kühler



---

KJK

Abb. 2: Mischer mit Austragspreßschnecke  
mit Blick in den Mischtrug



KfK

Abb. 3: Strangabschneider

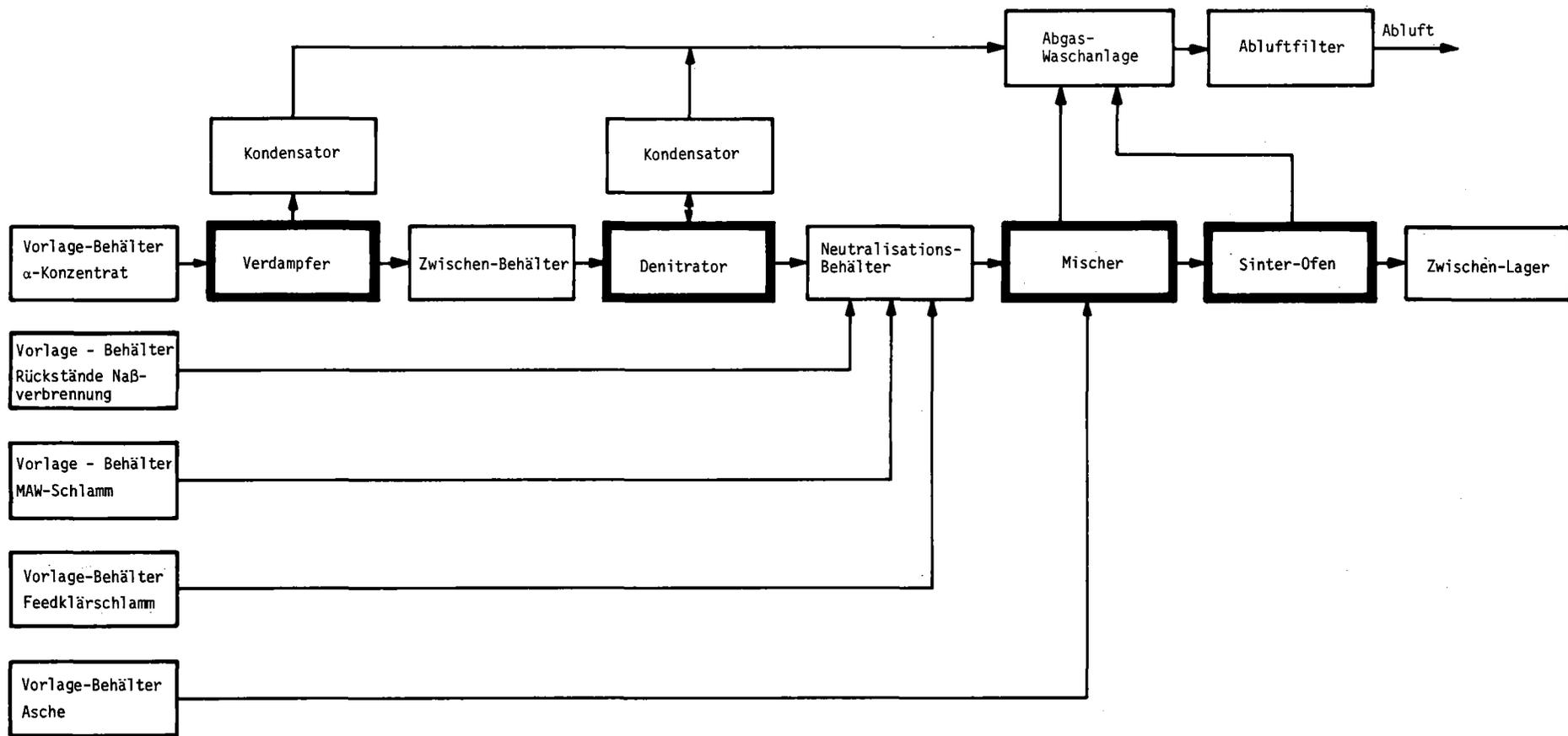


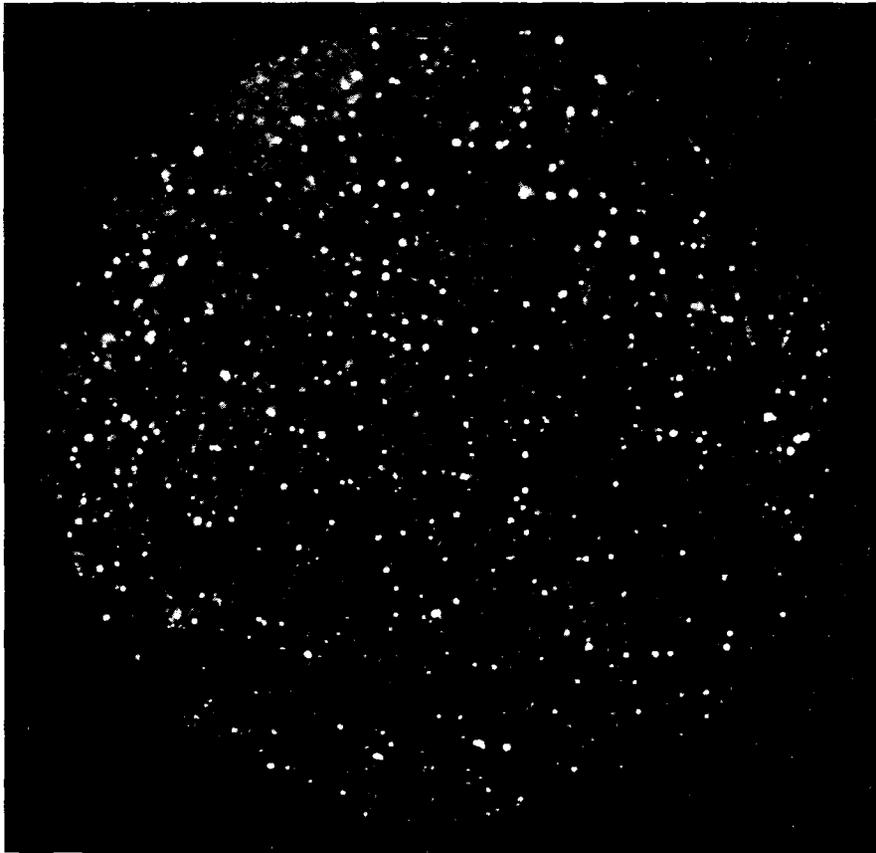
Abb. 4: Vereinfachtes Fließschema zur Verfestigung  $\alpha$ -haltiger Abfälle in keramischer Matrix



---

KfK

Abb. 5: Keramiken mit alphasdotiertem Rückstand  
der Naßveraschung  
Vers.-Nr. VA-77  
Zusammensetzung: 60% Kaolin + 20% Bentonit  
+ 20% Rückstand der Naßveraschung



VA-71/79-3

40% Kaolin

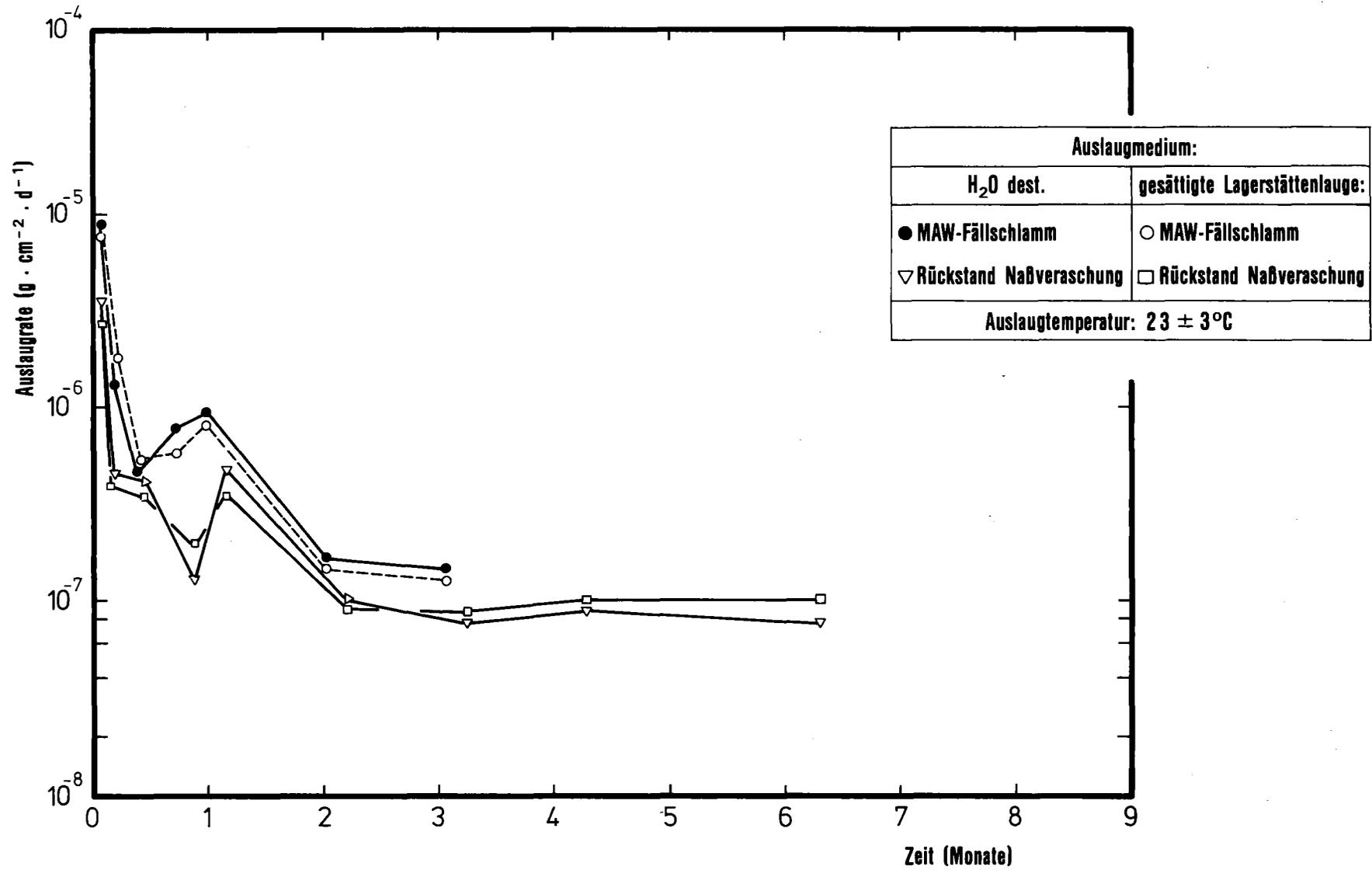
20% Feldspat

20% Quarz

20% Alphakonzentrate

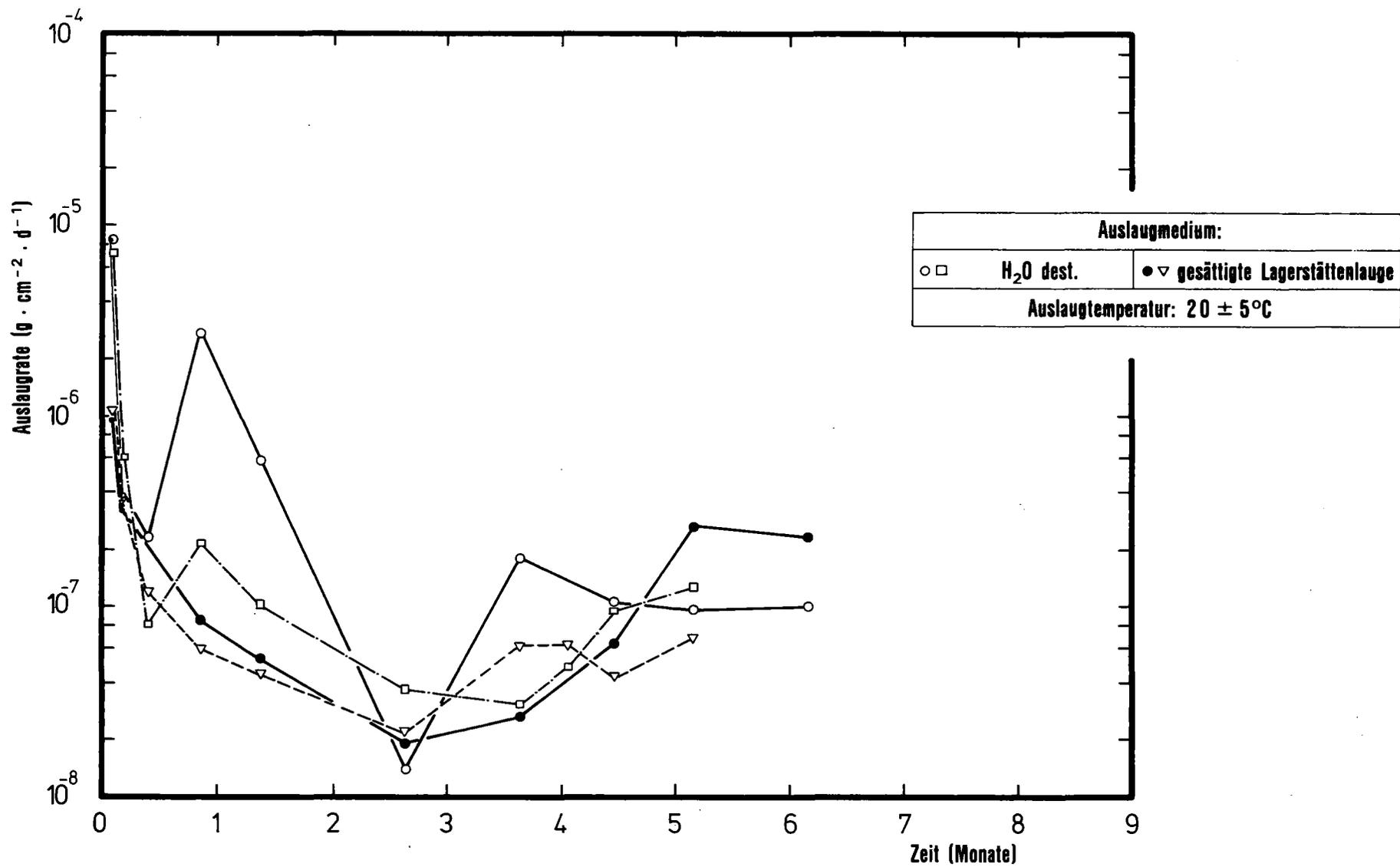


Abb. 5 a : Alpha-Autoradiographie von Keramik  
mit Alphakonzentraten



KfK

Abb. 6: Auslaugung von Plutonium aus Keramiken mit Rückständen der Naßveraschung und MAW-Fällschlamm



KfK

Abb. 7: Auslaugung von Plutonium aus Keramiken mit plutoniumhaltiger Asche

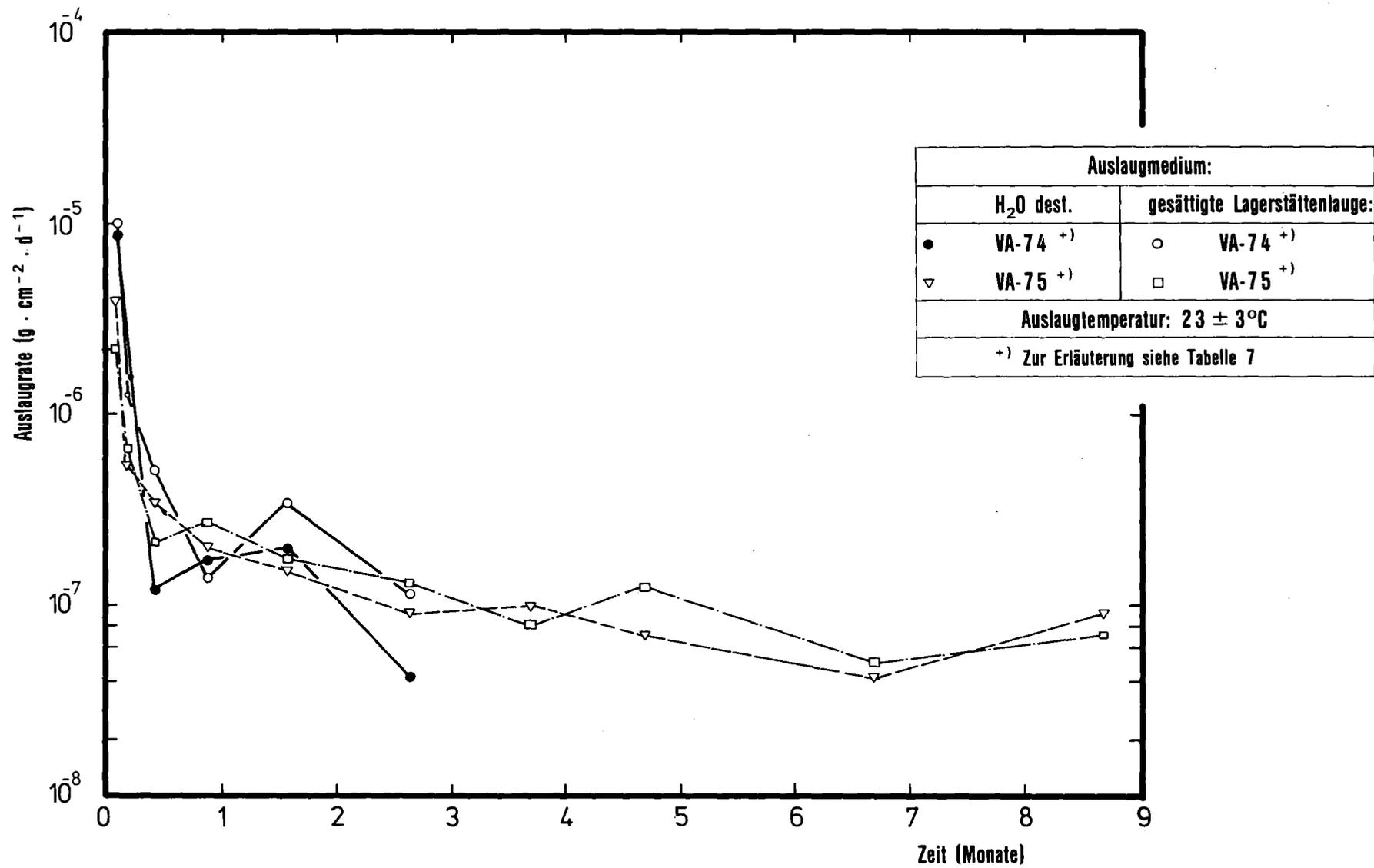
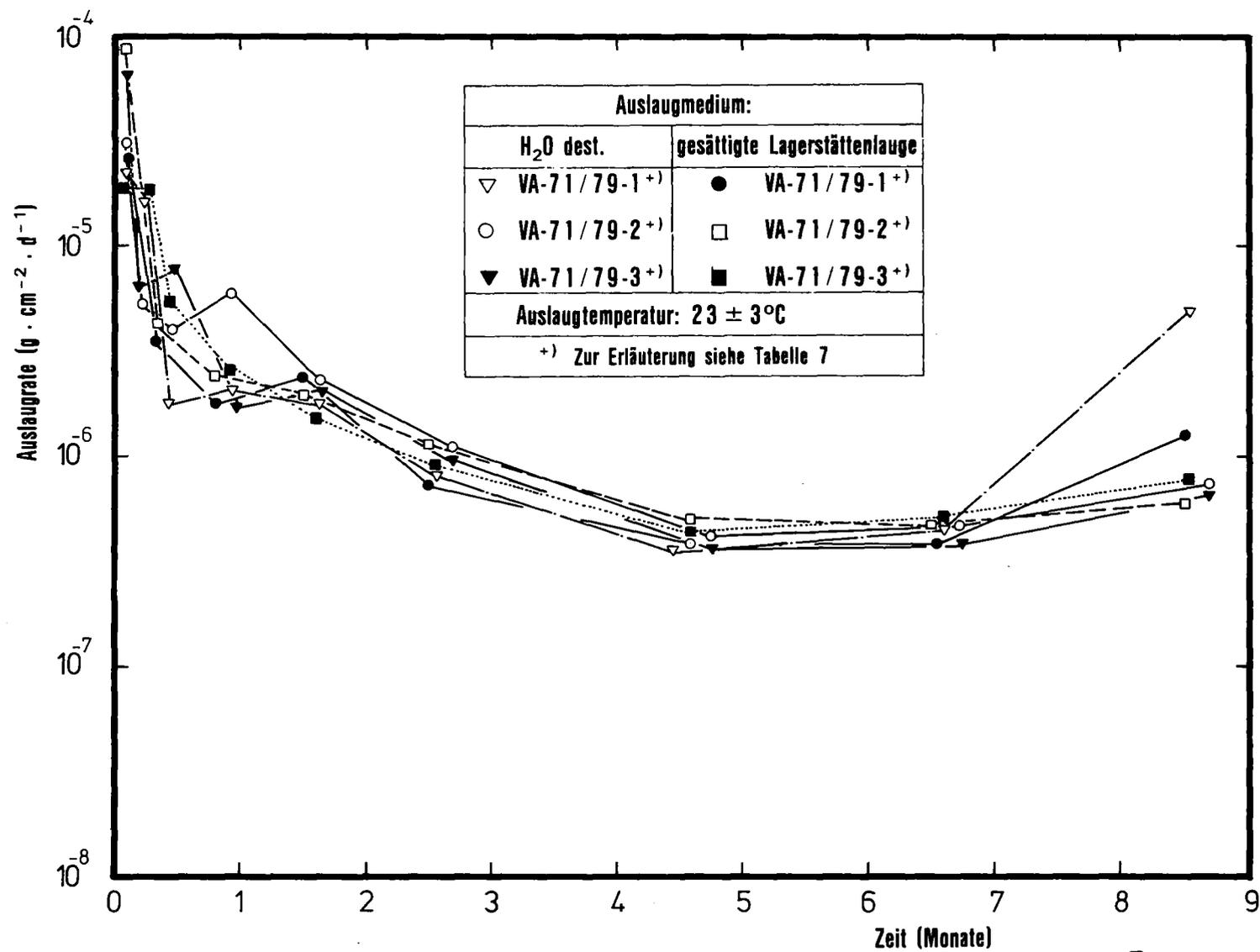
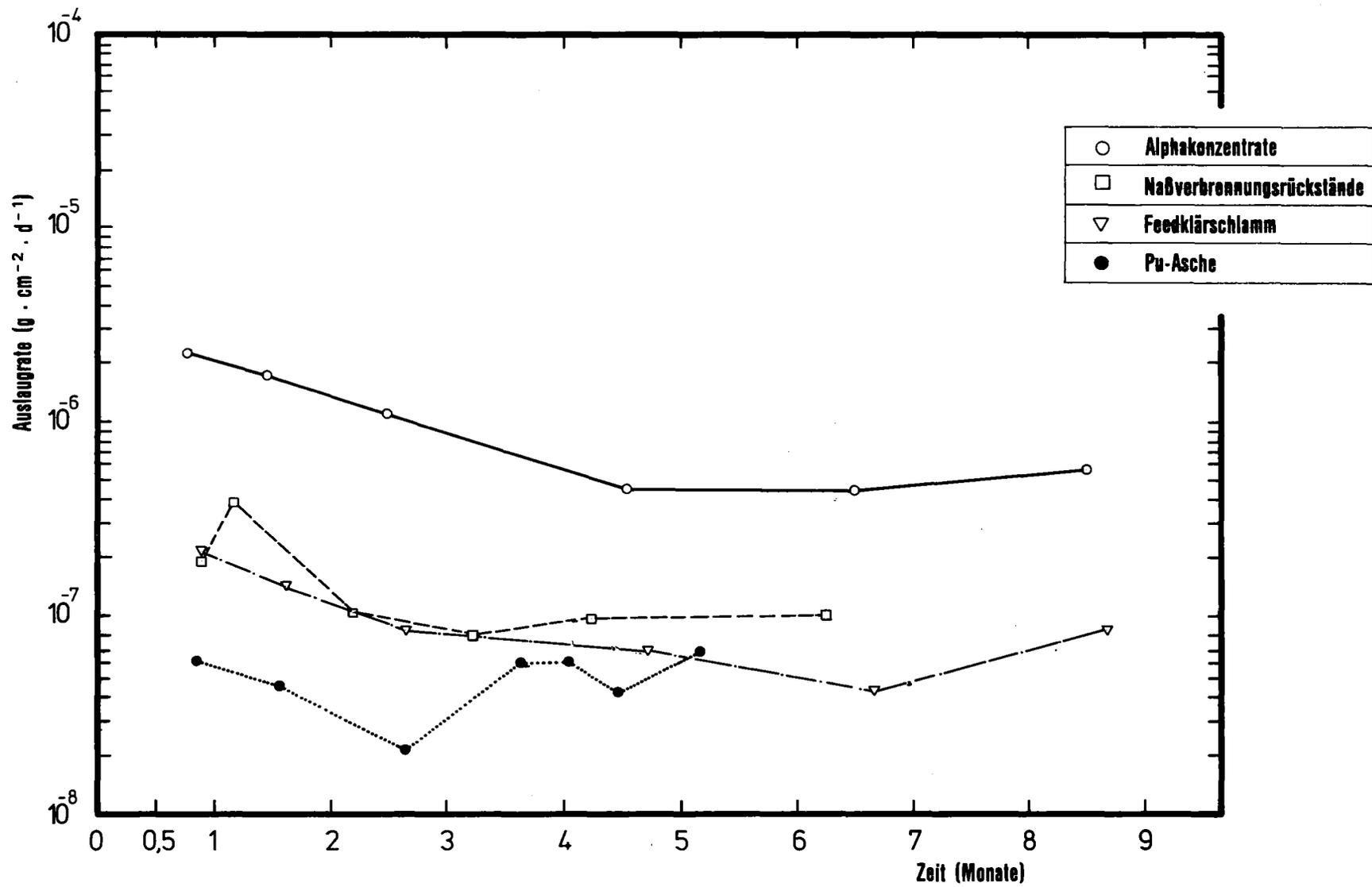


Abb. 8: Auslaugung von Plutonium aus Keramiken mit Feedklärschlamm



KfK

Abb. 9: Auslaugung von Plutonium aus Keramiken mit Alphakonzentraten



KfK

Abb. 10: Auslaugung von Plutonium aus Keramikprodukten mit  $\alpha$ -Abfällen  
 Auslaugmedium: gesättigte Lagerstättenlauge, Raumtemperatur