

KfK 3290
März 1982

**Sammlung der Vorträge
anlässlich des
4. Statusberichtes des
Projektes Wiederaufarbeitung
und Abfallbehandlung
am 5.11.1981**

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

Projekt Wiederaufarbeitung und Abfallbehandlung

KfK 3290

PWA 95/81

Sammlung der Vorträge anlässlich des
4. Statusberichtes des Projektes Wiederaufarbeitung
und Abfallbehandlung am 5.11.1981

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH, Karlsruhe

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

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH
ISSN 0303-4003
ISSN 0173-7988

INHALTSVERZEICHNIS

Seiten

- | | |
|--|-----------|
| 1. Begrüßung und Einführung
H. Böhm, Vorstandsmitglied der
Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH. | 1 - 6 |
| 2. Stand und Perspektiven des deutschen
Entsorgungskonzepts
M. Popp, Bundesministerium für
Forschung und Technologie | 7 - 20 |
| 3. Stand und Ergebnisse der Projektarbeiten
zur Wiederaufarbeitung und Abfallbe-
handlung
R. Kroebel, Kernforschungszentrum
Karlsruhe GmbH. | 21 - 32 |
| 4. Arbeitsschwerpunkte und Ergebnisse der
DWK im gemeinsamen Entwicklungsprogramm
K.D. Kuhn, A. Sahm, Wiederaufarbeitungs-
anlage Karlsruhe, Betriebsgesellschaft
mbH. | 33 - 51 |
| 5. Stand der Entwicklungsarbeiten zur Wie-
deraufarbeitung fortschrittlicher Brenn-
elemente
K. Ebert, Kernforschungszentrum Karls-
ruhe GmbH. | 52 - 72 |
| 6. Konzepte zur Behandlung aktinidenhalti-
ger radioaktiver Abfälle
H. Krause, Kernforschungszentrum Karls-
ruhe GmbH. | 73 - 96 |
| 7. Das deutsche Technologieprogramm zur HAW-
Verfestigung
W. Heimerl, Deutsche Gesellschaft für Wie-
deraufarbeitung von Kernbrennstoffen mbH.,
Hannover/Mol | 97 - 118 |
| 8. Filterstrecke zur Aerosol- und Iodabschei-
dung aus dem Auflöserabgas einer zukünftigen
Wiederaufarbeitungsanlage
J.G. Wilhelm, J. Furrer, R. Kaempffer,
A. Linek, Kernforschungszentrum Karlsruhe
GmbH. | 119 - 139 |

	Seiten
9. Wiederaufarbeitung von KNK II-Brennstäben in der MILLI H.-J. Bleyl, W. Ochsenfeld, Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH.	140 - 148
10. Versuche zum Stoffaustausch und zur hydraulischen Optimierung einer Originalmischabsetzkammer für die Tritiumabtrennung in einer Wiederaufarbeitungsanlage H. Bauer, K. Eiben, H. Evers, L. Finsterwalder, H. Klonk, B. Schieferdecker, Wiederaufarbeitungsanlage Karlsruhe, Betriebsgesellschaft mbH.	149 - 167
11. Hydraulische Untersuchungen an Sieb- und Düsenböden von Pulskolonnen H. Klonk, H. Evers, H. Zimmermann, Wiederaufarbeitungsanlage Karlsruhe, Betriebsgesellschaft mbH.	168 - 183
12. Modellbildung der Elektro-Reduktion im PUREX-Prozeß G. Petrich, H. Schmieder, Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH.	184 - 201
13. PUREX-Prozeßanalytik - Status und Trend - D. Ertel, Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH.	202 - 216
14. Bewertung und Vorstellung von Analyseverfahren für die Eingangsanalyse in der Wiederaufarbeitung E. Mainka, Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH.	217 - 227
15. Brennelement-Monitor Ein Gerät zur Kritikalitätskontrolle des Auflösers einer Wiederaufarbeitungsanlage W. Eyrich, G. Schulze, H. Würz, Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH. H.J. Becker, Wiederaufarbeitungsanlage Karlsruhe, Betriebsgesellschaft mbH.	228 - 249

III

Seiten

- | | |
|--|-----------|
| 16. Arbeiten zur Fernhantierungstechnik
G. Böhme, W. Köhler, M. Selig,
Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH. | 250 - 263 |
| 17. Auswahl, Verarbeitung und Anwendung
von korrosionsbeständigen Anlagenwerk-
stoffen in der Wiederaufarbeitung von
Kernbrennstoffen,
H. Klonk, R. Laudien, Wiederaufarbei-
tungsanlage Karlsruhe, Betriebsgesell-
schaft mbH.,
S. Leistikow, R. Kraft, Kernforschungs-
zentrum Karlsruhe GmbH. | 264 - 276 |

Statusbericht 1981 des Projektes Wiederaufarbeitung und Abfall-
behandlung am 5. November 1981

Begrüßung und Einführung

H. Böhm, Vorstandsmitglied der Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH.

Zum 4. Statusbericht unseres Projektes Wiederaufarbeitung und Abfallbehandlung begrüße ich Sie sehr herzlich, insbesondere unsere Gäste aus dem In- und Ausland.

Ich freue mich, daß auch dieses Mal so viele Teilnehmer zu unserer Veranstaltung erschienen sind und damit ihr Interesse an den Fragen der nuklearen Entsorgung im allgemeinen und unserer Arbeiten im besonderen bekunden.

Dieser Statusbericht soll - wie auch bei den vorausgegangenen Malen - einen Überblick geben über die Ergebnisse der F+E-Arbeiten des Kernforschungszentrums wie auch die der DWK, die in einem gemeinsamen Entwicklungsprogramm zusammengefaßt sind. Es ist inzwischen üblich geworden, daß der Statusbericht mit einem Vortrag eines Vertreters des BMFT über den jeweiligen Stand und die Perspektiven des deutschen Entsorgungskonzeptes begonnen wird. So halten wir es auch dieses Jahr, und ich freue mich, daß sich Herr Dr. Popp wieder bereiterklärt hat, diesen Vortrag zu halten.

Wenn sich die Referate des heutigen Tages vorwiegend mit den technisch-wissenschaftlichen Aspekten der Wiederaufarbeitung und Abfallbehandlung befassen - entsprechend der Zielsetzung unserer Arbeiten - so bedeutet dies nicht, daß wir uns nicht auch mit den anderen, den energiepolitischen, juristischen und psychologischen Fragen der Entsorgung auseinandersetzen, die ja in der öffentlichen Diskussion häufig eine größere Rolle spielen als die technischen Aspekte.

Zwei Jahre sind seit dem letzten Statusbericht vergangen, der unter dem Eindruck des Gorleben-Hearings und der nachfolgenden Entscheidung der niedersächsischen Landesregierung sowie der Erklärung der Bundesregierung zur Entsorgung und dem Beschluß der Regierungschefs stand.

Seit dieser Zeit ist national wie auch international im Bereich der Entsorgung einiges geschehen, was der Erwähnung wert ist, und direkt oder indirekt auf unsere Arbeiten Einfluß hat. Leider lassen sich keine Entscheidungen oder Ereignisse zitieren, die als ein sehr wesentlicher Fortschritt auf dem Weg zur baldigen Realisierung des integrierten Entsorgungskonzeptes anzusehen sind.

Während die weltpolitischen Aspekte der Wiederaufarbeitung, insbesondere das Bestreben des ehemaligen US-Präsidenten Carter, die kommerzielle Wiederaufarbeitung zu verhindern, durch INFCE und durch den Präsidentenwechsel in USA mehr und mehr zurücktreten und nur geringen Einfluß auf die Entsorgungspolitik in der Bundesrepublik Deutschland haben, hat sich die innenpolitische Situation nicht nennenswert geändert und nicht dazu beigetragen, die bestehende Unsicherheit auf diesem Gebiet abzubauen.

So sehr man die Entscheidung des amerikanischen Präsidenten zugunsten der Wiederaufarbeitung begrüßen muß, so sehr führt sie uns doch das Mißverhältnis von der Existenzdauer politischer Entscheidungen zur Dauer technischer Entwicklungen bzw. der Errichtung von Anlagen vor Augen. Eine effektive Kopplung politischer Entscheidungen mit langfristigen Entwicklungen ist wegen der Instabilität vieler politischer Entscheidungen und ihrer hohen Wechselfrequenz manchmal nur sehr schwer möglich.

Wir alle bedauern, daß die von der Regierung, von den politischen Parteien, der Enquête-Kommission und den EVUs gewünschte Errichtung einer Prototyp-Wiederaufarbeitungsanlage mittlerer Größe noch keine konkreten Formen angenommen hat, von einer "zügigen Errichtung", wie sie der Beschluß der Regierungschefs fordert, ganz zu schweigen, auch wenn die Bereitschaft der hessischen Landesregierung zu einem Genehmigungsverfahren für eine Wiederaufarbeitungsanlage und der entsprechende Antrag der DWK im Februar 1980 sowie die Bereitschaft der Länder Niedersachsen, Bayern und Rheinland-Pfalz als ein deutlich positives Zeichen zu werten sind.

Die Verzögerungen sind nicht nur in Hinblick auf eine gesicherte Entsorgung und eine größere Unabhängigkeit vom Ausland zu bedauern sondern auch aus psy-

chologischen Gründen. Wir hoffen aber dennoch, daß der Satz "Delay is the deadliest form of denial" sich im vorliegenden Fall nicht bestätigt und daß die Realisierung der Anlage bald Wirklichkeit wird und sich die Aktivitäten nicht mehr primär auf Analysen, Prognosen, Studien, Sicherheitsberichte und Diskussionen möglicher Standorte beschränken.

Umso erfreulicher ist es, daß im Berichtszeitraum einige Entwicklungen ihre technische Anwendung gefunden haben bzw. sich im aktiven technischen Betrieb bewährt haben.

Auf dem Gebiet der Wiederaufarbeitung ist hier zu nennen: die erfolgreiche Erprobung der im IHCH entwickelten elektrolytischen Verfahren im 2. Zyklus der WAK, die sogenannte 2B-EMMA und 2B-ROXI sowie der daraufhin geplante Einbau der entsprechenden Apparate in den 1. Zyklus der WAK. Hierbei hat sich erneut die langjährige ausgezeichnete Zusammenarbeit zwischen KfK und WAK bewährt. Es ist vorgesehen, den Einbau in den 1. Zyklus während der laufenden, durch den Schaden am Auflöser bedingten Interventionsphase vorzunehmen. Wir hoffen, daß die WAK im Laufe des nächsten Jahres ihren Betrieb wieder aufnehmen kann.

Im Bereich der Abfallbehandlung sind zu nennen: der Baubeginn der Verglasungsanlage PAMELA in Mol, die auf der gemeinsamen Entwicklung von DWK und KfK/INE basiert und vom BMFT und der DWK finanziert wird. Bei dem Tempo, mit dem es möglich ist, Anlagen in Mol zu bauen, hoffen wir, daß die Anlage termingerecht 1985 ihren aktiven Betrieb aufnimmt. An gleicher Stelle, nämlich in Mol, errichten wir gemeinsam mit der Eurochemic eine Anlage zur Naßveraschung α -haltiger Abfälle, die Ende des Jahres ihren Betrieb aufnehmen soll. Bei dieser Gelegenheit möchte ich der Eurochemic, insbesondere den Herren Detilleux und Eschrich für die vertrauensvolle und - ich denke - für beide Seiten nutzbringende Zusammenarbeit danken.

Intensiviert hat sich in den vergangenen zwei Jahren - gerade auch im Bereich der Abfallbehandlung - die internationale Zusammenarbeit, und zwar sowohl mit den USA im Rahmen des BMFT-DOE-Abkommens als auch mit Japan auf Grund eines Anfang des Jahres zwischen der Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation (PNC) und dem KfK abgeschlossenen Vertrages über die Zusammenarbeit auf dem Gebiet der Verglasung.

Fortgesetzt wurde und wird die Zusammenarbeit innerhalb der Europäischen Gemeinschaft auf dem Gebiet der Behandlung und Lagerung radioaktiver Abfälle.

Wir würden es sehr begrüßen, wenn die Kooperation auch im Rahmen der URG, d.h. mit Frankreich und England, wieder den Rang einnehmen könnte, der ihr unserer Meinung nach für eine erfolgreiche Lösung der Aufgaben und Vermeidung von Doppelarbeit zukommt.

Wenn bei einem Statusbericht des PWA die für unsere Arbeiten notwendige nationale und internationale Zusammenarbeit angesprochen wird, so rangiert für uns unsere Kooperation mit der DWK an erster Stelle, was ja auch durch die aktive Beteiligung der DWK an den Statusberichten zum Ausdruck kommt. Vor über zwei Jahren haben wir den Kooperationsvertrag geschlossen, und wir können wirklich sagen, daß sich auf allen Ebenen eine partnerschaftliche und vertrauensvolle Zusammenarbeit entwickelt hat. Die sachliche Notwendigkeit unsere stark anwendungsorientierten F+E-Arbeiten in enger Verbindung mit dem Planer und Betreiber der zu errichtenden Anlagen durchzuführen, hat sich als positiv und für beide Seiten befruchtend ausgewirkt. Gegenseitige Hilfe, Verständnis für die Wünsche und Belange des Partners und eine effektive Absprache bei der Gestaltung und Durchführung der Programme sind - sieht man von den Anfangsschwierigkeiten und üblichen Problemen ab - kennzeichnend für die Kooperation. So war es für uns auch leicht, die von uns beanspruchte Unabhängigkeit des KfK zu bewahren.

Zweifellos ist für unser PWA die DWK der wichtigste Partner. Es soll aber nicht vergessen werden, daß es eine Reihe anderer interner und externer Projekte und Aktivitäten gibt, mit denen eine genaue Abstimmung und umfassende gegenseitige Information ebenso notwendig ist und auch erfolgt, so z.B. mit dem Projekt Schneller Brüter, dem Projekt Kernmaterialüberwachung, mit der Projektträgerschaft Universitätsforschung zum nuklearen Brennstoffkreislauf, mit der EGT und mit den Arbeiten der Projektgruppe Andere Entsorgungstechniken. Mit dem vom HMI federführend betreuten Projekt Sicherheit der Entsorgung wird das PWA neben der bereits bestehenden Mitwirkung von KfK-Mitarbeitern in den Gremien des PSE zukünftig verstärkt Abstimmungen vornehmen. Völlig reibungslos erfolgt die Koordination und Information der entsprechenden Arbeiten innerhalb der AGF.

Last but not least möchte ich die gute und enge Zusammenarbeit mit den zuständigen Stellen des BMFT erwähnen. Allen Beteiligten möchte ich für die Koopera-

tion, die wesentlich zum Gelingen unserer Arbeit beiträgt, unseren Dank sagen.

Sie werden verstehen, wenn mein ganz besonderer Dank unseren Mitarbeitern gilt. Mittel- und Stellenkürzungen, ein nur schwer wahrnehmbarer Fortgang bei der Realisierung der Entsorgungseinrichtungen, zunehmende die Arbeit erschwerende und verzögernde und in vielen Fällen nicht oder nur schwer verständliche Sicherheits- und Sicherungsaufgaben, dies alles sind nicht unbedingt motivationsfördernde Elemente für unsere Wissenschaftler und Techniker. Wenn sie dennoch mit großem Engagement und Optimismus an die Lösung der vor ihnen liegenden Aufgaben herangegangen sind und dies, wie die Vorträge des heutigen Statusberichtes zeigen werden, erfolgreich bearbeitet haben, so verdient dies Dank und Anerkennung.

Ich möchte meine Begrüßung und Einführung nicht abschließen, ohne ein paar Worte zur zukünftigen Entwicklung unserer Arbeiten auf dem Gebiet der Wiederaufarbeitung und Abfallbehandlung zu sagen.

Das Projekt Wiederaufarbeitung und Abfallbehandlung hat sich in den sieben Jahren seines Bestehens zum zweitgrößten Arbeitsschwerpunkt des KfK entwickelt. Es ist ausgerichtet auf die Realisierung des deutschen Entsorgungskonzeptes, einschließlich der stetigen wirtschaftlichen und sicherheitstechnischen Weiterentwicklung der verschiedenen Prozesse und auf die Entwicklung und Optimierung des Schnellbrüter-Brennstoffkreislaufs. Vor diesem Hintergrund betrachten wir die Arbeiten zur Wiederaufarbeitung und Abfallbehandlung auch weiterhin als hochprioritär und sehen daher in diesem Projekt auch für die Zukunft einen der großen Arbeitsschwerpunkte des KfK. Gestützt wird diese Einschätzung durch die Tatsache, daß in der Bundesrepublik Deutschland nur in Karlsruhe umfassende experimentelle Arbeiten auf diesem Gebiet durchgeführt werden und nur hier die umfangreichen, notwendigen technischen Einrichtungen einschließlich des qualifizierten Personals vorhanden sind.

Innerhalb des Arbeitsschwerpunktes werden aber zweifellos in den nächsten Jahren in erheblichem Umfang thematische Änderungen erfolgen, die sich zum Teil aus der Verstärkung der Arbeiten zur SBR-Wiederaufarbeitung bei gleichzeitiger Reduktion bzw. Abschluß mancher Arbeiten zur LWR-Wiederaufarbeitung ergeben.

Wenn ich darauf hinwies, daß das KfK wegen der vorhandenen Erfahrungen und technischen Einrichtungen für die Arbeiten auf dem Gebiet der Wiederaufarbeitung und Abfallbehandlung prädestiniert ist, so schließt dies zugleich aber auch die Verpflichtung ein, dafür Sorge zu tragen, daß die technischen Anlagen und Versuchseinrichtungen auch den längerfristigen Aufgaben und Zielsetzungen gerecht werden. Unsere Einschätzung dieser Arbeiten als prioritär bedeutet zugleich, alles zu tun, die technischen und apparativen Voraussetzungen für eine erfolgreiche, anwendungsorientierte und rasch in die Technik umsetzbare Entwicklung zu bewahren bzw. zu schaffen.

Konkret gesprochen bedeutet dies in unseren Augen

- Sicherstellung des Betriebs der WAK und ihrer Nutzung als heiße Testanlage
- Modernisierung der MILLI-Anlage mit dem Ziel ihrer längerfristigen Nutzung
- Errichtung einer flexiblen, heißen Chemiezellenanlage für Untersuchungen und Entwicklungen unter aktiven Bedingungen
- Durchführung von vorbereitenden Arbeiten für den Bau einer kleinen prototypischen Wiederaufarbeitungsanlage für Schnellbrüterbrennstoffe in den neunziger Jahren.

Wir wissen, daß die Durchführung aller dieser Maßnahmen angesichts der finanziellen Situation der kommenden Jahre nicht einfach sein wird. Wir sind aber davon überzeugt, daß die gesteckten Ziele dennoch zu erreichen sind.

Mit diesem - so hoffe ich - positiven Ausblick schließe ich meine Einführung und wünsche Ihnen eine interessante und informative Veranstaltung.

STAND UND PERSPEKTIVEN DES DEUTSCHEN ENTSORGUNGSKONZEPTS

M. Popp, Bundesministerium für Forschung und Technologie

Meine Damen und Herren,

wie Sie alle wissen, hat sich das Entsorgungskonzept der Bundesregierung im Verlauf der letzten Jahre geändert. 1974 wurde das integrierte Entsorgungszentrum auf der Reaktortagung in Berlin vorgestellt. Seine Realisierung war seit 1977 in Gorbun geplant. Aufgrund der Entscheidung vom 16.5.1979 konnte diese Planung nicht verwirklicht werden, da die Niedersächsische Landesregierung das Projekt für politisch nicht durchsetzbar erklärte. Am 28.9.1979 kamen die Regierungschefs von Bund und Ländern überein, die Entsorgung der Kernkraftwerke im Rahmen des "Integrierten Entsorgungskonzeptes" weiter zu verwirklichen. Hierbei soll es ermöglicht werden, einzelne Entsorgungsanlagen wie z.B. Zwischenlagerung, Wiederaufarbeitung und Abfallbehandlung sowie Endlagerung auch räumlich getrennt zu verwirklichen. Darüber hinaus kamen die Regierungschefs überein, eine Wiederaufarbeitungsanlage so zügig zu errichten, wie dies unter Beachtung aller in Betracht zu ziehenden Gesichtspunkte möglich ist. Es wurde festgelegt, auch andere Entsorgungstechniken, wie die direkte Endlagerung von abgebrannten Brennelementen ohne Wiederaufarbeitung, auf ihre Realisierbarkeit und sicherheitstechnische Bewertung zu untersuchen, um ein abschließendes Urteil darüber, ob sich hieraus entscheidende sicherheitsmäßige Vorteile ergeben können, in der Mitte der 80iger Jahre zu ermöglichen. Von dieser Entscheidung des Jahres 1979 geht die gegenwärtige Diskussion über die Entsorgungsvorsorge aus. Seitdem, und das heißt auch seit dem letzten Statusbericht, sind in den einzelnen Teilbereichen des Entsorgungskonzeptes Fortschritte erzielt worden. In einem Vortrag "Stand und Perspektiven des deutschen Entsorgungskonzeptes" ist es darüber

hinaus auch erforderlich, die Ergebnisse der Enquete-Kommission "Zukünftige Kernenergiepolitik" des 8. Deutschen Bundestages miteinzubeziehen. Abweichend von der Entscheidung der Regierungschefs von Bund und Ländern hat die Enquete-Kommission empfohlen, eine Entscheidung über die Wahl des einzuschlagenden Entsorgungsweges erst 1990 zu treffen, da nach dem Mehrheits-Kompromiß der Enquete-Kommission erst dann eine Entscheidung über die großtechnische Nutzung der Kernenergie gefällt werden soll. Um für eine positive Entscheidung gerüstet zu sein, forderte die Enquete-Kommission u.a. den Bau einer Demonstrations-Wiederaufarbeitungsanlage, deren Größe sich nicht am Entsorgungsbedarf sondern an technologiepolitischen Überlegungen orientieren soll.

Mit der Durchführung des von der Enquete-Kommission dazu geforderten Gutachtens hat die Bundesregierung Prof. Häfele beauftragt. Er kam in seinem im Mai dieses Jahres vorgelegten Gutachten zum Ergebnis, daß die technologisch richtige Größe einer Demonstrationsanlage bei 400 - 800 t/a liegen sollte. Da die Größe der zur Zeit für Hessen geplanten Anlage sogar unterhalb dieser Marge liegen soll, ergibt sich trotz unterschiedlicher Ansätze für die Entsorgungspolitik in der Sache, d.h. in Bezug auf die in absehbarer Zeit anstehenden Entscheidungen kein Dissens. Damit sind insgesamt - und dies ist eine wichtige Feststellung - die zur Realisierung des Integrierten Entsorgungskonzeptes erforderlichen nächsten Schritte politisch nicht grundsätzlich umstritten.

Bevor ich jedoch auf die Situation in den einzelnen Teilbereichen des Integrierten Entsorgungskonzeptes näher eingehe, möchte ich noch einige Worte zur Historie einfügen, um einem Mißverständnis vorzubeugen, die genannten Jahre für die Vorstellung des Entsorgungszentrums 1974 und des Entsorgungskonzeptes 1979 markierten zugleich auch den - zu späten - Beginn der Beschäftigung mit den Entsorgungsproblemen.

Wir haben im Jahre 1959, d.h. vor der Inbetriebnahme des 1. Deutschen Versuchsatomkraftwerkes in Kahl bereits mit der Ratifizierung des Vertrages der EUROCHEMIC einen Schritt zur Entsorgung der Kernkraftwerke gemacht. Wir haben also bereits vor der Inbetriebnahme eines 1. Deutschen Kernkraftwerkes den Weg eingeleitet, Kernkraftwerke zu entsorgen. Darüber hinaus haben wir bereits 1965 ASSE angekauft und dort in der Zeit von 1967 - 1978 die Versuchsendlagerung schwach- und mittelradioaktiver Abfälle betrieben. Zusätzlich haben wir die Versuchsanlage WAK für die Wiederaufarbeitung von oxidischem Brennstoff errichtet und 1971 in Betrieb genommen. Verfahren zur Verfestigung hochaktiver Abfälle aus der Wiederaufarbeitung und zur Endlagerung der Produkte werden seit langem in den Kernforschungszentren bearbeitet.

Damit sind in der Kerntechnik die technischen Grundlagen zu einem Zeitpunkt geschaffen worden, als der Begriff der Entsorgung bei anderen Energiequellen und bei anderen Industriezweigen noch ein Fremdwort war. Notwendig ist jetzt die Umsetzung dieser Kenntnisse und Erfahrungen in konkrete Anlagen, die wirklich die Schließung der Entsorgungskette demonstrieren. Und ich hoffe, daß sich auch in der über dieses Thema weiterhin erregten öffentlichen Diskussion noch stärker die Ehrlichkeit durchsetzt: man kann entweder die Offenheit der Entsorgungsfrage beklagen oder gegen den Bau von Entsorgungseinrichtungen protestieren. Zu dieser Ehrlichkeit in der Betrachtung der Entsorgung haben die Diskussionen der letzten Jahre, auch die der Enquete-Kommission, sicher beigetragen.

Wichtig für die Realisierung ist ein Engagement von Industrie und Staat in genau definierter Arbeitsteilung.

Diese Aufgabenverteilung zwischen Staat und Industrie wurde 1976 formuliert: Bau und Betrieb von Entsorgungsanlagen einschließlich der Behandlung radioaktiver Abfälle und der Rückführung wiederverwendbarer Kernbrennstoffe Uran und Plutonium sind Aufgabe der Industrie.

Der Bund trägt die im Atomgesetz verankerte Verantwortung für die Sicherstellung und Endlagerung der radioaktiven Abfallprodukte. Die Physikalisch-Technische Bundesanstalt (PTB) nimmt dabei die Endlagerung dieser Abfälle für den Bund vor. Die Kosten, die mit der Errichtung und dem Betrieb des Endlagers verbunden sind, sind in voller Höhe von den Verursachern der Abfallstoffe zu tragen. Die PTB wird bei der Durchführung ihrer Aufgaben von der Deutschen Gesellschaft zum Bau und Betrieb von Endlagern (DBE) unterstützt. Diese Gesellschaft hat inzwischen ihre Arbeit voll aufgenommen.

Entsprechend ihrer Interessenlage wird sich die Bundesregierung bei der Weiterentwicklung der Technologien im Bereich der Entsorgung beteiligen durch

- Weiterentwicklung, Prüfung und Realisierung einer sicheren Technik für die Endlagerung und Sicherstellung radioaktiver Abfälle
- sicherheitstechnische Weiterentwicklung der Entsorgung, insbesondere auch Weiterentwicklung von Komponenten und Verfahren mit hohem Sicherheitspotential
- Untersuchungen zum Risikobeitrag der Entsorgungsanlagen im Brennstoffkreislauf.

Für die Bearbeitung dieser Aufgaben sind für die Bundesregierung die Kernforschungszentren von außerordentlicher Bedeutung. Neben sicherheitstechnischen Fragestellungen geht es dort insbesondere um die Entwicklung von Alternativen oder erst langfristig realisierbarer Technologien. Die Bundesregierung fördert eigene Entwicklungsarbeiten in den genannten Aufgabenbereichen. Bedeutung kommt der wissenschaftlichen Beschäftigung mit den chemischen, verfahrenstechnischen und geologischen Grundlagen des Entsorgungsbereichs auch an Hochschulen zu. Durch die intensive Zusammenarbeit im Rahmen der Europäischen Gemeinschaft, der internationalen Organisation NEA/IAEO sowie bilateral mit verschiedenen Ländern ist es möglich, Fehlentwicklungen zu vermeiden, bei be-

stimmten Untersuchungen Kosten einzusparen, durch den Erfahrungsaustausch eigene Ergebnisse und Erkenntnisse abzusichern und so die technologische Position der Bundesrepublik Deutschland in diesen speziellen Technologiebereichen zu festigen.

Lassen Sie mich zurückkommen auf den Stand der Realisierung der Entsorgungsschritte in der Bundesrepublik Deutschland.

Transport und Zwischenlagerung

Nach dem Beschluß der Regierungschefs ist die Zwischenlagerung abgebrannter Brennelemente ein eigenständiger Schritt bei der Schließung der Entsorgungskette. Hierbei kann die Zwischenlagerung sowohl in Kompaktlagern von Kernkraftwerken als auch in externen Zwischenlagern vorgenommen werden.

Genehmigungsverfahren für externe Zwischenlager in Ahaus und Gorleben laufen. Hierbei plant die Industrie, Transportbehälter zur Zwischenlagerung zu verwenden. Die Beteiligung der Bundesregierung am Forschungs- und Entwicklungsvorhaben erfolgt ausschließlich noch bei Untersuchungen, die sicherheitstechnische Fragestellungen des Strahlen- und Umweltschutzes beinhalten.

Wiederaufarbeitung

Die Wiederaufarbeitung abgebrannter Brennelemente stellt eine Schlüsselstellung für eine fortschrittliche Kernenergienutzung dar: Unverbrauchte (Uran) und erbrütete (Plutonium) Kernbrennstoffe werden für die Nutzung in neuen Brennelementen zurückgewonnen, die radioaktiven Spaltprodukte werden abgetrennt und zu sicher langerfähigem Abfall weiterverarbeitet.

Die mit Bundesmitteln errichtete und betriebene WAK in Karlsruhe und die mit deutscher Beteiligung betriebene internationale

EUROCHEMIC-Anlage in Mol haben in den letzten Jahren wichtige Betriebserfahrungen bei der Wiederaufarbeitung der Brennelemente aus heutigen LWR-Kernkraftwerken geliefert. Dabei wurden auch die in USA, Frankreich und Großbritannien vorliegenden Erfahrungen bestätigt.

Für die Zukunft stehen als weitere wichtige F+E-Arbeiten an:

- Weiterentwicklung und Optimierung von Komponenten und Verfahrensschritten (z.B. elektrolytische Verfahrensschritte)
- Verbesserung von Inline-Instrumentierung und -analytik
- Verminderung von Abfallmengen
- Weiterentwicklung und Prototyperprobung von Einrichtungen zur Rückhaltung und Abtrennung radioaktiver Isotope
- Untersuchungen von Störfallabläufen und Störfallwirkungen
- Anpassungen des PUREX-Prozesses für die Wiederaufarbeitung hochabgebrannter Brennstoffe und Brennelemente des Schnellen Brütters
- fernbediente Reparatur- und Wartungstechnik
- Meßgeräte für Spaltstoffflußkontrolle

Die DWK hat im Februar 1980 einen Antrag auf die Errichtung einer Anlage zur Wiederaufarbeitung von Kernbrennstoffen mit einer auf 350 t begrenzten Jahreskapazität beim Hessischen Minister für Wirtschaft und Technik gestellt. Eine Inbetriebnahme dieser Anlage wäre in der 1. Hälfte der 90iger Jahre möglich.

Die Bewältigung der zukünftigen Aufgaben zwischen Staat und Industrie läuft m.E. im Rahmen des Kooperationsvertrages zwischen KfK und DWK zufriedenstellend. Die Forschungs- und Entwicklungsergebnisse werden in den Bau und Betrieb der zukünftigen Anlage einfließen.

Es besteht eine enge europäische Zusammenarbeit über die United Reprocessors GmbH. (URG) mit CEA, BNFL und der DWK. Die URG, die

1971 als Reaktion auf die damals fälschlich erwartete Überkapazität auf dem Gebiet der Wiederaufarbeitung in Europa gegründet worden war, sieht heute eine ihrer wesentlichen Aufgaben darin, den Erfahrungsaustausch zwischen den drei Partnern zu fördern und insbesondere Aushilfe bei Kapazitätsengpässen in einem Partnerland zu leisten. Als 1. Anlage steht die französische Wiederaufarbeitungsanlage in La Hague zur Verfügung.

Darüber hinaus ist festzustellen, daß bei KfK und DWK gegenwärtig Überlegungen über die Verstärkung der Arbeiten zur Wiederaufarbeitung von SBR-Brennelementen angestellt werden, die auf den bisher gewonnenen Erfahrungen der LWR-Wiederaufarbeitung aufbauen können.

Abfallbehandlung

Die Behandlung der radioaktiven Abfälle aus der Wiederaufarbeitung vor ihrer Endlagerung hat zum Ziel, die radioaktiven Abfälle in verfestigte Produkte umzuwandeln, die die notwendige chemische und physikalische Stabilität über sehr lange Zeiträume unter der Bedingung der Endlagerung behalten können.

Für schwach- und mittelaktive Abfälle existieren bereits seit langem erprobte und bewährte Konzepte zur Verfestigung, z.B. Verfestigung mit Beton oder Bitumen. Die Forschungs- und Entwicklungsarbeiten auf diesem Gebiet haben als wesentliches Ziel, das Aufkommen der Abfallprodukte zu verringern und die chemisch-physikalische Stabilität der Endlagerprodukte zu verbessern. Weiterhin werden auch Verfahren zur Aufarbeitung von Abfallgemischen, insbesondere bei mittelaktivem Abfall, untersucht. Wesentliche Anstrengungen werden auch bei der Charakterisierung von Abfallprodukten, insbesondere unter Störfallbedingungen, und der Qualitätssicherung bei der Herstellung endlagerfähiger Produkte unternommen.

Für die festen Abfälle der Wiederaufarbeitungsanlage, z.B. für die Brennstabhülsen, sind die Verfahren zur Dekontamination und Kompaktierung inzwischen weitgehend ausgereift.

Mit dem Bau einer Verglasungsanlage wurde bei der EUROCHEMIC in Mol mit deutscher Technologie begonnen. Diese Anlage soll 1984/85 in Betrieb gehen. Als Endprodukte wird diese Verglasungsanlage, die mit einem keramischen Schmelzofen ausgerüstet ist, Borosilikatglasblöcke und in Metall eingebettete Borosilikatglaskugeln (VITROMET) liefern.

Spaltstoffrückführung

Mit der Rückführung des unverbrauchten Urans und des erbrüteten Brennstoffs Plutonium wird der Brennstoffkreislauf mit Wiederaufarbeitung geschlossen. Die Forschungs- und Entwicklungsarbeiten auf diesem Gebiet konzentrieren sich auf die Untersuchung sicherheitstechnischer Fragestellungen, die ein großtechnischer Einsatz von Plutonium mit sich bringt.

Das in den Leichtwasserreaktoren entstehende spaltbare Plutonium hat ähnliche Eigenschaften wie das normalerweise als Kernbrennstoff verwendete Uran-Isotop U 235 und kann daher ebenfalls zur Energieerzeugung in Kernreaktoren genutzt werden. Diese Rückführung des Plutoniums ist nach heutigem Kenntnisstand sowohl aus sicherheitstechnischen wie auch aus volkswirtschaftlichen Gründen wesentlich sinnvoller als eine Beseitigung als radioaktiver Abfall, da hierdurch eine Akkumulation des Plutoniums im Endlager verhindert wird und gleichzeitig die Vorräte an Uran beachtlich gestreckt werden können. Den wichtigsten Beitrag zur Energieerzeugung kann Plutonium in Schnell-Brut-Reaktoren leisten. Die Energieausbeute des Urans ist dort bis zu 60 mal besser als in Leichtwasserreaktoren. Die Herstellung plutoniumhaltiger Brennelemente ist wegen der Radiotoxizität des Plutoniums und der somit erforderlichen Schutzmaßnahmen aufwendig. Die hierfür erforderliche Technologie ist jedoch in den letzten Jahren soweit entwickelt,

daß die Bundesrepublik Deutschland hier eine führende Stellung einnimmt. Im Hinblick auf die Übertragung in den großtechnischen Maßstab sind weitere Entwicklungsarbeiten notwendig, die gemeinsam mit der Industrie in Angriff genommen worden sind.

Das bei der Wiederaufarbeitung gewonnene unverbrauchte Uran wird in die Brennelementfertigung zurückgeführt. Hierbei handelt es sich im wesentlichen um einen industriellen Prozeß, für den eine staatliche Förderung nicht notwendig ist.

Die entwickelten Rückführungstechnologien schaffen die technologische Basis für den späteren Brennstoffkreislauf beim Einsatz von Schnellen Brütern.

Endlagerung

Die Endlagerung der radioaktiven Abfälle muß so vorgenommen werden, daß eine Gefährdung der Biosphäre über einen ausreichenden Zeitraum hinweg ausgeschlossen ist. In der Bundesrepublik Deutschland wird grundsätzlich die Verbringung der Abfälle in tiefe geologisch stabile Formationen, die keine Verbindung zur Biosphäre haben und künftig erwarten lassen, als die beste Lösung angesehen.

In der internationalen Fachwelt gelten Salzformationen aufgrund ihrer geologischen und physikalischen Eigenschaften als besonders geeignet für die Endlagerung radioaktiver Abfälle. Hierzu liegen insbesondere im norddeutschen Raum günstige geologische Verhältnisse vor.

Im Rahmen des Salzkonzeptes werden z.Z. Forschungsarbeiten an den Projekten ASSE und Gorleben durchgeführt. In dem Salzbergwerk ASSE II wird seit 1967 durch die GSF ein umfangreiches Forschungs- und Entwicklungsprogramm zur Endlagerung durchgeführt. Hierbei gilt es, in den nächsten Jahren die Endlagertechnologie in Salz weiterzuentwickeln. Es werden spezielle geologische Fragen hin-

sichtlich Stabilität eines Endlagerbergwerkes und Temperatureffekte bei der Einbringung wärmeerzeugender Abfälle untersucht werden müssen. Die Eignungsuntersuchungen am Salzstock Gorleben werden weitergeführt.

Die Bundesregierung hat nach Abschluß des Tiefbohrprogramms, gestützt auf die Bewertungen der Physikalisch-technischen Bundesanstalt und der Bundesanstalt für Geowissenschaften und Rohstoffe festgestellt, daß aufgrund der vorliegenden Berichte bisher keine Tatsachen bekannt sind, die begründete Zweifel an der bisherigen Einschätzung des Salzstockes Gorleben rechtfertigen. Dies bedeutet, daß nach heutigem Kenntnisstand über die allgemeinen geologischen Verhältnisse im nordeutschen Raum und über die bisher bekannten individuellen Eigenschaften des Salzstockes Gorleben zu erwarten ist, daß seine Eignung durch die fortschreitende Erkundung nachgewiesen werden kann. Die Bundesregierung hat stets darauf hingewiesen, daß ein endgültiges Urteil erst aufgrund der bergmännischen Erkundung abgegeben werden kann.

In Zukunft werden wir auch andere Möglichkeiten der Endlagerung radioaktiver Abfälle untersuchen. Z.B. wird das Eisenerzbergwerk KONRAD bei Salzgitter auf seine Eignung hin überprüft, dort schwachradioaktive Abfälle sowie Abfälle aus dem Abriß von Kernkraftwerken endzulagern. Das Untersuchungsprogramm, das im Jahre 1976 begonnen wurde, soll im Jahre 1982 in einem Antrag auf Planfeststellung münden. Auch andere Festgesteine werden als Endlagermedien grundsätzlich infrage kommen und auf ihre Eignung hin untersucht.

Insbesondere sollen auch Demonstrationsvorhaben zur Beseitigung tritiumhaltiger Abwässer durchgeführt werden. Untersuchungen zur Machbarkeit eines solchen Verfahrens in einer geeigneten geologischen Formation sollen im nächsten Jahr aufgenommen werden.

Zur sicherheitsmäßigen Beurteilung des integrierten Entsorgungskonzeptes werden wesentliche Beiträge durch das Projekt "Sicherheitsstudien Entsorgung (PSE)" geleistet.

Ziel ist es, Aussagen zum Risikobeitrag von Entsorgungsanlagen zu erarbeiten. Das Projekt gliedert sich in 2 Teilprojekte, "Sicherheitsanalyse der oberirdischen Einrichtungen der Entsorgung (z.B. Wiederaufarbeitungsanlage, Abfallverfestigungsanlagen)" und "Sicherheitsanalyse des geologischen Endlagers für radioaktive Abfälle (Langzeitsicherheit, Migration von Radionukliden)".

Alle Forschungs- und Entwicklungsarbeiten auf dem Gebiet der Endlagerung finden in enger internationaler Abstimmung und Zusammenarbeit statt, z.B. im Rahmen von Euratom, OECD/NEA, IAEA oder aufgrund bilateraler Verträge mit anderen Ländern (z.B. USA). Durch die enge internationale Zusammenarbeit wird sichergestellt, daß die Endlagerkonzepte in den verschiedenen Ländern gleichartigen Sicherheitsanforderungen genügen.

Darüber hinaus werden die Kenntnisse zur Endlagerung radioaktiver Abfälle arbeitsteilig in verschiedenen Endlagermedien erarbeitet werden. Auf das Programm der EG im Bereich der Abfallbehandlung und Endlagerung sollte in diesem Zusammenhang besonders hingewiesen werden.

Andere Entsorgungstechniken

Wie eingangs gesagt sind auch Arbeiten zur Entsorgung ohne Wiederaufarbeitung, d.h. zur direkten Endlagerung von abgebrannten Brennelementen, im Programm "Andere Entsorgungstechniken" aufgenommen worden.

Ziel dieses Programmes ist eine sicherheitstechnische Bewertung sowie eine sicherheitsmäßige Abwägung und Beurteilung der direk-

ten Endlagerung abgebrannter Brennelemente im Vergleich zu ihrer Wiederaufarbeitung. Im Rahmen des Forschungs- und Entwicklungsprogrammes werden zunächst schwerpunktmäßig Themenkreise "Konditionierung und Verpackung" sowie "Endlagerung" untersucht. In ersterem ist eine Konzeptauswahl zwischen dem Verpacken des gesamten Brennelements, dem Verpacken einzelner Brennstäbe, dem Verpacken nach Zerschneiden der Brennstäbe und dem Verpacken nach Ausgasung der Brennstäbe zu treffen. Daran soll sich eine Teilbearbeitung von einem oder mehreren Konzepten anschließen.

Bei der Bearbeitung des Themenkreises "Endlagerung" können Überlegungen zur Behandlung von konditioniertem hochradioaktivem Abfall zum Teil übernommen werden. Dieses gilt insbesondere für den Transport des Endlagergebundes in einem Abschirmbehälter bis zur Endlagerstelle, für die Endlagerung in Bohrlöchern als der vermutlich günstigsten Lösung und für die radiologische und chemische Wechselwirkung zwischen Endlagergebunde und Umgebung im geologischen Medium. Daneben sind aber auch Sonderfragen zu untersuchen, die u.U. eine wesentliche andere Gestaltung des Endlagerbergwerks zur Folge haben können.

Diese Arbeiten werden durch verschiedene experimentelle Einzeluntersuchungen ergänzt. Schließlich sind auch auf der Basis der gewonnenen Einzelergebnisse System- und Vergleichsuntersuchungen vorzunehmen. Soweit zur Forschungs- und Entwicklungspolitik der Bundesregierung für die nächsten Jahre.

Lassen Sie mich zum Schluß noch ein wesentliches Thema ansprechen, das im Augenblick ein großes öffentliches Interesse findet. Ich möchte noch einmal bekräftigen, daß die Bundesregierung davon ausgeht, daß die Energiewirtschaft sich stärker an den Entwicklungskosten neuer Energietechnologien beteiligt. Die Bundesregierung begrüßt, daß ihre Auffassung durch alle Fraktionen des Deutschen Bundestages, zuletzt in der Sitzung des Ausschusses für Wirtschaft des Deutschen Bundestages am 16.9.1981 und den Beschluß der Wirtschaftsministerkonferenz vom 7.9.1981 geteilt wird.

Aufgrund der Bemühungen des Forschungsministers und den sehr intensiven Verhandlungen mit der Elektrizitätswirtschaft ist vor wenigen Wochen im Bereich der Finanzierung des SNR-300 ein 1. Durchbruch erreicht worden. So haben das RWE, die Preußen-Elektra und die NWK inzwischen eine Beteiligung an dem Projekt des SNR-300 in Höhe von 547 Mio DM zugesagt, die von dem Zeitpunkt an gezahlt werden sollen, an dem der Deutsche Bundestag seinen Beschluß zur Nutzung der Brütertechnologie gefaßt hat, und alle Teilerrichtungsgenehmigungen für den SNR-300 sofort vollziehbar vorliegen. Darüber hinaus sind diese Leistungen nur unter der Bedingung zugesagt, daß die noch fehlende Hälfte an dem von der Energiewirtschaft verlangten Anteil der Finanzierung des SNR-300 von anderen Elektrizitätsversorgungsunternehmen aufgebracht wird. Über die Lösung dieser Frage, die wegen der anstehenden Haushaltsberatungen im Bundestag dringlich ist, wird z.Z. noch verhandelt. Wenn es gelingt, die erforderliche Beteiligung der Elektrizitätswirtschaft zu sichern, dann ist nicht nur die Fertigstellung des SNR-300 finanziell gesichert, vielmehr ist dann auch in unübersehbarer Weise der Ernst des industriepolitischen Engagements für die Brütertechnologie unterstrichen und eine wesentliche Voraussetzung für eine erfolgversprechende spätere Einführung dieser Technik geschaffen.

Auch im Bereich des Brennstoffkreislaufs ist eine stärkere Beteiligung der Energiewirtschaft an den Kosten der Entwicklung und Demonstration neuer Technologien erforderlich. Die deutsche Elektrizitätswirtschaft hat sich der industriellen Aufgabe bei der Schließung der Entsorgungskette mit der Gründung der DWK gestellt. Die bisherigen finanziellen Leistungen der DWK auch im Entwicklungsbereich, wie sie z.B. im Kooperationsvertrag KfK-DWK ihren Ausdruck finden, sind durchaus anerkannt. Trotzdem ist auch hier ein höheres Maß finanzieller Eigenverantwortlichkeit der Industrie erforderlich, vor allem in technischen Bereichen, die Voraussetzung für den geplanten Bau industrieller Anlagen sind und deren Weiterführung durch den Staat im Zeichen

knapper Haushaltsmittel gefährdet oder unmöglich ist. Ich hoffe, daß sich die Elektrizitätswirtschaft dieser Verantwortung bewußt ist und das Engagement aufbringt, das für die Glaubwürdigkeit der Entsorgungspolitik unerlässlich ist.

STAND UND ERGEBNISSE DER PROJEKTARBEITEN ZUR WIEDERAUFAR-
BEITUNG UND ABFALLBEHANDLUNG

R. Kroebel, Leiter des Projektes Wiederaufarbeitung und Abfallbehandlung, Kernforschungszentrum Karlsruhe

Meine Damen und Herren, sehr verehrte Gäste, liebe Mitarbeiter des Projekts,

mit dem diesjährigen Bericht wollen wir Ergebnisse und Tendenzen deutlicher als früher in den Vordergrund rücken. Wir berichten mit den anschließenden Fachvorträgen im wesentlichen über die Themen, die im Laufe der letzten zwei Jahre ihrem Ziel sehr nahe gekommen sind, stellen damit jedoch nur etwa 30% unserer Arbeiten im gemeinsamen F+E-Programm der Kooperation KfK/DWK vor. Ein KfK-Nachrichtenheft, welches im nächsten Jahr als Sonderausgabe für dieses Programm erscheinen soll, läßt dann die Darstellung von weiteren 20 Beiträgen zu.

Dieses Mal ist im Gegensatz zum letzten Statusbericht nur ein äußeres Ereignis mit Wirkungen auf das gemeinsame F+E-Programm zu vermerken, nämlich die Entscheidung der hessischen Landesregierung, einen Antrag für eine reine Wiederaufarbeitungsanlage von 350 t/a mit integrierter Abfallbehandlung, jedoch ohne Refabrikation und ohne Endlager von seiten der DWK entgegenzunehmen. Dieser Antrag wurde Anfang 1980 gestellt. Die darauffolgende Überarbeitung des F+E-Programms ergab für den KfK-Teil praktisch zunächst keine Änderung von Zielen und Inhalten, da wir nicht spezifisch auf den Durchsatz angepaßte Vorhaben betreiben, sondern i.A. unsere Entwicklungen nur bis zum WAK-Maßstab selbst bearbeiten. Die folgende Stufe im Maßstab 1:1 hat DWK selbst übernommen, nachdem die TEKO, für diese Ziele von KfK

erbaut, an WAK übergeben werden konnte. Hier ergaben sich natürlich durch die Durchsatzänderung gewisse Änderungen der Versuchsziele.

An dieser Stelle sollte man, so fließend diese Trennungslinie auch ist, die Aufgabenteilung im gemeinsamen Entwicklungsprogramm DWK/KfK kurz beleuchten. Seit ca. 4 Jahren hat DWK eine eigene Entwicklungsgruppe, die sich um den Kenntnisfluß von KfK in die DWK-Gruppe hinein kümmert, aber auch selbst experimentiert und entwickelt und weiterhin Dritte für besondere Aufgaben einschaltet. Hierbei muß zwar von Fall zu Fall pragmatisch entschieden werden, ob KfK oder DWK tätig werden. Grundtendenz ist jedoch, daß 1:1-Experimente sowie die WAK-Experimente von DWK wahrgenommen werden und KfK die mehr grundlegenden Untersuchungen durchführt, die Entwicklung bis zum halbertechnischen Maßstab betreibt sowie die sicherheitstechnischen Fragestellungen und Sicherheitssysteme bearbeitet. Ebenso gehört in den KfK-Bereich die Vorbereitung der Schnellbrüterwiederaufarbeitung durch eigenständiges F+E sowie die dazugehörige Abfall- und Abgasbehandlung, die sich voraussichtlich sogar besonders deutlich von der LWR-Linie unterscheiden dürften. Ebenso gehört die fachliche Begleitung der vom Bund geförderten Universitätsvorhaben zur Entsorgung zum Arbeitsgebiet des KfK. Arbeiten, die demnach zum jeweiligen Zeitpunkt der Überprüfung des Programms direkt für die Planung der WA-350 gebraucht werden, sind Teil des gemeinsamen Programms. Dem KfK bleibt darüber hinaus ein Freiraum für Neuentwicklungen, die in einem Beobachtungsprogramm erfaßt werden und damit der Bewertung nicht verlorengelassen können, aber nicht den terminlichen Zwängen der planungsbegleitenden Arbeiten unterliegen. Wir von KfK sind mit diesem System sehr zufrieden. Alle aufgetretenen Meinungsunterschiede konnten bisher ohne das oberste Schlichtungsorgan des KfK-DWK-Vertrages bereinigt werden. Dies ist sicher das Verdienst der Mitglieder des gemeinsamen Ausschusses und der vielen gemeinsamen Fachgremien.

Da die DWK ihre Entwicklungstätigkeit im nächsten Vortrag selbst darstellt, sollen im folgenden nur die wichtigsten Ergebnisse und Tendenzen des KfK-Projekts behandelt werden.

Dies soll in bewährter Weise anhand des Fließschemas - ausgehend vom Headend über Extraktion, Abfallbehandlung bis zur Prozeßkontrolle - erfolgen. Hier können aus Zeit- und Platzgründen nur diejenigen Arbeiten dargestellt werden, die durch äußere oder innere Umstände gerade besonders aktuell sind; eine Bewertung der Vorhaben ist damit nicht verbunden.

- Die Entwicklungsarbeiten an der Versuchsanlage PASSAT zur Aerosol- und Jodrückhaltung im System der Auflöserabgasreinigung sind hinsichtlich der Verfahrenstechnik soweit abgeschlossen, daß die Anlage von unserer Ingenieurtechnik an das Laboratorium für Aerosolphysik und Filtertechnik übergeben werden konnte. Sie enthält bereits WA-typische Filterkomponenten einschließlich der Fernhantierungstechnik zum Filterwechsel.
- Die Versuchsanlage REDUKTION hat nach manchen Schwierigkeiten endlich ihren Standort gefunden und konnte, wenn auch mit zwei Jahren Verspätung gegenüber dem ursprünglichen Zeitplan, angefahren werden. Sie ist ein notwendiges Glied für die Auflöserabgasreinigung nach dem Tieftemperatur-Rektifikationsverfahren (TTR) zwischen PASSAT und der seit Jahren betriebenen TTR-Anlage KRETA.
- KRETA-Ergebnisse ermöglichen jetzt die Auslegung einer wesentlich verbesserten Trennsäule für die Spalteredelgase. Kennzeichnend sind geringeres Spaltgasinventar und robusteres Betriebsverhalten gegenüber Störeinflüssen. Soweit der Betrieb der Einzelanlagen zum Auflöserabgas betroffen ist, hoffen wir bis zum nächsten Statusbericht 1983, unsere Ar-

beiten erfolgreich abgeschlossen zu haben. Sollte der Verbundbetrieb aller Anlagen demonstriert werden müssen, weil eine Prototypanlage fehlt, so ist dieser erst nach 1983 möglich.

- KfK hat im Verlaufe des letzten Jahres in einer Studie vorgerechnet, daß eine Kryptonabtrennung selbst für die große Gorlebener Wiederaufarbeitungsanlage (WA) weder aus Strahlenschutzgründen notwendig, noch aus Kosten-Nutzen-Gesichtspunkten vertretbar ist. Erst ein sehr steiler Anstieg der Kernkraft würde auf die Dauer solche Kr-85-Abtrennung - dann aber weltweit - gebieten. Diese könnte in späteren Anlagen verwirklicht werden.

Wenn wir unsere Arbeiten, die zu einer wesentlich verbesserten Abgasreinigung geführt haben, dennoch intensiv betrieben haben, so geschah dies vor dem Hintergrund der bestehenden Vorschläge der RSK/SSK und der in diesem Punkt unklaren Genehmigungssituation.

Im Teilprojekt Extraktion können wir folgende Ergebnisse besonders hervorheben.

Die elektrolytischen Verfahren der Reduktion und der Oxidation von Plutonium haben ihre vorzügliche Eignung auch in der WAK unter aktiven Bedingungen bewiesen. Wenngleich sie leider wegen des Auflöschschadens nur 13 Monate in Betrieb waren, wurden doch in dieser Zeit 29 Tonnen Brennstoff durchgesetzt. Wegen der guten Erfahrungen und der Vorteile, die mit der Elektrolyse anstelle von Chemikaliengaben erreichbar sind, soll nun auch im 1. Zyklus der WAK eine elektrolytische Reduktion und Oxidation eingebaut werden. KfK und WAK versuchen gemeinsam, hierzu noch die laufende Interventionsphase auszunutzen. Auch das Verfahren der Solventwäsche mit Hydrazin anstelle von

Soda steht zur Prüfung in der WAK nach der Wiederinbetriebnahme der Anlage mit obenan. Ein für uns sehr bedauerlicher Vorgang ist, daß unsere Plutoniumversuchsanlage PUTE noch immer nicht in Betrieb genommen werden konnte, weil sich hier erstmals bei einer Versuchsanlage des Projekts Objektschutzmaßnahmen zeitlich voll auswirken und damit schon eine Verzögerung von fast zwei Jahren eintrat. Die PUTE ist als Testbett für die elektrolytischen Verfahren in Pulskolonnen unbedingt notwendig, weil in der WAK nur auf der Basis von Mixer-Settlern entwickelte Geräte aktiv getestet werden können.

Eine weitere Pulskolonnenanlage MILTESSA mit Miniaturkolonnen wird derzeit fertig. Sie soll die von KfK mit Hilfe aller verfügbaren Extraktionsdaten entwickelte Berechnungsmethode zum Normalbetrieb und zum Störfallverhalten von Pulskolonnen für Uran und Plutonium verifizieren und ist daher u.a. für die Sicherheitsvorsorge ein ganz wichtiges Instrument.

Unsere Laborwiederaufarbeitungsanlage MILLI hat - wie schon seit 1971 - wieder eine Fülle wichtiger Daten erbracht und das Austesten vorgeschlagener Fließbilder für die Anlagenplanung der DWK ermöglicht. In einem besonderen Beitrag wird heute nachmittag zur Aufarbeitung von abgebrannten KNK-II-Brennstoffen und damit von ersten deutschen Brüterbrennstoffen berichtet.

Die Entwicklung einer Tritiumwaschkolonne, welche in den TEKO-Testkreislauf der WAK integriert werden soll, hat inzwischen die Durchsatzgröße der WA-350 erreicht. Wir hoffen, Ihnen beim nächsten Statusbericht auch von ihrem erfolgreichen Betrieb berichten zu können. Auch diese Entwicklung ist stark sicherheitsrelevant und in dieser Art neu für die Wiederaufarbeitung.

Wie schon zum letzten Statusbericht vorgestellt, haben wir unsere Entwicklungen zur Verglasung hochaktiver Abfälle ganz in das deutsche HAW-Technologieprogramm eingebracht und sind dessen Hauptzuarbeiter für die PAMELA-Planung für die Moler Anlage bei EUROCHEMIC. Wir liefern die Technologie der Ofenzelle einschließlich der Verfahrenstechnik sowie durch den PAMELA 1:1 Mock-up wesentliche Beiträge zur Hantierungstechnik. Diese Arbeiten binden etwa 20% der Projektmittel. Diesem Thema ist ein eigener Beitrag gewidmet.

Während für wässrige mittelaktive Abfälle genügend erprobte Behandlungsverfahren in der Zementierung und Bituminierung zur Verfügung stehen, machen uns drei besondere Abfallkategorien noch viel Arbeit. Bisher befriedigt die Konditionierung der Hülsen und Strukturteile durch Zementieren nicht ganz. Die abgetrennten unlöslichen Auflöserrückstände könnten besser konditioniert werden und verlangen für Schnellbrüterbrennstoffe geringerer Kühlzeit auch ganz neue Produktentwicklungen; Abfallströme, in denen die Toxizität durch langlebige α -Strahler bestimmt wird, verlangen auf die Dauer ebenfalls bessere Endlagerprodukte.

Lösungsmöglichkeiten bestehen in pulvertechnologisch hergestellten Produkten aus Glas bzw. Keramik sowie Metall bzw. Graphit. Diese Entwicklungen werden teils von KfK direkt durchgeführt, teils vom Bund durch Aufträge an Battelle und NUKEM gefördert. Eine vergleichende Studie zu den Hülsen und Strukturteilen wurde gemeinsam von KfK und dem französischen CEA für die Europäische Gemeinschaft erarbeitet.

Eine Entwicklung, die durch die Ablehnung des Entsorgungszentrums in Gorleben wieder sehr wichtig geworden ist, um Transport- und Endlagervolumen zu sparen, ist die Abtrennung der Aktivitätsträger aus dem MAW, d.h. die Spaltung in LAW, welcher keiner oder nur geringer Abschirmung bedarf, und in eine oder mehrere

Aktivitätsfraktionen, die volumenmäßig keine Rolle mehr spielen und dem HAW zugeschlagen werden können oder in eines der neuen Produkte eingebunden werden sollten.

Unsere Entwicklung zur Naßveraschung plutoniumhaltiger brennbarer Abfälle hat weltweit Beachtung gefunden, weil uns einige wichtige Detailverbesserungen des an sich bekannten Verfahrens gelangen. Die Weiterentwicklung des Reaktors vom Schalenkonzept zum Umlaufkonzept mit integrierter Säureverarbeitung führte zu einer signifikanten Erhöhung des spez. Durchsatzes und der Effektivität des Pu-Aufschlusses. Unsere Entwicklung führte zum Bau einer halbtechnischen Versuchsanlage bei der EUROCHEMIC in Mol, die im Frühjahr 1982 etwa eine Tonne Abfall mit ca. 8 kg Plutonium behandeln soll.

Eine sieben abgeschirmte Boxen umfassende MAW-Boxenlinie geht bei INE in die abschließende Aufbauphase und kann hoffentlich noch im nächsten Jahr in Betrieb genommen werden.

Schließlich ist noch der Abschluß der 2. Phase einer unter Mitarbeit und Leitung der KfK erstellten Studie zur behälterlosen Einlagerung von MAW/LAW in untertägige Kavernen erwähnenswert, wobei es gelang, alle technischen Schwierigkeiten eines solchen Projektes auch experimentell bis zum 100 Tonnen Maßstab inaktiv zu meistern. Damit steht der Weg offen für eine sehr sichere und gleichzeitig kostengünstige Einlagerung, wie sie in der Konzeption der Bundesregierung schon 1974 enthalten war, jedoch wegen fehlender Entwicklung nicht in die Planung für Gorleben übernommen werden konnte. Die Verwirklichung des Konzeptes erscheint uns trotz der Dislokation der kerntechnischen Anlagen immer noch erstrebenswert, weil es das Bundesendlager kostenmäßig, logistisch und vom Auffahrvolumen her stark entlasten könnte und zusätzlich Einlagerungsmöglichkeiten für "gasende" Stoffe wie Tritium, evtl. Krypton, schaffen würde, die im begehbaren Endlager nicht geduldet werden können.

Auch im letzten Teilprojekt, welches Analytik, Prozeßkontrolle, Sicherheit und sonstige Entwicklungen umfaßt, hat sich einiges Erwähnenswerte getan.

Für eine Reihe von Inline-Meßverfahren sind die F+E-Arbeiten abgeschlossen, so daß nun seitens der Industrie die Geräteherstellung übernommen werden kann. Dies gilt für γ -Absorptimetrie, Dichte-Leitfähigkeitsmessung, einfache nichtdispersive RFA, Differenzdichtemessung sowie die bei KfK entwickelte Trommelmeßzelle.

Ein aktuelles Entwicklungsziel ist jetzt die Bereitstellung von Monitoren und Meßanordnungen auf der Basis der aktiven und passiven Neutronenmessung. Der Brennelementmonitor wurde erfolgreich an sämtlichen deutschen Druckwasser-BE-Typen, sowie vereinzelt auch an Siedewasser-BE getestet. Er erlaubt die Bestimmung der Restaktivität der abgebrannten BE in Hinblick auf ihre Kritikalitätssicherheit im Auflöser, unabhängig von ihrer Vorgeschichte. Außerdem können damit Abbrand und Anfangsanreicherung ermittelt werden.

Ein Betriebsprototypgerät ist daher das nächste Ziel. Ebenfalls auf Neutronenmeßverfahren basierend, werden Kritikalitätswarngeräte, Hülsenmonitor, Auflöserrückstandsmonitor und α -Abfallfaßmonitor entwickelt.

Zur Bestimmung des Aktivitätsinventars und der Zerfallswärmeproduktion in bestrahlten Brennelementen steht nach mehrjähriger Überarbeitung des Origenkodes und seiner Datei nunmehr das Programm KORIGEN = Karlsruher ORIGEN zur Verfügung.

Ein neuartiges automatisches Probenidentifizierungsgerät soll demnächst den WAK Probetrieb aufnehmen. Die Identifizierung ist in Verbindung mit einem entsprechenden Verteilersystem Voraussetzung für eine DV-unterstützte Laborautomatisierung und La-

gerhaltung. Das DV-Informationssystem für das Betriebslabor wird z.Z. erstellt und soll ab nächstem Jahr schrittweise bei WAK eingeführt werden.

Mit dem Datenerfassungssystem PRODES konnten erste praktische Betriebserfahrungen gesammelt werden beim Einsatz im 2. Uran-Zyklus der WAK.

Im Vordergrund der Sicherheitsentwicklungen, soweit sie nicht schon bei den Verfahren erwähnt wurden, steht die Fernhantierungstechnik, die Nutzung der Fernsehtechnik sowie die Verwendung von Fernkupplungs-, Verbindungs-, Trenn- und Schweißtechnik. Schließlich steht in Kürze die dringend benötigte Analysenbox für hochaktive Analysen zur Verfügung.

Die Korrosion an Apparate­teilen der EUROCHEMIC und der WAK konnte aufgeklärt werden. Damit ist die zielgerichtete Suche nach verbessertem Material und Verarbeitung für künftige Anlagen möglich.

Weitere Vorhaben aus der Sicherheitsforschung betreffen die Untersuchung und Vermeidung bzw. Eindämmung von Bränden von Kerosin, TBP, Abfallprodukten wie Bitumen, Metallstäuben sowie die Entstehung brennbarer Gase oder detonationsfähiger Stoffe. Zur Sicherheitsforschung gehören weiterhin die positiven Ergebnisse für die Isotopenanreicherung von Tritium und, sollte Krypton-85 isoliert werden müssen, seine Einbindung in feste Matrices wie Zeolithe oder Metalle. Bei den Zeolithen konnte sich KfK sogar durch sorgfältige Erforschung des Einbindemechanismus und dadurch sehr starke Verbesserung der Produkteigenschaften gegenüber dem Stand der Technik weltweit Beachtung verschaffen.

Abschließend möchte ich feststellen, daß einige Ergebnisse von Universitätsvorhaben aus der Förderung des BMFT, die früher von uns begleitet und seit dem 1. Januar d.J. als Projektträger-

schaft im KfK geführt werden, bereits Eingang in unsere Entwicklungen gefunden haben bzw. uns z.T. eigene Untersuchungen ersparen. Die Zusammenarbeit ist äußerst nützlich für beide Seiten. Da diese Vorhaben wieder in einem eigenen Statusbericht am 28. Januar 1982 vorgestellt werden, möchten wir sie an dieser Stelle nur pauschal erwähnen.

Nun steht das Projekt der KfK nicht nur in enger Verbindung mit dem Industriepartner DWK, sondern auch die Kooperation innerhalb Deutschlands, im europäischen Raum und mit USA und Japan gewinnt steigende Bedeutung.

Wie in den Vorjahren werden die relevanten Arbeiten von KFA, HMI, GSF, PTB und NUKEM sowie Auftragsarbeiten von AMPA, Battelle, DECHEMA, Gattys, KWU und NUKEM in die Koordination der gemeinsamen Gremien von DWK und KfK miteinbezogen.

Die KFA hat seit Beginn d.J. darüber hinaus F+E-Vorhaben zur LWR-Entsorgung aufgenommen und entlastet dadurch KfK in 5 Vorhaben.

Durch Zusammenarbeit im Rahmen der Europäischen Gemeinschaften, die 9 Vorhaben des PWA durch Kostenübernahme bis zu 40% unterstützt, können wir die Erkenntnisse auch aller übrigen am Programm beteiligten Partner wie UKAEA, CEA, CNEN, CEN-Mol, RISØ, ECN, CCR-Ispra und einiger Firmen der Partnerländer für uns nutzbar machen.

Direkte Vereinbarungen haben wir mit der EUROCHEMIC in Mol.

Der Vertrag des BMFT mit dem US-DOE auf dem Gebiet radioaktiver Abfälle erlaubt seit zwei Jahren wieder den intensiven Austausch von Informationen und längere Besuche.

Mit Japan besteht ein Kooperationsvertrag auf dem Gebiet der Glasschmelzertechnologie. Mit Indien werden ebenfalls auf dem Gebiet der Verglasung gemeinsame Experimente vorbereitet.

Neben den Ergebnissen unserer Arbeiten der letzten zwei Jahre müssen aber auch die Dinge genannt werden, die für eine erfolgreiche Bearbeitung der vor uns liegenden Aufgaben noch nötig sind.

Uns fehlt nach wie vor dringend Heißzellenkapazität für Chemiearbeiten. Die Vorplanung für eine HZ-Anlage wurde verzögert, soll aber jetzt verstärkt in Angriff genommen werden.

Die Praxis des geltenden Genehmigungsverfahrens sieht in der heißen Vorprüfung von Neuentwicklungen eine wichtige Voraussetzung, weshalb eine solche Vielzweckanlage leider unersetzbar ist.

Unsere MILLI-Anlage wird nach über 10 Jahren erfolgreichen Betriebes in den nächsten Jahren überholt werden müssen.

Da MILLI auch die bisher einzige aktive Anlage für unsere Arbeiten zur Brüterbrennstoff-WA ist, müssen wir auch hier Überlegungen anstellen, wie die so wichtige Brüterwiederaufarbeitung weiter entwickelt werden soll. Ohne eigenes prototypisches Know-how auf diesem Gebiet ist an eine industrielle Anlage auch nach dem Jahre 2000 nicht zu denken.

Zusammengefaßt läßt sich sagen, daß die KfK-Arbeiten zur LWR-Entsorgung teils bereits von der Industrie (WAK) übernommen wurden oder direkt in die Anlagenplanung einfließen, teils bald dieses Stadium erreichen. Die Schwerpunkte verlagern sich daher mehr auf weiter verbesserte Verfahren, Sicherheitsentwicklungen und Sicherheitsnachweise, verbesserte Rückhaltemethoden für Schadstoffe, verbesserte Produkte für Abfälle und endlager-

gerechtes Abfallmanagement. Seit einigen Jahren gewinnen die Arbeiten zum Brüterzyklus mehr an Bedeutung, allerdings stark gebremst durch das Fehlen der heißen Chemiezellen und einer Möglichkeit zur Teilhabe an oder zum Bau einer größeren WA-Einheit, speziell für Schnellbrüter-Brennelemente.

In der Hoffnung, daß nicht nur die erfreulichen Ergebnisse vermerkt werden, sondern auch die Mahnungen zu Entscheidungen, dort wo uns der Schuh drückt, dankt die Projektleitung allen Mitarbeitern für die geleistete Arbeit, dem Vorstand und WTR für die fürsorgliche und kooperative Zusammenarbeit bei der Entscheidungsfindung und Ihnen allen im Saale für das geduldige Zuhören.

ARBEITSSCHWERPUNKTE UND ERGEBNISSE
DER DWK IM GEMEINSAMEN ENTWICKLUNGS-
PROGRAMM

K.D. Kuhn

A. Sahm

Sehr geehrte Damen und Herren,

bevor ich auf die im Titel meiner Darstellung liegenden Fragestellungen eingehe, möchte ich kurz erläutern, was Entwicklung für uns bedeutet und wie wir sie sehen.

Nach dem Verursacherprinzip haben die Kernkraftwerke betreibenden Elektrizitätsversorgungsunternehmen die Verantwortung für die Entsorgung der abgebrannten Brennelemente. Die von den EVU's gegründete DWK hat damit die Entsorgung der deutschen Kernkraftwerke zur Aufgabe. In Übereinstimmung mit den von der Bundesregierung am 29. Februar 1980 herausgegebenen Grundsätzen zur Entsorgungsvorsorge für Kernkraftwerke gehören zu dieser Aufgabe satzungsgemäß Planung, Errichtung und Betrieb von Entsorgungsanlagen mit Ausnahme der Endlagerung radioaktiver Abfälle, für die der Staat zuständig ist.

Ziel der DWK ist es, im Verbund mit ihren Tochterfirmen eine Wiederaufarbeitungsanlage vernünftiger Größe in Deutschland zu errichten. Für Gorleben war - wie Ihnen bekannt - eine Kapazität von 1400 t/a geplant; zur Zeit beschränken sich die Planungen auf eine Anlage mit einer Kapazität von nur 350 t. Warum ist für eine so kleine Anlage noch Entwicklung notwendig?

Entwicklung heißt für uns in 1. Linie Umsetzung von F+E-Ergebnissen in ingenieurtechnische Planungsunterlagen oder anders ausgedrückt, die Bearbeitung von Fragestellungen, deren Lösung der Ingenieur oder Planer nicht in der Schublade liegen hat.

Zwar sind wir nach wie vor der Überzeugung, daß für alle Teilschritte der nuklearen Entsorgung erprobte Verfahren und Komponenten zur Verfügung stehen oder rechtzeitig be-

reitgestellt werden können. Jedoch ergeben sich entwick-
lungsträchtige Fragestellungen - auch für eine WA 350 -
aus dem Wunsch

- Auslegungsdaten abzusichern
- Komponenten und Verfahren zu optimieren
oder
- durch Alternativen sicherheitstechnische
und wirtschaftliche Vorteile zu erzielen.

Während der Schwerpunkt der vergangenen und des größten
Teils der laufenden Arbeiten auf die beiden ersten Ziele
ausgerichtet war, spielt das zuletzt genannte Ziel zu-
künftig eine große Rolle. Nach der Gorleben-Entscheidung
der niedersächsischen Landesregierung ist klar geworden,
daß in Deutschland eine Wiederaufarbeitungsanlage nicht
mehr in den 80-er Jahren in Betrieb gehen kann, d.h. die
zu planende Anlage muß den technischen Anforderungen der
90-er Jahre genügen. Damit müssen sich zukünftige Ent-
wicklungen immer stärker darauf ausrichten, Verfahrens-
weisen und Komponenten bereitzustellen und zu demonstrieren,
mit denen es möglich ist

- die notwendigen Verfahrensschritte zu ver-
einfachen oder zu minimieren
- die Komponenten zahlenmäßig und dimensions-
mäßig zu verkleinern, um so Gebäudevolumen
einzusparen
- die Menge des Abfalls und der konditionierten
Abfallprodukte zu minimieren sowie die Zahl
der Konditionierungsverfahren für die ver-
schiedenen Abfallströme einzuschränken
und als eine sehr wesentliche Aufgabe
- die Strahlenbelastung des Betriebspersonals
herabzusetzen.

Die im gemeinsamen F+E-Programm von KfK und DWK zusammengefaßten Entwicklungsvorhaben sind auf diese Projektziele der DWK ausgerichtet.

Ich möchte Ihnen nun einen Überblick geben über die Vorhaben, die von DWK und von ihren Tochterunternehmen selbst bearbeitet oder direkt betreut werden. Diese Arbeiten bedeuten in den meisten Fällen den letzten Schritt in der Entwicklung vor der Realisierung in einer der Entsorgung dienenden Anlage und bauen fast immer auf den Erfahrungen und dem Know-how des KfK oder der WAK auf. Wie im nuklearen Brennstoffkreislauf vorgezeichnet, orientiere ich mich im folgenden an den die DWK betreffenden, dem Reaktorbetrieb nachgeordneten Schritten der Brennstoffbehandlung.

Zur Lösung der Entwicklungsaufgaben bedient sich DWK der in Abb. 1 gezeigten Instrumente, nämlich der Kooperation mit relevanten Firmen, der Anlagen TEKO und WAK sowie der Technikumsgruppen in Karlsruhe und in Mol.

1. Untersuchungen zur Brennelementlagerung (Abb.2)

Die von DWK und STEAG unter Einbeziehung der GNS für die trockene Zwischenlagerung von BE entwickelten mobilen Behälter aus Sphäroguß sind entsprechend den für den Transport von radioaktiven Stoffen gültigen Richtlinien der IAEA allen notwendigen Qualitätsprüfungen unterworfen worden. Für die Langzeitlagerung wurden eine Reihe weiterer Nachweise - insbesondere zur Langzeitbeständigkeit der Metalldichtungen des Deckelsystems und zur sicheren Wärmeabfuhr - geführt.

Obwohl demnach eine Freisetzung von Radioaktivität durch das Zwei-Barrieren-System des Behälters auch bei Hüllrohrdefekten ausgeschlossen ist, werden dennoch Demonstrationsversuche zur Langzeit-Trockenlagerfähigkeit

durchgeführt.

Basierend auf umfangreichen Modellrechnungen und deren experimenteller Verifizierung in Einzelstabversuchen ist 400°C als maximale BE-Trockenlagertemperatur gesichert. Ein Verlust der BE-Integrität und damit Einschränkung der Hantierbarkeit für die nachfolgende Wiederaufarbeitung ist ausgeschlossen.

Ergebnisse aus Demonstrationen der Trockenlagerung in Beton-Behältern, in oberflächennahen bzw. unterirdischen Senkschächten sowie in Blocklagern als prototypische Lagerkonfiguration liegen in den USA bereits vor. Die dort durchgeführten Entwicklungsarbeiten stellen auch nach Ansicht der amerikanischen Genehmigungsbehörde eine für die industrielle Anwendung ausreichende Erfahrungsbasis dar.

Zur Erweiterung dieses Kenntnisstandes insbesondere unter dem Aspekt einer Verbesserung der Statistik wurden sowohl ein Heiß-Zellen-Teststand für insgesamt 25 Brennstäbe als auch eine BE-Trocken-Meßeinrichtung in einem Reaktor-Abklingbecken installiert und in Betrieb genommen.

In keinem der Teststände wurden bislang ungewöhnliche Aktivitätsfreisetzungen oder Hüllrohr-Anomalien beobachtet. Alle bisherigen Ergebnisse bestätigen die für die trockene Lagerung in Behältern gewählten Lagerbedingungen.

2. Entwicklungsarbeiten zur Wiederaufarbeitung

Entwicklungsarbeiten zur Wiederaufarbeitung laufen in der von KfK errichteten und seit 1979 von WAK betriebenen Technikumshalle zur Komponentenerprobung (TEKO) und in der WAK selbst.

2.1 Head-end

Zum Zerkleinern der Brennelemente wird eine Bündelschere eingesetzt, die bei der Fa. Thyssen-Henschel in Fertigung ist und deren Detailplanung abgeschlossen wurde. Mit Lieferung und Inbetriebnahme der Schere in einem Teststand der TEKO wird bis Ende 1982 gerechnet.

Für die Vorversuche zur Auslegung der Bündelschere galt es, ein Simulat für bestrahlten Brennstoff zu finden. Zahlreiche Versuche, auch an bestrahlten Stäben in den Heißen Zellen des KfK, führten zur Wahl eines Sinter Eisens und eines Porzellans, die dem Brennstoff vergleichbare Eigenschaften zeigen.

Mit einer Schrottschere sind an mit diesen Simulaten gefüllten Brennelementattrappen Schneidversuche durchgeführt worden; die Ergebnisse liegen der Auslegung der Bündelschere zugrunde.

Bei den Versuchen stellte sich heraus, daß zwischen unbestrahltem UO_2 und bestrahltem Brennstoff bezüglich der Schnittkräfte kein Unterschied festzustellen ist. Es werden Schnittkräfte von ca. 160 t benötigt.

Das Prinzip der Bündelschere basiert auf den Erfahrungen mit der Stabschere der WAK. Das Messer wird durch je einen Zylinder für Vor- und Rückhub bewegt.

In der Erprobung und Optimierung werden neben dem eigentlichen Zuführen und Schneiden der Brennelemente vor allem die Gesichtspunkte Fernbedienbarkeit, Wartung, Austausch defekter Teile und Dekontamination untersucht.

Beim nächsten Schritt der Wiederaufarbeitung, der Auflösung, ist ein wesentlicher Gesichtspunkt für die Auslegung eines Auflösers hohes Durchsatzes die Kritikalitätssicherheit. Eine der Möglichkeiten zur Erreichung dieses Zieles ist die Ausbildung des Auflöserröhres als kritisch sicheren Scheibenbehälter. Versuche, die an einem solchen Slab-Auflöser im WAK-Maßstab durch unsere Technikumsgruppe ausgeführt wurden, übermittelten ein vertieftes Wissen über die hydraulischen Verhältnisse in einem Auflöser. Sie führten aber auch zu der Erkenntnis, daß ein Slab-förmiges Auflöserröhr von der Statik her ungünstig ist und erhebliche Fertigungsprobleme aufweist.

Zur Abtrennung von Feststoffen aus der Auflöserröslung ist eine Klärzentrifuge vorgesehen. Bei der Erprobung in der TEKO sind neben verfahrenmäßigen Aspekten wie Waschen und Austragen der Feststoffe sowie Abscheidegrad ebenso wie bei der Bündelschere Fernbedienung und Wartung Gegenstand der Untersuchungen.

Als Zentrifugentyp wurde eine starrgelagerte Glockenzentrifuge ausgewählt. Sie befindet sich bei der Firma Krauss-Maffei in Fertigung und wird im Dezember 1981 ausgeliefert.

Der Klärzentrifugenteststand wurde im Oktober 1980 in Betrieb genommen. Seitdem wurden an diesem Teststand mit SiO_2 -Suspensionen als Simulat Fördercharakteristiken von Pumpen und Airlifts sowie Pulsatoreigenschaften mit Erfolg untersucht.

2.2 Extraktion

Der PUREX-Prozeß wird bekanntlich in mehreren Extraktionszyklen durchgeführt. Als kompliziertester dieser Zyklen ist der 1. Koextraktionszyklus in der TEKO als UEZ aufgebaut, wo er mit abgereichertem Uran erprobt wird.

Herzstück dieser Anlage sind die prototypischen gepulsten Extraktionskolonnen mit Düsenböden, die einen Durchsatz von 4 t Uran/Tag erlauben.

Zur Vorbereitung des UEZ-Betriebes sind gemeinsam von KfK und WAK folgende Arbeitsschwerpunkte bearbeitet worden:

1. Stoffaustausch, Durchsatz, spezifische Oberfläche der dispersen Phase und Rückvermischung in gepulsten Kolonnen mit Sieb- oder Düsenböden. Hierzu sei auf den Vortrag der Herren Klonek, Evers und Zimmermann bei diesem Statusbericht verwiesen.
2. Rückhaltung des Tritiums im 1. Zyklus. Die Ergebnisse, die zur Auslegung eines relevanten Mischabsetzers führten, sind im Vortrag der Herren Evers, Bauer, Eiben, Klonek und Schieferdecker ebenfalls bei diesem Statusbericht dargestellt.
3. Test von Hafniumeinbauten, die zur heterogenen Neutronenvergiftung im 1. Zyklus vorgesehen sind.
4. In-line-Instrumentierung. Zum Einbau in den UEZ gelangen fünf Geräte, die nach drei Meßprinzipien arbeiten:
Diese sind Dichte-Leitfähigkeitsmessung, γ -Absorption und nichtdispersive Röntgenfluoreszenzanalyse.

Der UEZ wurde nach Demonstration des Verbundbetriebes in einem 48 h-Lauf am 9.10.1981 von DWK übernommen, so daß nach erfolgten Nachbesserungsarbeiten ab Dezember 1982 termingerecht der Uranbetrieb aufgenommen werden kann.

Zur Verminderung des Volumens an organischen Abfalllösungen ist auf Basis von Entwicklungsarbeiten im Labor ein Konzept für die Reinigung und Rezyklierung des organischen Abfalls entwickelt worden.

Diese Kerosinaufbereitung im UEZ - Kurzname KAUZ - besteht aus einer Vorreinigung durch Extraktion in einer Pulskolonne zur Erniedrigung der Uranverluste und einer schonenden Destillation durch Dünnschichtverdampfung zur Trennung von TBP und Kerosin. Die Anlagen befinden sich zur Zeit in der Aufbau- und Fertigungsphase und werden bis Mitte 1982 in Betrieb gehen, so daß ich Ihnen nur das Modell zeigen kann.

Zu den hier vorgestellten Testständen der TEKO sei abschließend bemerkt, daß die verfahrenstechnischen Arbeiten für die Wiederaufarbeitungsanlage im Vordergrund stehen, daß aber gleichzeitig an diesen Anlagen im technisch repräsentativen Maßstab gezielte Untersuchungen durchgeführt werden, die zur Verringerung der Strahlenexposition des Betriebspersonals und zur Minimierung der Abfälle und der Emissionen beitragen werden.

Wenden wir uns nun der WAK zu. Die WAK ist die einzige Anlage in Deutschland, in der neue Entwicklungen unter realen Betriebsbedingungen erprobt werden können. Im Bereich der Extraktion ermöglicht die Einführung von Elektroredoxverfahren anstelle der bisher üblichen Redox-

chemikalien eine Senkung des Prozeß- und Abfallvolumens sowie der Plutoniumverluste.

Die im Institut für Heiße Chemie bereits Ende der sechziger Jahre begonnene Verfahrens- und Apparateentwicklung führte nach der erfolgreichen Demonstration zum Einbau eines Elektrolyse-Mischabsetzers (2B-EMMA) und einer Elektrooxidationszelle (ROXI) in den zweiten Plutonium-Zyklus der WAK. Diese Apparate sind bisher 13 Monate lang erfolgreich betrieben worden.

Die gegenüber dem chemischen Verfahren erwarteten Vorteile, nämlich hohe Pu-Dekofaktoren des Raffinats und große Stabilität gegen Pu-Durchbruch ins Raffinat bei hoher Pu-Produkt-Konzentration wurden eindrucksvoll realisiert. Bei einer Pu-Produktkonzentration von ca. 30 g/l, konnten die Verluste im Raffinat bis auf 1 mg Pu/l gesenkt werden.

Aufgrund dieser sehr guten Ergebnisse soll ebenfalls in enger Zusammenarbeit mit KfK im 1. Extraktionszyklus ein elektrolytischer Mischabsetzer als BX-Batterie eingebaut werden. Die Konstruktion der Apparate, 1B-EMMA und ROXI, wurde im September 1981 abgeschlossen.

Das Genehmigungsverfahren ist angelaufen. Nach dem aktuellen Terminplan ist unter Einbeziehung der Fertigungs- und Montagezeiten jedoch nicht vor Ende 1982 mit dem Abschluß des Projekts zu rechnen.

2.3 Instrumentierung und Sicherheit

Ein besonderes Gewicht liegt auf Entwicklungsarbeiten, die der Sicherheit der Wiederaufarbeitungsanlage dienen. Auch hierzu sind Untersuchungen unter realen Anlagenbedingungen in der WAK notwendig.

Ein solcher Arbeitsschwerpunkt ist die Entwicklung und heiße Erprobung von Monitoren, die auf Neutronenmeßtechnik beruhen. Am weitesten fortgeschritten ist die Erprobung eines Brennelementmonitors, der in das Kritikalitätssicherheitskonzept für die geplante Wiederaufarbeitungsanlage einbezogen ist. Der Brennelementmonitor mißt zerstörungsfrei den Restspaltstoffgehalt des aufzuarbeitenden Brennelements vor der Zerlegung und Auflösung.

Die Entwicklung dieses Monitors wurde im Institut für Neutronenphysik und Reaktortechnik des KfK begonnen. Ein Mustergerät wurde 1979/1980 in der WAK mit Erfolg erprobt. In weiteren Meßkampagnen wurde dieses Gerät eingesetzt im KKW Würgassen und im Lagerbecken der französischen WAA in La Hague.

Über Meßergebnisse und die weiteren Arbeiten sei auf den Vortrag der Herren Eyrich, Schulze, Würz und Becker bei diesem Statusbericht verwiesen.

Ein wesentlicher Beitrag zur Klärung des Problems der Wasserstoffbildung durch ionisierende Strahlung in den Prozeßlösungen und der damit verbundenen Gefahr von Knallgasexplosionen wurde durch Messungen in der WAK geleistet.

Hier soll Anschluß an die Ausführungen von Herrn Dr. Specht beim 3. PWA-Statusbericht vom 8.11.1979 (KfK 2940, S. 196 ff) genommen werden.

Abbildung 3 zeigt, daß der G-Wert von 0,44 Molekülen $H_2/100$ eV für reines Wasser nicht auf HAW-Lösungen angewandt werden kann. Messungen an salpetersauren Spaltproduktlösungen und Simulaten bestätigen die Erwartung, daß in solchen Lösungen der Freisetzungswert deutlich niedriger liegt. Die Untersuchungen im Labor lieferten bei Umgebungstemperatur spezifische Freisetzungswerte in der Größenordnung von 10^{-3} Molekülen $H_2/100$ eV für HNO_3 -Konzentrationen von 4-5 m. Kochende bzw. bewegte Lösungen zeigten höhere Werte von $2 \cdot 10^{-2}$ Molekülen $H_2/100$ eV.

Die Messungen an technischen Systemen (HAWC-Lagertanks) ergaben dagegen stets kleinere Freisetzungswerte (Abb.4). Diese Tatsache kann dadurch erklärt werden, daß radio-lytisch gebildeter Wasserstoff nur aus der obersten Schicht der im Behälter vorliegenden Lösung in den darüber liegenden Gasraum freigesetzt wird. Der in tieferen Schichten gebildete Wasserstoff wird durch chemische oder radiochemische Reaktionen einem Rekombinationsprozeß unterworfen.

Unter Einschluß eines Gutachtens von Prof. Heusinger, TU München, kommt der TÜV Baden in einer abschließenden Stellungnahme unter Einbeziehung aller vorliegenden Untersuchungen von HAW-Lösungen zu der Aussage, daß eine maximale Freisetzungsrate von $10 \text{ cm}^3 H_2$ pro Mrad absorbiertes Dosis und pro m^2 Freisetzungsoberfläche anzunehmen ist. Dabei sind die Gleichgewichtseinstellung und die geometrischen Faktoren, d.h. Verhältnis Oberfläche zu Volumen, berücksichtigt. Eine Übertragbarkeit auf andere Systeme ist unter Beibe-

haltung dieser ausschlaggebenden Größen gerechtfertigt. Andere Parameter - z.B. die Temperatur, solange die Lösung nicht siedet - spielen nur eine untergeordnete Rolle.

Der RSK-Unterausschuß Wiederaufarbeitung hat sich dieser Auffassung angeschlossen und hält weitere FE-Arbeiten nicht für erforderlich.

Abschließend sei noch auf die Messungen der H_2 -Entwicklung im HAWC-Kühlwasser der WAK hingewiesen. Die gemessene H_2 -Konzentration in der Kühlwasser-Entlüftung führt zu einem Freisetzungswert von 0,2 Molekülen $H_2/100$ eV, der erwartungsgemäß im Bereich des Laborwertes für reines Wasser liegt.

Für die α -Radiolyse in Pu-Nitrat-Lösungen zeigt sich, daß kein Unterschied besteht zwischen den Messungen im Labor und denjenigen in technischen Systemen. Die bei der β, γ -Radiolyse ermittelten Einflußfaktoren für große Tanks spielen hier offensichtlich keine Rolle.

3. Abfall

Als Referenzverfahren zur Verfestigung flüssiger hochaktiver Abfälle wurde für Deutschland das französische AVM-Verfahren ausgewählt. Diese Wahl erfolgte aufgrund des Entwicklungsstandes dieses Verfahrens, das seit nunmehr 3 Jahren in Marcoule erfolgreich demonstriert wird.

Parallel dazu ist in Deutschland ein eigenes Verfahren, das PAMELA-Verfahren, entwickelt worden. Für die Demonstration dieses Verfahrens baut DWK in Mol die PAMELA-Anlage, die Ende 1985 heiß in Betrieb gehen wird. Zur Vorbereitung des Baus dieser Anlage und zur

baubegleitenden Entwicklung läuft das deutsche HAW-Technologieprogramm (s. dazu den Vortrag von W.Heimerl bei diesem Statusbericht).

Einer der Partner dieses Programms ist DWK selbst durch ihre Technikumsgruppe in Mol. Hier werden wesentliche Arbeiten zur Entwicklung eines keramischen Schmelzofens und - in Zusammenarbeit mit Eurochemic - zur Herstellung von Glasperlen und deren Einbetten in Blei durchgeführt.

Für den keramischen Schmelzofen wählten wir ein 2-Kammer-System mit Einschmelzkammer und Läuterkammer. Die Beheizung der Schmelze erfolgt über SnO_2 -Elektroden.

Zur Glasabfüllung benutzt der Ofen einen im KfK entwickelten Bodenauslauf und einen von uns entwickelten Überlauf, der fernbedient wechselbar ist.

Parallel dazu wurde von uns ein neues System zum Befüllen von Glasbehältern entwickelt, die "Absaugmethode". Hierdurch wird die Installation eines Bodenauslaufs überflüssig.

Der Abfüllbehälter ist dabei bereits vor der Befüllung mit Boden und Deckel verschlossen. Am Boden ist ein Saugrohr angebracht. Der Behälter wird evakuiert, wonach das Saugrohr mit einem Glasschmelzverschluß versehen wird.

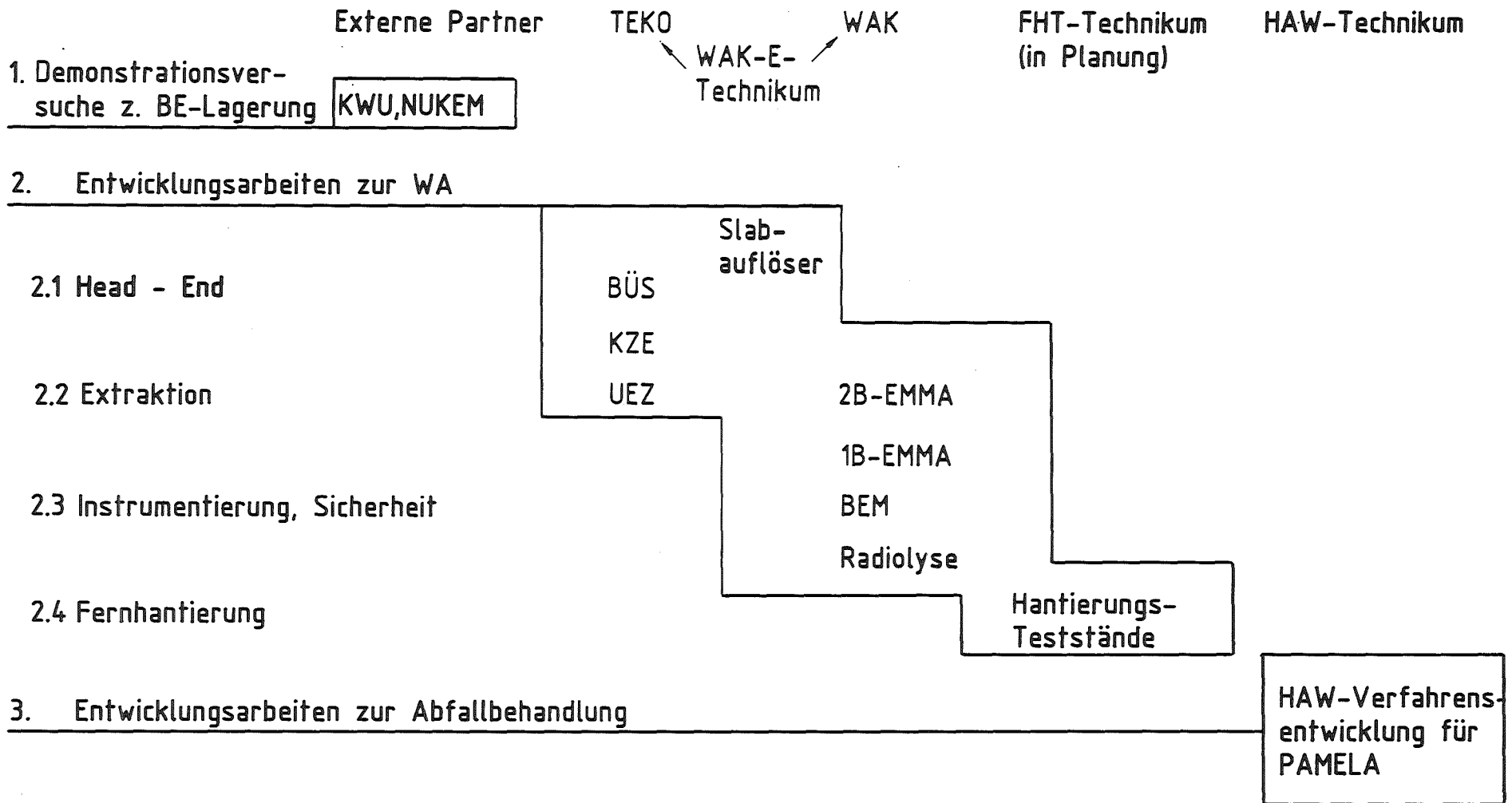
Das Saugrohr wird dann in die Glasschmelze eingetaucht. Bei der dort herrschenden Temperatur von 1150°C schmilzt der Verschluß auf, und der Behälter saugt sich voll Glasschmelze. Ein Überfüllen des Behälters ist unmöglich. Der Behälter wird anschließend angehoben, so daß das Saugrohr abkühlt und das Glas im Rohr einfriert. Danach wird der Behälter auf das Saugrohr abgesenkt, wo-

bei der Bruch einer Sollbruchstelle dazu führt, daß das Saugrohr teleskopartig in das noch flüssige Glas eingeschoben wird.

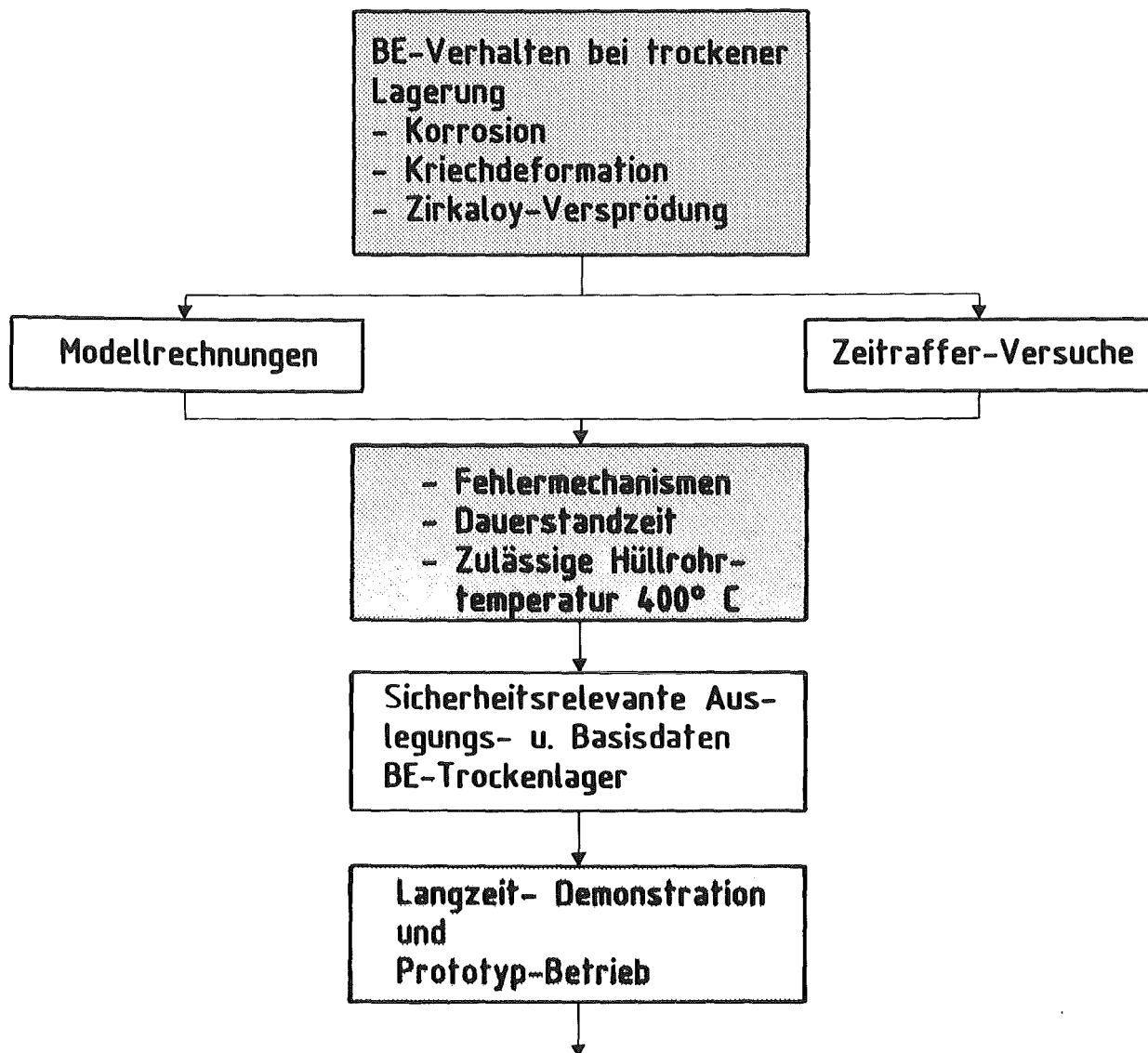
4. Zusammenfassung

Meine Damen und Herren, ich habe versucht, Ihnen einen Überblick über die laufenden Entwicklungsarbeiten der DWK im Rahmen des gemeinsamen Programms zu geben.

Mein Ziel war, Ihnen anhand dieser Beispiele einen Eindruck der erheblichen Entwicklungsanstrengungen der DWK zu geben, deren finanzieller Aufwand ein Zeichen dafür ist, daß wir gewillt sind, alles daranzusetzen, um den Brennstoffkreislauf in Deutschland durch den Bau von Wiederaufarbeitungsanlagen zu schließen.



DWK	Instrumente für Entwicklungsarbeiten	Abb. 1
		SE 10/81



	Lagerkonfiguration	Betrieb seit	
1.	Beton-Behälter	1978	USA
2.	Senkschacht	1979	USA
3.	Blocklager	(1978)	USA
4.	Heiß-Zellen-Teststand (ISPRA)	1981	DWK/NUKEM
5.	Reaktor-Trocken-Meßeinrichtung	1981	DWK/KWU
6.	Sphäroguß-Behälter	(1981)	DWK

DWK	Langzeitdemonstration zur Trockenlagerung von LWR- Brennelementen	Abb. 2
		SE 10/81

Untersuchung bei	Medium	Parameter HNO ₃	Dosisleistung	Strahlungsquelle	G-Wert bzw. Freisetzung	Folgerungen
	H ₂ O	-		Co - 60	440 x 10 ⁻³	
TU München	HNO ₃	5m	6,4W/l	Co - 60	27 x 10 ⁻³	G (H ₂) stark von (NO ₃ ⁻) abhängig
Harwell	Simul. HAW	>0,4m	?	?	<3 x 10 ⁻³	
TU München	Simul. HAW	5,3m	6,4W/l	Co - 60	1,9 x 10 ⁻³	
KWU / KfK	Brennstoff- lösung HAF	4m	1,95W/l	Gelöste Spaltproduk- te u. Aktiniden	1,4 x 10 ⁻³	G (H ₂) in ruhenden Prozeßlösungen <10 ⁻² gerührt o. siedend <2 x 10 ⁻²
KWU / KfK	Wastelösung HAW, ruhend	3m	0,47W/l	Gelöste Spalt- produkte	7,8 x 10 ⁻³	
KWU / KfK	Wastelösung HAW, gerührt	3m	0,47W/l	Gelöste Spalt- produkte	17 x 10 ⁻³	
KWU / KfK	Wastelösung HAW, siedend	3m	0,47W/l	Gelöste Spalt- produkte	18 x 10 ⁻³	
DWK	β/γ -Radiolyse von salpetersäurehaltigen Lösungen -Laborversuche-					Abb. 3
						SE 10/81

Untersuchung bei	Medium	Parameter (HNO ₃) Dosisleistung		Strahlungsquelle	G-Wert bzw. Freisetzung	Folgerungen
BNFL	HAW-Tank	1-2m	?	Gelöste Spaltprodukte	$< 3 \times 10^{-3}$	Freisetzung laut TÜV 10 cm ³ H ₂ /Mrad × m ² Freisetzungsoberfläche
WAK	HAW-Tank	5m	1,45W/l	Gelöste Spaltprodukte	$< 1,2 \times 10^{-3}$	
WAK	HAW-Tank	5m	1,45W/l	Gelöste Spaltprodukte	Gleichgewicht, G-Wert nicht sinnvoll	
WAK	HAW-Tank	5m	1,65W/l	Gelöste Spaltprodukte		
WAK	HAWC-Kühlwasser	—	0,09W/l	HAWC-Lösung	0,2	Für Kühlwasser ist vom G-Wert des Wassers auszugehen
WAK	Pu-Nitrat	5,0	1,32W/l	Pu-Isotope	0,04	Labor- und Betriebsergebnisse stimmen überein
DWK	β/γ-Radiolyse v. HAWC-Lösungen -Messungen an HAW-Tanks-					Abb. 4
	α-Radiolyse v. Pu-Nitrat-Lösungen -Messungen an Pu-Behälter-					SE 10/81

Stand der Entwicklungsarbeiten zur Wiederaufarbeitung fortschrittlicher Brennelemente

K. Ebert, Leiter des Instituts für Heiße Chemie, Kernforschungszentrum Karlsruhe

Die Entwicklung der Ölpreise erzwingt weltweit eine Änderung in der Energieerzeugungsstruktur. Bei steigendem Weltenergiebedarf müssen Wege gefunden und begangen werden, die das Ziel haben, den derzeitigen Hauptenergieträger Öl möglichst weitgehend zu ersetzen.

Wir wissen, daß Kernenergie ein Weg dahin ist. Kernenergie kann nur dann diese Aufgabe zur Energieversorgung längerfristig leisten, wenn die Kernbrennstoffe voll genutzt werden, d.h. wenn der Brennstoff im Kreislauf gefahren wird. Die nach heutigen Maßstäben abbauwürdigen Natururanreserven werden von den Experten übereinstimmend auf etwa 5 Mio Tonnen geschätzt. Ohne Rezyklierung von Uran und Plutonium würde schon im Jahre 2000 mehr als ein Drittel davon - berücksichtigt man eine moderate Zunahme von LWR-Reaktoren - verbraucht sein.

Die Tabelle in Abb.1 zeigt, wie unterschiedlich der Natururanbedarf für verschiedene Reaktortypen ist. Gegenüber der sogenannten "Alter-

SENKUNG DES URANBEDARFS MIT U-Pu-BRENNSTOFFEN

	1 ABBRAND Mwd/t	2 Pu-GEHALT IN % im entladenen Brennstoff	3 URANBEDARF t U _{nat} pro GWe	4 KÜHLZEIT, a vor Wiederauf.
LWR (OTTO) ohne Rezyklierung	-35 000	-1	- 200	∞
LWR U u. Pu Rezyklierung	-35 000	-3	-130	mehrere ↓
FDWR	-60 000	-7	-25	↓
SBR	-80 000 ≤50 000*	11-(20)*	-1,5	-1

* core + axial blanket

Abb. 1

nativen Entsorgung", kurz OTTO genannt, kann der Natururanbedarf des LWR bei thermischer Rezyklierung auf etwa 65%, des Fortschrittlichen Druckwasser-Reaktors auf etwa 13% und des Schnellen Brütters auf unter 1% abgesenkt werden. Dabei steigt in gleicher Reihenfolge der Plutoniumgehalt und der Abbrand (s. Spalte 1 u. 2). In Spalte 4 ist die abnehmende Tendenz für die Kühlzeit des Brennstoffes angegeben. Während heute viele Jahre vergehen, bis der Brennstoff wieder aufgearbeitet wird, muß für die fortschrittlichen Reaktortypen auch die Kühlzeit des Brennstoffes verkürzt werden, um den Uranbedarf zu senken. Das Minimum der Kühlzeit wird u.a. durch flüchtige Spaltprodukte begrenzt. Als realistische Größe für die minimale Kühlzeit wird heute etwa ein halbes Jahr angenommen.

Wann ein Zwang zum Einsatz der fortschrittlichen Reaktorsysteme eintritt, kann niemand genau voraussagen. Durch die beengte Energieversorgungslage ist es jedoch schon heute, insbesondere für Länder, die nicht über eigene Uranvorkommen verfügen, ein Gebot der Verantwortung, sich darauf einzustellen und den SBR mit seinem Brennstoffkreislauf zügig zu entwickeln.

Es interessiert uns heute, welche Entwicklungsarbeiten auf dem Gebiet der Wiederaufarbeitung noch zu leisten sind, wenn man davon ausgeht, daß der für LWR-Brennstoff bewährte PUREX-Prozeß auch für fortschrittliche Brennstoffe zum Einsatz kommt. Das Seminar in Obertraun im Februar 1981 über "Grundlagen der Wiederaufarbeitung von Brüter Brennstoffen" hat sich mit diesem Thema ausführlich beschäftigt; im Folgenden verwende ich eine Reihe von Ergebnissen, die dort vorgetragen wurden.

Veränderungen gegenüber der LWR-Wiederaufarbeitung sind im wesentlichen durch Unterschiede im Abbrand, in der Kühlzeit sowie im Spaltstoffgehalt bestimmt. Übergeordnete Entwicklungsziele dabei sind Erhöhung der Sicherheit und Wirtschaftlichkeit, verbesserter Arbeits- und Umgebungsschutz, Erhöhung der Anlagenverfügbarkeit, d.h. auch Vereinfachung der Verfahrenstechnik und Senkung des Wastevolumens.

Die spezifische Wiederaufarbeitungskapazität für SBR-Brennstoff unterscheidet sich nur wenig vom LWR-Brennstoff, sie ist für Core und Blankets zusammen etwas mehr als 30 t pro Gwa(e).

Verbesserung des Arbeitsschutzes, d.h. Senkung der Strahlenbelastung des Betriebspersonals, entsprechend dem ALARA-Prinzip, und Erhöhung der Anlagenverfügbarkeit haben ein gemeinsames Entwicklungsziel, nämlich die verstärkte Verwendung fernbedienter Instandhaltungstechnik. Die in den europäischen Anlagen mit direkter Instandhaltungstechnik realisierte Zeitverfügbarkeit von nur etwa einem halben Jahr ist mit der Forderung nach Reduzierung des Ex-Core Inventars kaum vereinbar. Bei direkter Instandhaltung muß mit Betriebsunterbrechungen von mehreren Monaten gerechnet werden, während mit fernbedienter Instandhaltungstechnik diese Zeiten auf wenige Tage reduziert werden können. In den amerikanischen Anlagen von Savannah River und Hanford liegen darüber gründliche Erfahrungen vor; in der Bundesrepublik sind dagegen nur wenig Erfahrungen vorhanden, und daher sind die bei der Abteilung Ingenieurtechnik des KfK laufenden Entwicklungsarbeiten sehr wichtig.

Mechanisches Head-End

Durch den komplizierten Aufbau der SBR-Brennelemente ergeben sich hier wesentliche Änderungen. Der Brennelementkasten sollte vernünftigerweise vor der Zerlegung des Brennelementes entfernt werden. Die Zerlegung in Einzelstäbe und die Verwendung einer Stabschere anstelle einer Bündelschere erscheint zweckmäßig. Die Zerfallswärme von SBR-Corebrennstoff, der ein Jahr gekühlt wurde, ist um etwa Faktor 20 größer als die von 5 Jahre lang gekühltem LWR-Brennstoff. Abb.2 vermittelt einen Eindruck über Radioaktivität und Zerfallswärme von LWR und SBR-Brennstoff als Funktion der Kühlzeit. Die Selbsterhitzung und die Staubentwicklung beim Schneiden der Brennstäbe macht fernbediente Instandhaltung notwendig und stellt hohe Ansprüche an die mechanische Verfahrenstechnik. Dazu werden bei INTERATOM Entwicklungsarbeiten geleistet.

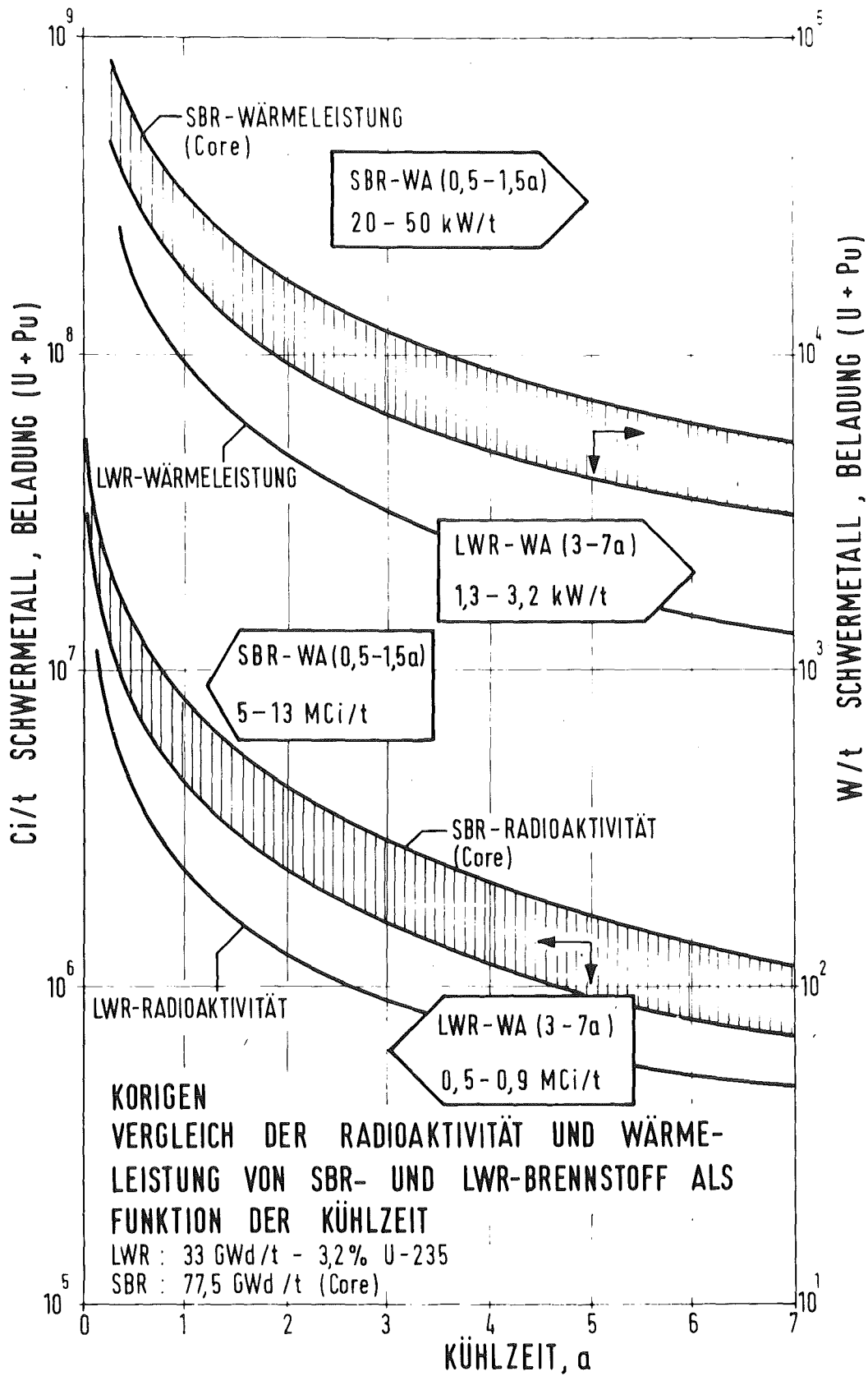
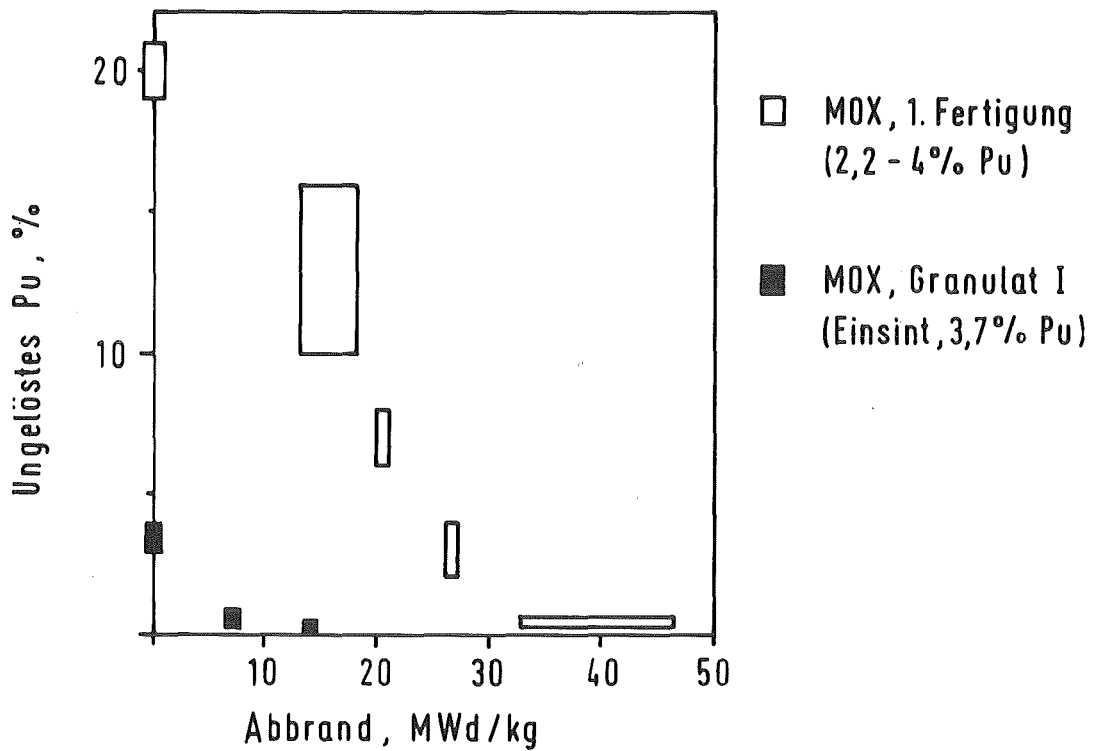


Abb. 2

AUFLÖSUNG VON PuO_2/UO_2 -LWR BRENNSTOFF

Mechanische Mischungen, Hersteller ALKEM



Auflösung in 10 M HNO_3 /l, 6 Stunden gekocht

Abb. 3

Chemisches Head-End

Bei der Auflösung des Mischoxid-Brennstoffes ist darauf zu achten, daß der unlösliche Plutoniumanteil auf ein Minimum gesenkt wird. Bekanntlich hängt die Löslichkeit des Brennstoffes wesentlich vom Herstellungsverfahren ab. Mechanisch gemischter Brennstoff zeigt normalerweise wesentlich schlechtere Löslichkeit als kopräzipitierter Brennstoff.

In Abb.3 sind die MILLI-Erfahrungen über die Auflösung von mechanisch gemischtem Brennstoff dargestellt. Man sieht, daß für Brennstoff mit 4% Plutonium bei steigendem Abbrand der ungelöste Anteil deutlich absinkt und die Löslichkeit durch das verbesserte Einsint-Verfahren - schwarze Rechtecke - größer ist. Bei Erhöhung des Plutoniumgehaltes verschlechtert sich die Plutoniumlöslichkeit. In Abb.4 sind Ergebnisse von Auflösungsversuchen mit solchen Brennstoffen zusammengestellt. Das wesentliche Ergebnis in dieser Tabelle ist, daß

PuO_2/UO_2 -SBR Brennstoffe (30% PuO_2)
 Auflösung in 10 M HNO_3 , 8-9 Stunden gekocht

Brennstoff (Hersteller)	Pin Position	Abbrand MWd/kg	Pu ungelöst von Gesamt Pu %
<u>Mechanische Mischungen</u>			
DFR-455 (Alkem)	Mitte	54	4
	Ende	40	5,2 - 5,7
Rapsodie (Alkem)	Mitte	95	4,1
Rapsodie (Belgonucl.)	Mitte	93	3,6
KNK II (Alkem)	—	0	67,6
	unbek.	13	29
Neu-Entw. (Alkem)	—	0	0,07
<u>Kopräzipitierter Brennstoff</u>			
Dounreay (15% PuO_2)	unbek.	50	0,04

Abb. 4

AUFLÖSUNG

bei kopräzipitiertem Brennstoff der ungelöste Plutoniumanteil auf unter 0,1% zurückgeht, während beim mechanisch gemischten Brennstoff auch bei hohem Abbrand mehrere Prozent des Plutoniums ungelöst bleiben. Allerdings ist es der ALKEM in letzter Zeit gelungen, ein mechanisches Verfahren zu entwickeln, mit dem eine wesentliche Verbesserung der Plutoniumlöslichkeit erreicht wird, wie die vorletzte Reihe in der Tabelle zeigt.

Ein zweites Problem ist die im Vergleich mit LWR-Brennstoff sehr viel höhere Wärmeentwicklung im Lösungsrückstand (in 10 kg FKS 6 kW, gegenüber 280 bzw. 17 W bei 3 a bzw. 7 a gekühltem LWR-Brennstoff), der mehr als die Hälfte des Spaltruthens enthält (Abb.5).

	LWR		SBR (core+axiales blanket)
	3a	7a	1a
Menge FKS, kg/t Brennstoff	4		- 10
Ru im FKS, g	850 (40% ungelöst)		- 3000 (75% ungelöst)
Radioaktivität im FKS, Ci/t Brennstoff	26000	1700	- 600000
Wärmeleistung im FKS, W/t Brennstoff	260	17	- 6000

VERGLEICH DER RADIOAKTIVITÄT UND WÄRMELEISTUNG DURCH Ru - Rh IM FEEDKLÄRSCHLAMM (FKS) VON LWR (3 und 7 Jahre Kühlzeit) UND SBR (1 Jahr Kühlzeit)

	LWR	SBR
Abbrand, GWd/t	33	77,5
		- 8 (ax. blanket)
Spez. Ru-Rh Akt., Ci/g	2 - 30	- 200
Spez. Wärmeleistung, W/g	0,02 - 0,3	- 2

Abb. 5

Die Abtrennung dieses Rückstandes ist wegen der feinen Anteile schwierig aber unerlässlich, um Störungen durch Grenzflächenniederschläge (Crud oder Mulm genannt) in den Extraktionsapparaten zu vermeiden. Ein zuverlässiges, fernbedient handhabbares Verfahren dazu ist heute noch nicht verfügbar, es muß entwickelt und unter heißen Bedingungen getestet werden. Neben Zentrifugen, die schon eine zeitlang in Erprobung sind, stellen die in Dounreay in der Entwicklung befindlichen magnetischen Filter eine mögliche Lösung dar. Wichtige Untersuchungen zur genauen Identifizierung der unlöslichen Anteile laufen u.a. im IMF des KfK und sollten unbedingt fortgesetzt werden.

Extraktion

In den 50er und 60er Jahren wurde die Frage diskutiert, ob der PUREX-Prozeß für hochabgebrannte kurzgekühlte Brennstoffe noch geeignet ist. Es wurde befürchtet, daß durch die hohe Strahlenbelastung die Schädigung des Extraktionsmittels unbeherrschbar groß werden könnte. In dieser Zeit wurde deshalb an einer Vielzahl nichtwässriger Alternativen gearbeitet. Anfang der 70er Jahre wurde diese Frage dennoch zugunsten des PUREX-Prozesses entschieden. Die in Frankreich, Großbritannien und Japan geplanten Demonstrationsanlagen (100 kg SBR-Brennstoff/d) verwenden alle den PUREX-Prozeß. In der Bundesrepublik steht uns für experimentelle heiße Untersuchungen des Extraktionsprozesses die mit Mischabsetzern ausgerüstete MILLI, eine Laboranlage mit 1 kg Brennstoffdurchsatz pro Tag zur Verfügung. Sie ist seit 1971 in Betrieb. In Abb.6 sind die Kampagnen, die mit MOX-Brennstoffen gefahren wurden, zusammengestellt. Diese Untersuchungen haben uns wesentliche Erkenntnisse geliefert, die auch international viel Beachtung gefunden haben. Der Brennstoff mit dem höchsten Abbrand hatte 75 MWd/kg, die kürzeste Kühlzeit war etwa ein Jahr. Mit der Aufarbeitung von KNK-Brennstoffen haben wir unseren Beitrag dazu geleistet, den Brüterbrennstoffkreislauf - wenn auch im kleinen Maßstab - auch in der Bundesrepublik zu schließen.

	No	Pu-%	AD(MWd/kg)	KZT (a)	H*)
LWR-RECYCLE	11	2.5-4	7-26	1,5-2,5	A
	13				A
SBR	3	15	50-60	7,5	D
	14	30	54-75	5,2	A,B
	16	30	10-40	5-8	V
	17	30	13	1,9	B,K
	18	30	54	1	A,K

*) A = ALKEM, B = Belgonucleaire, K = KNK, V = Test-BS

MILLI-MOX-KAMPAGNEN (1972-1981)

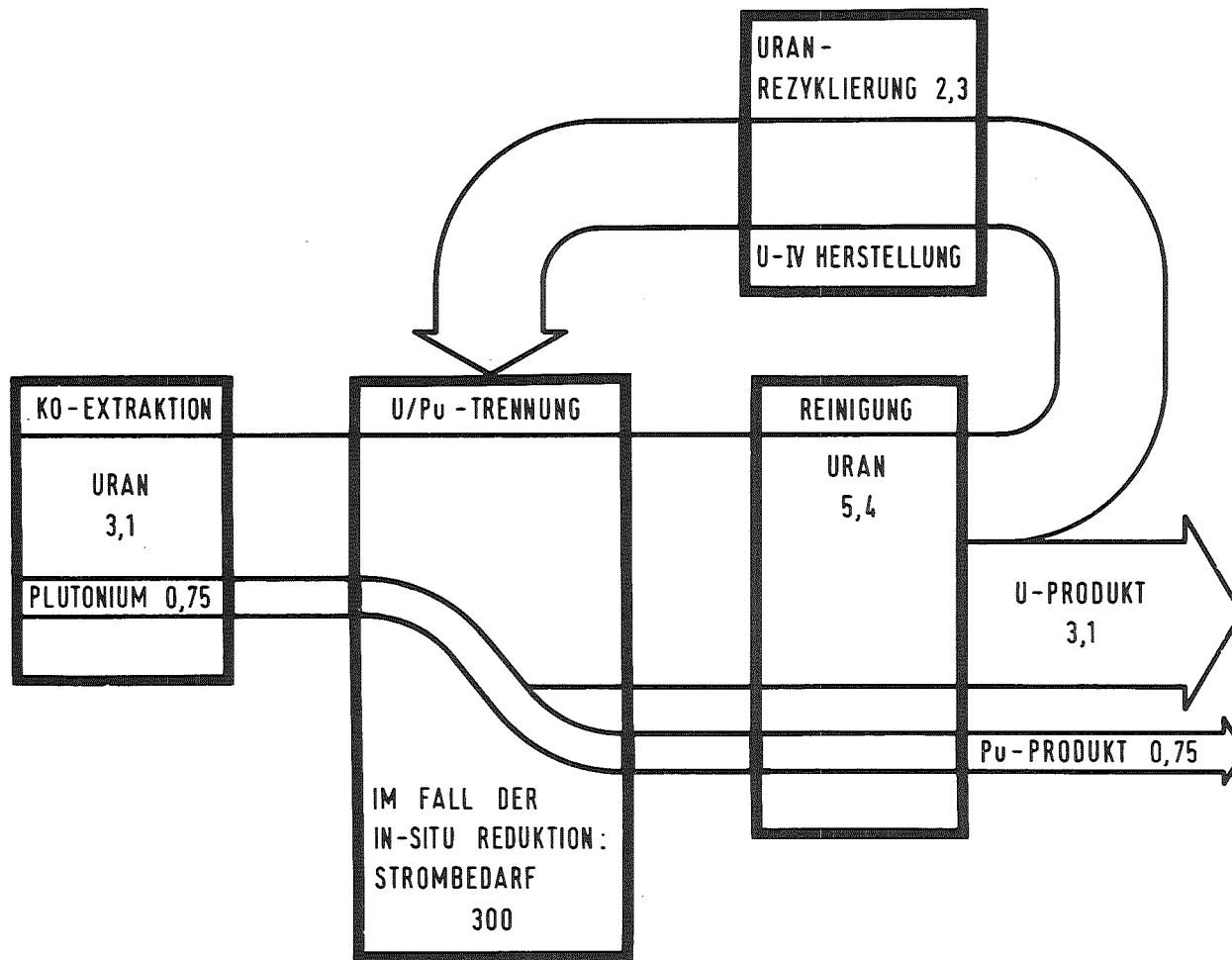
Abb. 6

Ausgehend von den Produktspezifikationen, die vor allem von der Brennstoffherstellung bestimmt werden, sind auch für die SBR-Brennstoffaufarbeitung für Uran drei Zyklen zur Abtrennung der Spaltprodukte und des Plutoniums und Neptuniums notwendig. Im Vortrag der Herren Bleyl und Ochsenfeld wird Näheres darüber berichtet werden. Zusammengefaßt ergeben die Untersuchungen in der MILLI, daß die Abtrennung der Spaltprodukte auch mit Mischabsetzern im 1. Zyklus ausreichende Werte liefert, die mit der LWR-Brennstoffaufarbeitung vergleichbar sind, um mit insgesamt 3 Zyklen die geforderte Produktspezifikation zu erreichen. Der Einfluß kurzer Kühlzeit auf die Spaltprodukt-Dekontaminationsfaktoren wird z.Zt. an KNK-Brennstoff noch untersucht. Obwohl die Dekontaminationsfaktoren im Plutoniumprodukt niedriger liegen, ist auch hier die notwendige Abtrennung mit 3 Zyklen leicht zu erreichen; wegen des höheren Plutoniumgehaltes sind schon geringere Dekontaminationsfaktoren ausreichend. Es wird deshalb diskutiert, ob die Plutoniumreinigung auf insgesamt zwei Zyklen verkürzt werden kann. Diese Frage bedarf noch experimenteller Untersuchungen und die Entscheidung wird letztlich mitbestimmt von der Zuverlässigkeit der verfahrenstechnischen Ausrüstung. Dabei spielen die Dosiergenauigkeit und eine prä-

zise Leittechnik eine wichtige Rolle. Zur Leittechnik gehört neben der Instrumentierung auch eine präzise und gewissenhafte Prozeß-Analytik. In den Vorträgen von Frau Mainka und Herrn Ertel wird über die analytischen Aufgaben und wie sie gelöst werden, berichtet werden. Zur In-line Instrumentierung laufen eine Reihe wichtiger Entwicklungsarbeiten im Kernforschungszentrum, auf die Herr Kröbel schon eingegangen ist. Ich kann es daher bei diesem Hinweis belassen.

Bei der LWR-Brennstoffaufarbeitung wird heute als organische Phase meist 30 Vol% TBP in Kerosin verwendet. Die Ergebnisse unserer Untersuchungen deuten in der MILLI jedoch darauf hin, daß für höher abgebrannten und kürzer gekühlten Brennstoff die Senkung der TBP-Konzentration auf 20% vorteilhaft ist. Eine geringfügige Senkung der Raum/Zeit-Ausbeute wird, verkürzt gesagt, durch eine Verbesserung des Verhaltens der 2-Phasen-Dispersion wettgemacht.

Die Uran/Plutonium-Trennung wurde früher mit Eisen-II Sulfamat als Reduktionsmittel durchgeführt. Schon bei geringen Plutoniumgehalten werden dabei jedoch relativ große Mengen von korrosivem Abfall produziert. Daher wird heute meist extern gebildetes Uran-IV als Reduktionsmittel angewandt. Betriebserfahrungen zeigen jedoch, daß nur bei sehr sorgfältiger Einhaltung der Fließschemagrenzen die in verschiedenen Anlagen aufgetretenen spontanen Oxidationen des gesamten Extraktorinhaltes vermieden werden können. Für Brennstoffe mit hohem Plutoniumgehalt ist dieser Prozeß auch aus einem anderen Grund nicht zu empfehlen. Wie Abb.7 zeigt, müßten im Falle von SBR-Brennstoff 3/4 des Urans ständig als Uran-IV rezykliert werden, um die Plutoniumabtrennung zu erreichen. Ein wesentlich eleganteres Verfahren ist die elektrochemische Reduktion von Plutonium, die im Institut für Heiße Chemie entwickelt und in der MILLI und der WAK an Mischabsetzern erfolgreich demonstriert wurde. Die WAK hat sich nach dem erfolgreichen Betrieb eines elektrolytischen Mischabsetzers im zweiten Plutoniumzyklus entschlossen, die sog. EMMA nun auch in den ersten Zyklus einzubauen.



BEDARF AN EXTERN HERGESTELTLEM URAN-(IV) FÜR DIE BRÜTERBRENNSTOFF-AUFARBEITUNG
 BRENNSTOFF : 20% Pu; U-(IV)/Pu-3; ZAHLENWERTE : kMol ODER kWh PRO TONNE BRENNSTOFF

Abb. 7

Was noch aussteht, sind Untersuchungen über die Plutonium-Extraktion in einer elektrolytischen Pulskolonne, für die der Plutoniumteststand, die sog. PUTE, gebaut wurde (Abb.8). Die Tests mit Uran haben die Erwartungen voll erfüllt. An der Auslegung einer Kolonne für den UEZ wird z.Zt. gearbeitet. Wir hoffen, daß die PUTE, nachdem die Genehmigungsschwierigkeiten überwunden sind, im nächsten Jahr den Betrieb aufnehmen kann. Neben dem elektrolytischen Mischabsetzer ist in der WAK eine Elektrooxidationszelle, eine sog. ROXI, die zur Rückoxidation der Plutoniumproduktlösung zwischen den Zyklen dient, erfolgreich betrieben worden (Abb.9). Diese Zelle vermindert den erforderlichen Apparatenaufwand im Vergleich mit chemischer Oxidation erheblich. Die im Bild gezeigte Zelle ist in der PUTE eingebaut und für einen Durchsatz von 10 kg Plutonium pro Tag ausgelegt. Das entspricht etwa der Kapazität einer 350 Tonnen LWR-Brennstoff-Wiederaufarbeitungsanlage.

Bei der Auswahl der Extraktionsapparate für die fortschrittlichen Brennstoffe verdienen zwei Kriterien besondere Beachtung:

1. Die Prozeßdynamik und
2. die Strahlenschädigung des Extraktionsmittels und die damit verbundenen Effekte.

Bezüglich der Prozeßdynamik sind Schnellextraktoren (Zentrifugen) dem Mischabsetzer und auch der Pulskolonne vorzuziehen. Entwicklungsarbeiten an Zentrifugen sind an verschiedenen Stellen im Gange. Soll dieser Vorteil der Schnellextraktoren realisiert werden, muß jedoch ein ganzer Zyklus damit ausgerüstet werden. Die Strahlenbelastung ist in einer Pulskolonne etwa um den Faktor 3 höher als im Zentrifugalextraktor. Abb.10 zeigt einen Vergleich der drei im PUREX-Prozeß angewendeten Apparatetypen bezüglich Strahlendosis und Dibutylphosphatbildung, welche das Extraktionsverhalten negativ beeinflusst. Die experimentellen Untersuchungen reichen heute noch nicht aus, um zu entscheiden, ob die Vorteile von Zentrifugalextraktoren realisiert werden können. Wir beabsichtigen deshalb, Miniaturschnellextraktoren zu entwickeln, in die MILLI einzubauen und ihre Wirkungsweise näher zu untersuchen.

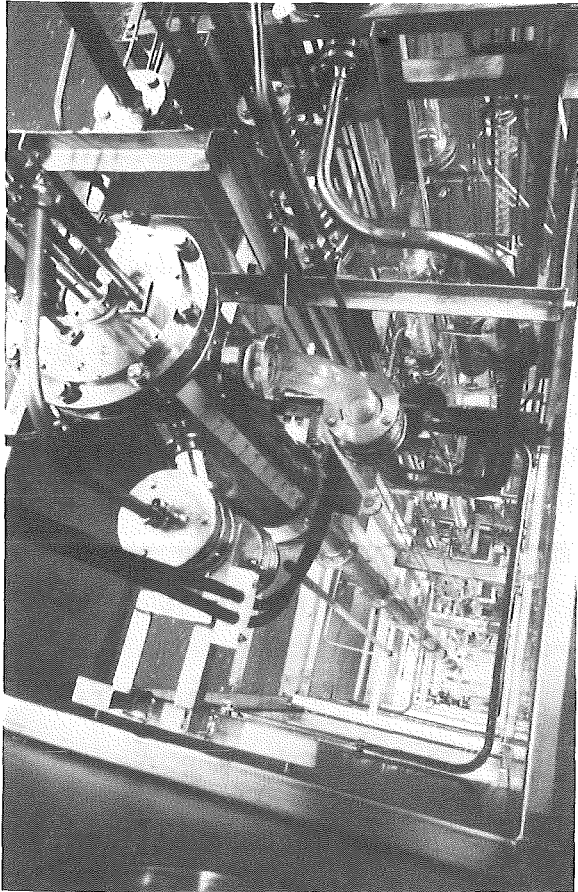


Abb. 8



Abb. 9

SBR-BS. 43,5 MWd/kg KZT: 50 d, 20% TBP

	DOSIS-BEL (Wh/l)	HDBP- (mg/l)
MS	2,84	276
PK (Ø 15 cm)	0,19	18,5
ZE	0,06	6,2

Berechnete Daten von NAYLOR & BROWN

Abb. 10

EXTRAKTOR-VERGLEICH

Eine Konstruktion ist in Abb.11 gezeigt. Zum Größenvergleich: der Rotor ist 6 cm lang.

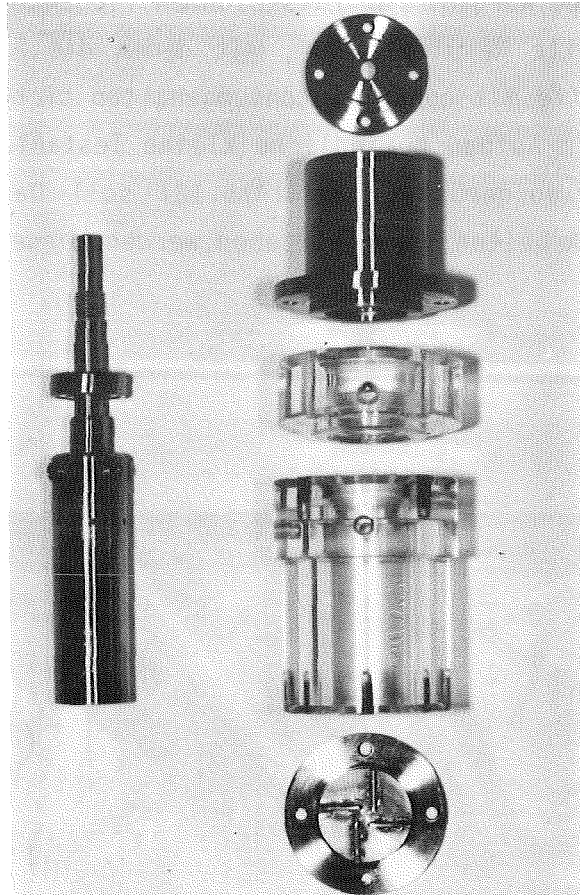


Abb. 11

Früher wurde häufig betont, daß die kleine Baugröße von Zentrifugen Kritikalitätssicherheit a priori garantiert. Wir sind der Überzeugung, daß Kritikalitätssicherheit auch für andere Extraktoren bei Anlagengrößen von über 1 t/d durch eine Kombination von geometrischen Maßnahmen und heterogener Vergiftung mit Hafnium gewährleistet werden kann. Darüber wurde schon vor zwei Jahren an dieser Stelle berichtet. Wichtige Experimente, im Zusammenhang mit der Kritikalitätssicherheit, sind die Untersuchungen zur Plutoniumakkumulation in Extraktoren, bei Abweichungen vom bestimmungsgemäßen Betrieb. Für Mischabsetzer liegen dazu schon heute die wesentlichen Resultate aus LABEX-Experimenten vor und können durch mathematische Simulation beschrie-

ben werden. Über den Stand unserer Arbeiten zur Simulation bzw. Modellbildung wird am Nachmittag im Vortrag der Herren Petrich und Schmieder berichtet werden. Für Pulscolonnen liegen noch keine belastbaren experimentelle Resultate vor, mit denen die Plutoniumakkumulation für Brennstoffe mit hohen Plutoniumgehalten sicher berechnet werden können. Die im Aufbau befindliche kleine Testanlage MILTESSA, die mit Pulscolonnen ausgerüstet ist (Abb.12) soll Daten liefern, mit denen dann diese Arbeiten vorangetrieben werden können.

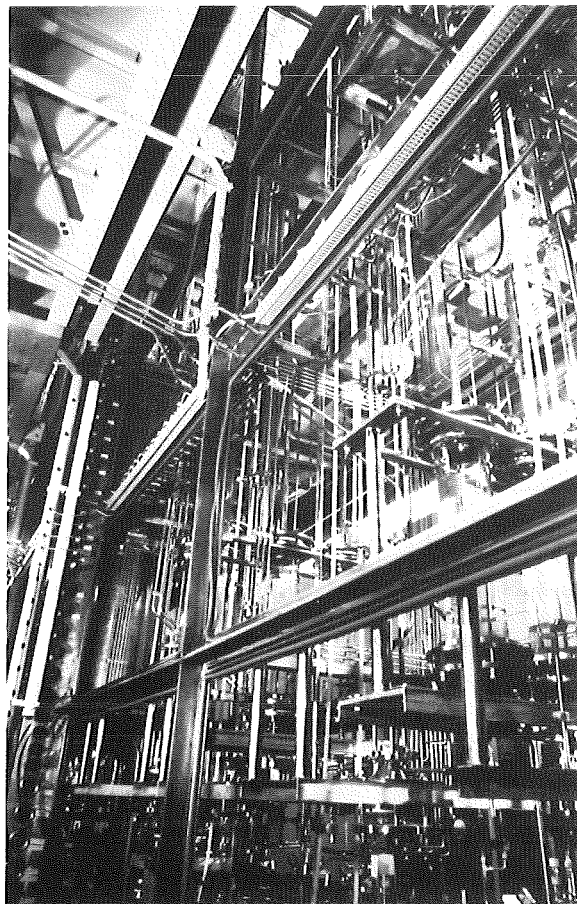


Abb. 12

Flüssige und gasförmige radioaktive Abgaben

Es ist selbstverständlich, daß das Volumen der Abfälle aus ökologischen und ökonomischen Gründen so gering wie möglich gehalten werden soll. Ein erhebliches Volumen ($10\text{m}^3/\text{t}$ Brennstoff) stellen, bei der heute üblichen Prozeßführung, die flüssigen mittel- und schwachaktiven Abfälle dar. Wenn man die bei Interventionen anfallenden Spülungen einmal außeracht läßt, sind dies vor allem die Natriumnitrat-Lösungen aus der Solventwäsche und überschüssige Salpetersäure. Vor zwei Jahren wurde an dieser Stelle über Wege zur Reduzierung dieser Abfallvolumina bereits berichtet. Es wurde damals vorgeschlagen, bei der Solventwäsche anstatt Natriumcarbonat Hydrazin zu verwenden, das zusammen mit überschüssiger Salpetersäure elektrochemisch in Stickstoff und Lachgas zersetzt werden kann. In den kompakten elektrochemischen Zellen entsteht dabei jedoch in größeren Mengen Ammoniumnitrat. Es ist vor kurzem in unserem Institut gelungen, Ammoniumnitrat auf einfache Weise zu zerstören. Kontaminiertes Ammoniumnitrat entsteht auch an anderen Stellen des Brennstoffkreislaufs, so könnte dieses Verfahren sogar von weitergehenderer Bedeutung sein.

Die Abgase einer Wiederaufarbeitungsanlage müssen von radioaktiven Anteilen befreit werden, bevor sie über den Kamin direkt abgegeben werden können. Qualität und Zuverlässigkeit der Abgasreinigung ist heute von besonderer Bedeutung, nicht zuletzt auch für die Akzeptanz der Kernenergie in der Öffentlichkeit. Auswahl und Effektivität der Abgasreinigungsverfahren sind einerseits mit der Prozeßführung an den Quellen der Abgaskontamination eng verknüpft und werden andererseits durch Verdünnung mit Transportgas beeinflusst. Ob Krypton in der näheren Zukunft abgetrennt werden muß, ist heute noch nicht entschieden. Im Referenzkonzept zur Abgasreinigung sind bekannte Einzelverfahren zu einer Abgasstrecke zusammengestellt und untersucht worden. Über die darin enthaltenen Einzelschritte sowie über zugehörige experimentelle Erfahrung mit den Anlagen REDUKTION, ADAMO, KRETA wurde bereits in früheren Statusberichten referiert, und über die PASSAT-Anlage

wird heute nachmittag berichtet werden. Wegen der ursprünglich engen Terminplanung mußten nicht erprobte Verfahren im Referenzkonzept zunächst zurückstehen, auch wenn sie verfahrenstechnisch geeigneter erschienen. Inzwischen haben Laboruntersuchungen gezeigt, daß man z.B. das Spaltkrypton auch ohne Anwendung von Druck und ohne Akkumulation großer radioaktiver Inventare mit einem geeigneten Lösungsmittel selektiv herauswaschen kann (Abb.13) bei der Vorreinigung sind dabei weder hohe Temperaturen noch Wasserstoff erforderlich.

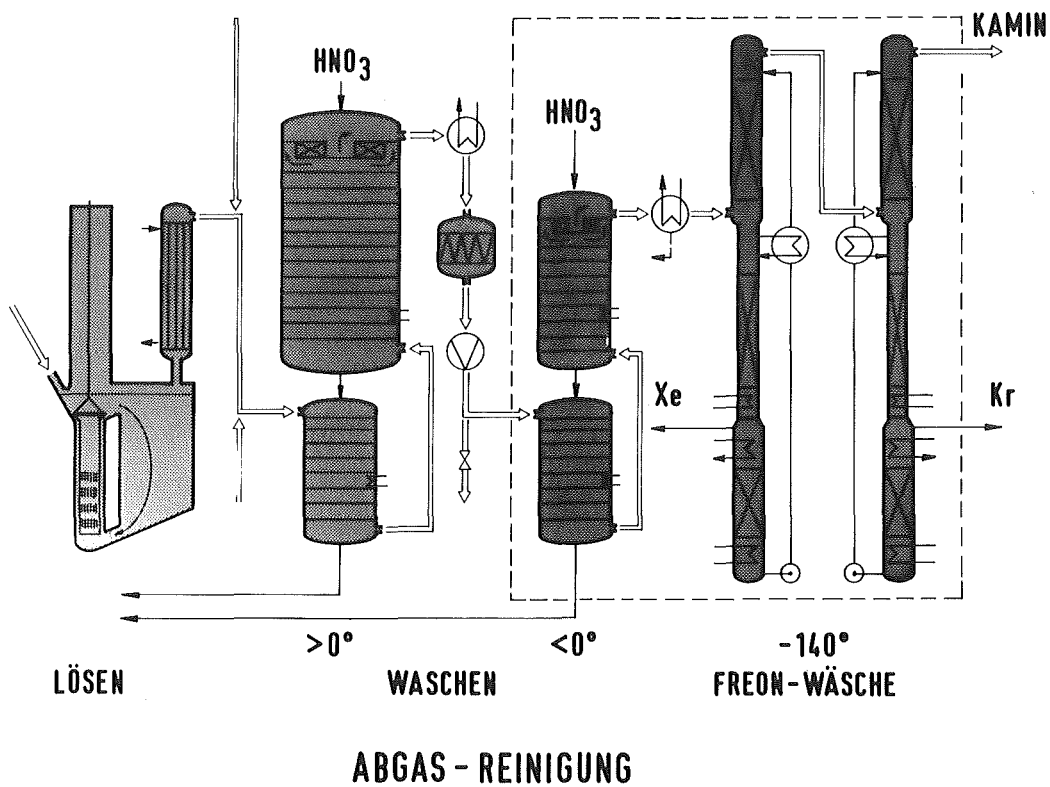
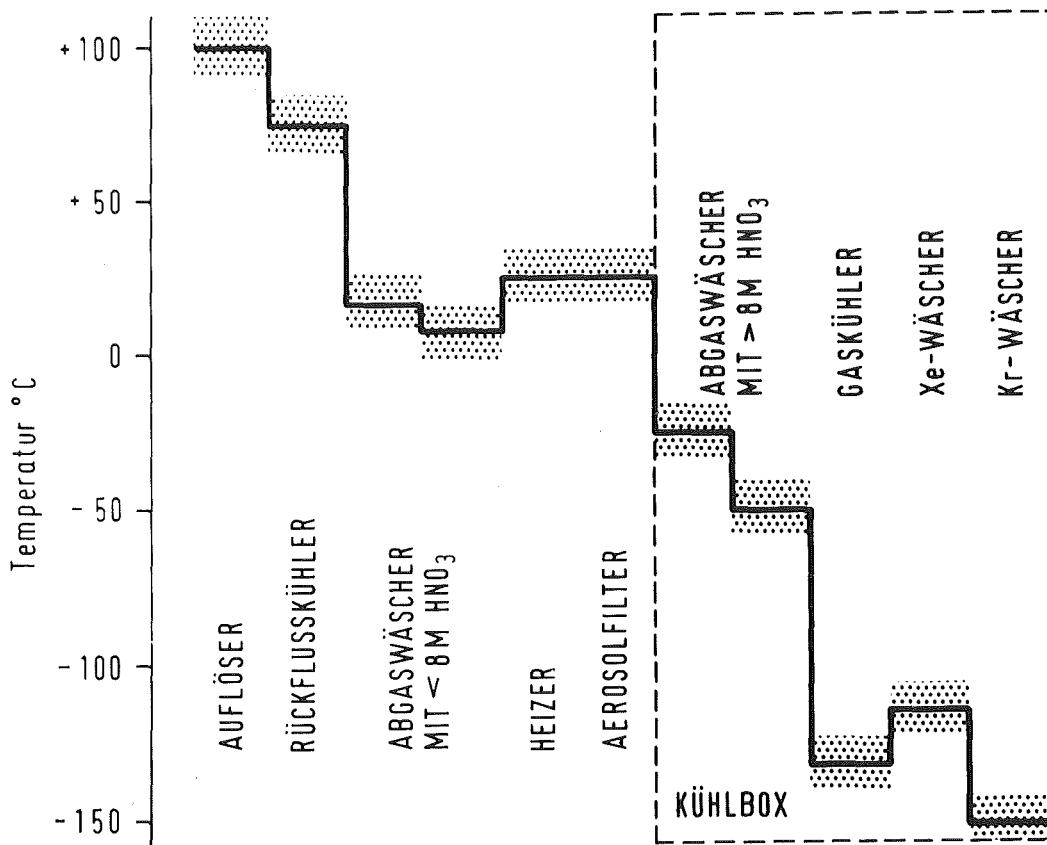


Abb. 13

Abb.14 zeigt ein solches Konzept; die Auflöserabgasreinigung wird danach im wesentlichen durch eine konventionelle Reihenschaltung von Abgaswäschern bei Normaldruck erreicht. Das Abgas wird zuerst mit verdünnter, dann mit konzentrierter Salpetersäure und schließlich mit Freon-R12 gewaschen. Die einzelnen Reinigungsschritte sind untereinander gut abstimmbare; die Temperaturerniedrigung erfolgt stufenweise von Zimmertemperatur bis zu etwa -140°C , ohne daß große Temperatursprünge in entgegengesetzter Richtung auftreten. Die Verfahren innerhalb der Kühlbox wurden im Labor, und diejenigen außerhalb der Box, bereits im versuchstechnischen Maßstab untersucht.



TEMPERATURPROFIL IM AUFLÖSERABGAS

Abb. 14

Konsequenterweise wird auch die drucklose Konditionierung und Lagerung des Spaltkryptons durch Implantation in Metallphasen untersucht. In einer modifizierten Ionenzerstäuberpumpe können von einem Liter Metall bis zu 200 Liter Krypton aufgenommen werden. Die metallischen Endprodukte zeigen hohe mechanische, thermische, chemische und radio-lytische Stabilität. Wie wir hören, scheint auch in den USA diesem akkumulationsfreien und drucklosen Verfahren neuerdings der Vorrang gegeben zu werden.

Ausblick

Zusammenfassend ist festzustellen, daß Forschungs- und Entwicklungsarbeiten auf dem Gebiet der Wiederaufarbeitung fortschrittlicher Brennstoffe für alle Verfahrensschritte vorangetrieben werden sollen, von der mechanischen Verfahrenstechnik über die Leittechnik bis zur chemischen Reaktionstechnik. Ein großer Teil der notwendigen Forschungs- und Entwicklungsaufgaben werden hier im Kernforschungszentrum bearbeitet. Die Arbeiten, die den Umgang mit größeren Mengen an radioaktivem Material erfordern, müssen "nolens volens" von den Kernforschungszentren geleistet werden, weil nur hier die erforderliche Experimentier- und Infrastruktureinrichtungen in ausreichendem Maße zur Verfügung stehen.

In Frankreich, England und Japan - in den UdSSR ist dies sicher auch der Fall - wird an der Erstellung von Demonstrationsanlagen zur Brüter-Brennstoff-Wiederaufarbeitung gearbeitet. Solche Anlagen müssen neben anderen wichtigen Aufgaben die betriebliche Zuverlässigkeit im Gesamtverbund demonstrieren, und der industriellen Einführung vorausgehen. In der Bundesrepublik gibt es noch keine Planung für eine solche Anlage. Um den technischen und finanziellen Aufwand abzuschätzen, aber auch um zu demonstrieren, daß wir dazu in der Lage sind, wird zusammen mit anderen Abteilungen des Zentrums an einer ersten Konzeptstudie für eine solche "kleinste repräsentative Anlage" gearbeitet.

Auf dem Gebiet der chemischen Grundlagen ist viel zu tun - mehr als ich hier andeuten kann. Es ist eine Binsenwahrheit: Immer wenn es Probleme bei chemischen Verfahrensschritten gibt, ist eine schlüssige Lösung am ehesten von der Grundlagenforschung zu erwarten. Damit ist der Wert der Grundlagenforschung für uns schon begründet. Ich möchte dazu einige Beispiele geben. Die Frage, wie Plutonium und Uran extraktiv abgetrennt werden können, hängt von deren Komplexbildungsverhalten ab. Die Komplexbildung ist bekanntlich von der Elektronenstruktur abhängig; daher können Studien über die Elektronenstruktur für die Extrahierbarkeit von unmittelbarem Interesse sein. Ähnliches gilt für den Flüssig-flüssig-Phasenübergang, der in der Physikalischen Chemie zu den schwierigsten Gebieten überhaupt gehört. Die Phasenübergangskinetik bestimmt letztlich die Größe der Trennapparate; wenn man um möglichst niedrige Bauhöhen bemüht sein muß, wird man deren Bedeutung unmittelbar einsehen.

Ein weiteres Beispiel ist die Modellbildung chemischer Vorgänge und deren mathematische Simulation. Die Bedeutung ist schnell erkannt: sie kann zur optimalen Auslegung von Experimenten wichtige Anhaltspunkte geben, und somit deren Zahl verringern. Bei uns wird heute keine Kampagne in der MILLI gefahren, ohne daß gewisse Trennvorgänge vorher simuliert worden wären. Für die Modellbildung von Trennkolonnen und anderen Verfahrensschritten und für die Weiterentwicklung der dabei notwendigen mathematischen Methoden ist noch viel Grundlegendes zu erarbeiten. Ein Ziel ist es, zuverlässige Modelle für den Verfahrensverbund aufzustellen, die dann auch Beiträge zur Optimierung der Leittechnik und Prozeßanalytik liefern und Hilfe bei der Konstruktion von Apparaten geben können.

Auf dem Gebiet der Grundlagenforschung haben wir die Möglichkeit mit Hochschulinstituten zusammenzuarbeiten. Dies ist nicht nur für die Erweiterung des eigenen Horizonts nützlich, sondern wir hoffen, auch damit die Probleme der Wiederaufarbeitung jüngerer Wissenschaftlern nahezubringen. Viele von uns sehen mit Sorge, daß es mit dem Nach-

wuchs schlecht bestellt ist. Dies kann langfristige Folgen haben. Um hier entgegenzuwirken, sollte die Kooperation mit den Universitäten verstärkt werden. Im KfK gibt es seit einiger Zeit ein Projekt, das sich diesen Kooperationen annimmt.

Ich hoffe, daß ich Ihnen zeigen konnte, daß viele Arbeitsgebiete, die für die Weiterentwicklung des Verfahrens der Wiederaufarbeitung wichtig sind, gerade über die Grundlagenforschung eng miteinander verwoben sind. Die Erfolge, die das Institut für Heiße Chemie in den letzten Jahren verbuchen konnte, waren nur möglich, weil so viele verschiedene Arbeitsrichtungen unter seinem Dach bearbeitet werden konnten. Sie beruhen aber auch darauf, daß die Entwicklung neuer Verfahrensschritte und Apparate in den versuchstechnischen Maßstab hineingetrieben wurden, um die Anwendungen unter Betriebsbedingungen zu demonstrieren. Dieses Konzept, das auch heute noch voll gültig ist, stammt und wurde durchgesetzt von meinem Vorgänger Prof. Dr. Franz Baumgärtner. Es ist mir ein besonderes Anliegen, Franz Baumgärtner für sein stetes Engagement um die Wiederaufarbeitung sehr herzlich zu danken.

KONZEPTE ZUR BEHANDLUNG AKTINIDEN-
HALTIGER RADIOAKTIVER ABFÄLLE

H. Krause, Leiter des Instituts für Nukleare Entsorgungstechnik,
Kernforschungszentrum Karlsruhe

1. EINLEITUNG

Der überwiegende Teil aller bei der Wiederaufarbeitung bestrahlter Kernbrennstoffe (WA) und der Fertigung neuer U/Pu-Mischoxid (MOX)-Brennelemente anfallenden radioaktiven Abfälle enthält zumindest kleine Mengen an Aktiniden. Diese stehen bezüglich ihrer Radiotoxizität und Halbwertszeit an der Spitze aller Radionuklide. Die Alpha-Bestrahlung verursacht wesentlich höhere Strahlenschäden als die von Beta- oder Gamma-Bestrahlung, und beim Umgang mit Alpha-Strahlern müssen über das gewohnte Maß hinausgehende Vorsichtsmaßnahmen gegen Kontamination getroffen werden.

Trotzdem haben sich bis heute weder der Begriff alpha- oder aktinidenhaltiger Abfall noch eine spezielle Behandlungstechnologie für diese Abfälle so recht eingebürgert. Der Grund hierfür liegt hauptsächlich darin, daß größere Mengen an Beta- und Gamma-Strahlern das äußere Erscheinungsbild radioaktiver Abfälle anfänglich wesentlich stärker prägen als ihr Gehalt an Aktiniden, und daß kleine Mengen an Alphaabfällen in großen Mengen sonstiger radioaktiver Abfälle völlig untergehen.

So werden denn auch bis heute die aktinidenhaltigen Abfälle zusammen mit den anderen Abfällen der entsprechenden Beta/Gamma-Kategorie behandelt. (Eine Ausnahme bilden lediglich die Abfälle mit hohen Gehalten an Aktiniden bei gleichzeitig niedrigen Gehalten an sonstigen Radionukliden.) Ein solches Vorgehen ist bei kleinen Mengen an Alphaabfällen durchaus sinnvoll, bei größeren stößt man aber an Grenzen. Spätestens in einem großen Brüter-Brennstoffkreislauf ist wegen der hohen Aktinidgehalte und kurzen Vorkühlzeiten der Abfälle ein spezielles System der Behandlung aktinidenhaltiger Abfälle zwingend erforderlich.

2. GRENZWERTE UND PRODUKTANFORDERUNGEN FÜR ALPHAABFÄLLE

Weltweit gibt es bisher weder einheitliche noch verbindliche Grenzwerte für Alphaabfälle. In den USA werden alle Abfälle mit Aktinidgehalten > 10 nCi/g und damit nahezu alle Abfälle aus der WA und MOX-BE-Fertigung als Alphaabfälle betrachtet. Auch die diskutierte Heraufsetzung des Grenzwertes auf 100 nCi/g würde daran nichts Wesentliches ändern.

In der Bundesrepublik Deutschland wurden in den vorläufigen Einlagerungsbedingungen für das Salzbergwerk Asse Abfälle mit > 5 μ Ci/g (5 Ci/t) als Alphaabfälle bezeichnet, allerdings bisher nicht eingelagert. Bei Anwendung dieses Grenzwertes ist nur ein volumenmäßig kleiner Teil der o.g. Abfälle in diese Kategorie einzureihen. Abfälle mit Aktinidgehalten von 10 nCi - 5 μ Ci/g wurden als alpha-kontaminiert betrachtet und mußten entsprechend ihrem Gehalt an Beta/Gamma-Strahlern konditioniert werden. Gegenwärtig wird ein Grenzwert von 4 Ci/t diskutiert.

Die unterschiedlichen Grenzwerte in der USA und der Bundesrepublik resultieren im wesentlichen aus den unterschiedlichen Endlagerverfahren. Alphaabfälle dürfen in den USA nicht im Boden vergraben werden. In der Bundesrepublik sollen dagegen ohnehin alle radioaktiven Abfälle in tiefen geologischen Formationen endgelagert werden.

Ähnlich wie bei den Grenzwerten ist die Lage bei den Aktiniden-Abfällen auch bezüglich der Produktanforderungen. Verbindliche Richtlinien gibt es z.Zt. auf der ganzen Welt noch nicht. Am weitesten fortgeschritten, wenngleich auch noch in der Diskussion, sind sie in den USA. Nach den bisherigen Entwürfen werden die Produktanforderungen an Alphaabfälle aus dem nicht militärischen Bereich weitgehend denen für hochaktive Abfälle gleichen. Die "Environmental Protection Agency" (EPA) fordert dies explizit und legt fest, daß aus einem Endlager mit alphastrahlenden Aktinidenabfällen (Halbwertszeit > 20 a) in 10.000 Jahren nur der $3 \cdot 10^{-5}$ te Teil freigesetzt werden darf. Wie dieser Wert von Produkt, Behältern, Zusatzverpackungen, künstlichen Barrieren im Endlager und dem Endlager selbst im einzelnen erbracht werden soll, läßt sie bewußt offen.

Um den von der EPA vorgegebenen Wert einhalten zu können, fordert die "Nuclear Regulation Commission" (NRC), daß aus dem Abfallprodukt einschließlich seines Behälters pro Jahr nur der 10^{-5} te Teil der langlebigen, alphastrahlenden Aktiniden freigesetzt werden darf. Ein Wert von $10^{-6} \cdot a^{-1}$ wird als wünschenswert bezeichnet. Hochaktive Abfälle einschließlich ihrer Verpackung sollen außerdem so beschaffen sein, daß aus ihnen während der ersten 1000 Jahre der Endlagerung bei allen glaubhaften Störfällen überhaupt keine Aktivität freigesetzt wird ("Zero release") [1].

Weiterhin fordert die NRC, daß die Abfälle so in Matrixmaterialien eingebunden sind, daß bei Unfällen keine einatembaren Stäube freigesetzt und durch störfallbedingte Oberflächenvergrößerungen die Auslaugraten nicht wesentlich erhöht werden. Brennbare Abfälle sollen möglichst in einen nichtbrennbaren Rückstand überführt werden. Weiterhin wird eine radiolytische Beständigkeit in dem Umfang verlangt, daß die Festigkeit, Integrität und das Rückhaltevermögen des konditionierten Abfalls für Radionuklide nicht beeinträchtigt und auch die Sicherheit des Endlagers selbst nicht gefährdet wird. Kritikalitätsunfälle sind durch eine Begrenzung des Spaltstoffgehaltes auszuschließen.

Die NRC fordert eine möglichst gute Qualität der aktinidenhaltigen Endprodukte, da diese für eine sichere Langzeitlagerung von wesentlicher Bedeutung ist. Dieser Zusammenhang wird durch die Ergebnisse einer im Institut für Nukleare Entsorgungstechnik (INE) durchgeführten Sensitivitätsanalyse bestätigt. Es wurde unter der Annahme eines Wassereinbruchs in ein Endlager im Salz während der Betriebsphase und einiger vereinfachenden Randbedingungen errechnet, daß z.B. die maximale Pu-239-Konzentration um vier Größenordnungen geringer wird, wenn die Auslaugrate als ein wesentlicher Produktparameter statt 10^{-3} nur 10^{-7} g/cm²/d beträgt. Noch stärker wirken sich die kleineren Auslaugraten auf die integral freigesetzte Aktivität aus.

Es wäre wünschenswert, wenn die noch vielfach qualitativen durch quantitative Produktanforderungen ersetzt werden könnten. Das kann allerdings

nur auf der Basis einer standortspezifischen Sicherheitsanalyse des Endlagers, die alle relevanten Störfallszenarien berücksichtigt, erfolgen. Für eine Sicherheitsanalyse ist aber auch die Kenntnis all jener Produktdaten erforderlich, durch die Freisetzung und Ausbreitung der Radionuklide beschrieben werden können. Somit können verbindliche Endlagerforderungen nicht ohne Produktdaten und verbindliche Produktdaten nicht ohne Endlagerforderungen quantitativ festgeschrieben werden. Dieses Problem kann nur iterativ von beiden Seiten gemeinsam gelöst werden. Erforderlich ist hierzu allerdings auch die rechtzeitige Festlegung der prinzipiellen Anforderungen durch die zuständigen Behörden.

3. ÜBERBLICK ÜBER DIE VERSCHIEDENEN AKTINIDENHALTIGEN ABFÄLLE

Die im nuklearen Brennstoffkreislauf anfallenden aktinidenhaltigen Abfälle unterscheiden sich hinsichtlich ihrer Natur, ihrer Menge, ihres Gesamtgehaltes an Plutonium und/oder sonstigen Aktiniden sowie ihrer spezifischen Aktivität sehr erheblich. Tabelle 1 gibt hierzu detaillierte Informationen.

Die größte Menge an Aktiniden ist in den hochaktiven Spaltproduktlösungen aus der WA enthalten, die größte Menge an Plutonium in den brennbaren Abfällen aus der Fertigung von MOX-Brennelementen. Bezüglich des Volumens, insbesondere an konditionierten Endprodukten, haben die mittelaktiven flüssigen Abfälle aus der WA die größte Bedeutung. Die Tabelle 1 zeigt aber auch anhand einiger Beispiele, wie sehr die Mengen (und damit auch die spezifische Aktivität) der Abfallendprodukte vom Konditionierungsverfahren abhängen.

Abfallvolumina und die Aktivitätsgehalte der Abfälle sind keine Naturkonstanten, sondern hängen in starkem Maße von einer Reihe von Randbedingungen ab, u.a. vom Durchsatz der WA, bzw. MOX-BE-Fertigungsanlagen und von den gewählten Konditionierungsverfahren für die Abfälle. Die angegebenen Werte sollen hier auch nur die Größenordnungen und Zusammenhänge beleuchten.

Der zeitliche Verlauf des Radiotoxizitätspotentials verschiedener aktinidenhaltiger Abfälle ist in Abb. 1 dargestellt. Die hochaktiven Spaltproduktabfälle übertreffen zwar anfangs die übrigen um mehrere Größenordnungen, die Radiotoxizitätspotentiale kommen sich aber entsprechend dem raschen Abklingen der Spalt- und Aktivierungsprodukte, bereits nach ca. 300 Jahren schon sehr nahe. Langfristig wird das Radiotoxizitätspotential aller Abfälle primär von deren Aktinidgehalt bestimmt. Hieraus ist zu schließen, daß die übrigen Aktinidenabfälle gegenüber den hochaktiven Spaltproduktresten nicht vernachlässigt werden dürfen und die gleiche Sorgfalt bei der Behandlung erfordern wie diese. Hierbei stellen die großen Volumina und die z.T. sehr komplexe Zusammensetzung besondere Anforderungen an die Behandlungstechnik.

3.1 Hochaktive Spaltproduktlösungen

Die hochaktiven Spaltproduktlösungen (1 WW) enthalten unter allen Abfällen mit Abstand die größte Menge an Aktiniden, und das verglaste Endprodukt weist auch die höchste Alphakonzentration auf. Trotzdem werden sie - außer bei Langzeitsicherheitsbetrachtungen - wegen ihrer hohen Beta/Gamma-Aktivität meist nicht als typische Alpha-Abfälle angesehen. Bezüglich des Pu-Gehaltes stehen sie an dritter Stelle unter den Abfällen aus WA und MOX-BE-Fertigung. Vom Volumen her sind weder die hochaktiven Spaltproduktlösungen noch ihre Verfestigungsprodukte sehr bedeutend.

Zur Verfestigung von 1 WW steht zur Zeit die Einbindung in Borosilikatglas im Vordergrund. Es werden jedoch, besonders in den USA, auch alternative Produkte, insbesondere keramische Materialien untersucht. Die Verglasungstechnik und die Untersuchungen zur Produktqualität sind bei früheren Statusberichten ausführlich beschrieben worden. Aus diesem Grunde soll in diesem Beitrag lediglich auf die viel diskutierte Frage der Abtrennung von Aktiniden kurz eingegangen werden. Häufig wird die Meinung vertreten, daß mit der Abtrennung der Aktiniden aus dem 1 WW und anschließender Kernspaltung in einem schnellen Brutreaktor das gesamte Aktinidenproblem aus der Welt geschafft wäre.

Versuche zur Abtrennung von Aktiniden aus dem 1 WW mit dem Ziel einer anschließenden Spaltung werden an einigen Stellen durchgeführt. In Ispra wurde z.B. nach einer Denitrierung mit Ameisensäure Pu, Am und Cm mit HDEHP 1) und TBP 2) fast quantitativ extrahiert [2]. Parallel dazu liefen Versuche zur Abtrennung von Aktiniden mittels Oxalatfällung [3]. Die Verfahren sind bisher nur im Labormaßstab mit echtem 1 WW getestet worden, Versuche im technischen Maßstab sind vorerst nicht vorgesehen.

Versuche zur Aktinidenabtrennung mit DHDECMP 3) [4] bzw. Oxalsäure [5] und anschließendem Kationenaustausch werden im ORNL durchgeführt. Dort laufen auch Untersuchungen darüber, welchen Einfluß die Bindung von Pu an verschiedene Niederschläge (SiO_2 , ZrO_2 , Phosphate und Molybdate) auf die Abtrennfaktoren ausübt.

Grundsätzliche Überlegungen zeigen, daß durch die Abtrennung der Aktiniden aus dem 1 WW mit anschließender Spaltung ein echter Gewinn für die langfristige Sicherheit nur unter folgenden Bedingungen zu erzielen wäre:

- a) Die Aktiniden Pu, Am, Np und Cm müßten mit Dekontaminationsfaktoren von ca. 1000 abgetrennt werden. Diese Werte wurden in Laborversuchen bereits erreicht; ob sie auch im großtechnischen Maßstab erzielbar sind, ist noch offen.
- b) Die Verluste an Aktiniden bei der Herstellung und Wiederaufarbeitung der Targets müßten so gering gehalten werden können, daß sie den Gewinn durch die Abtrennung aus dem 1 WW und die Spaltung im Reaktor nicht wieder zunichte machen. Dies scheint z.Zt. nicht im ausreichendem Umfang möglich.

1) HDEHP = Di(äthyl-2-hexyl)phosphorsäure

2) TBP = Tributylphosphat

3) DHDECMP = Di-hexyl (di-äthyl)carbonyl-methylen-phosphonat

- c) Eine Aktinidenabtrennung und -Spaltung müßte nicht nur beim 1 WW, sondern im gleichen Umfang auch bei allen anderen Alphaabfällen erfolgen; dies muß beim heutigen Kenntnisstand als kaum machbar angesehen werden.

Zu den Schwierigkeiten der Aktinidenabtrennung aus dem 1 WW kommen noch zusätzliche Probleme im Brennstoffkreislauf wie

- die geringen kritischen Massen einiger Aktiniden
- die Notwendigkeit einer Abschirmung bei der BE-Fertigung
- die hohe Zerfallswärme einiger Aktiniden und
- die Verunreinigung der Aktiniden durch Lanthaniden,

Der Aufwand für die Abtrennung der Aktiniden allein aus dem 1 WW, für die Targetfertigung, die Bestrahlung im Reaktor und die Targetwiederaufarbeitung ist sehr hoch und kommt dem für die Wiederaufarbeitung der bestrahlten Brennelemente selbst etwa gleich. Selbstverständlich bedeuten die vielen zusätzlichen Schritte auch ein zusätzliches Risiko. Aus all diesen Gründen scheint derzeit eine Abtrennung von Aktiniden aus dem 1 WW mit dem Ziel der anschließenden Spaltung wenig sinnvoll [6].

Sinnvoller und langfristig machbar erscheint dagegen eine Abtrennung mit dem Ziel einer anschließenden Einbindung in besonders geeignete, stabile Matrixmaterialien zusammen mit anderen Aktinidenkonzentraten. In diesem Falle wäre die Abtrennung wesentlich vereinfacht, weil die Reinheitsanforderungen an die Aktiniden nicht sehr hoch sein müßten. Es entfielen auch das sehr aufwendige Recycling. Allerdings muß der effektive Nutzen einer solchen Maßnahme noch nachgewiesen werden.

3.2 Schwach- und mittelaktive flüssige Abfälle

Der überwiegende Teil der aktinidenhaltigen Abwässer ist mittelaktiv und stammt aus der WA. Ihre Bedeutung liegt in erster Linie in ihrem großen Volumen und dem hohen Salzgehalt. Hieraus resultieren große Mengen an

Endprodukten. Daneben können bei der MOX-BE-Fertigung noch sehr kleine Mengen an aktinidenhaltigen Abwässern anfallen, die sich durch eine komplexe chemische Zusammensetzung (F^- , Cl^- , SO_4^{2-} , PO_4^{3-}) und eine relativ hohe spez. Alphaaktivität auszeichnen.

Als Fixierungsmaterialien für diese mittelaktiven Abwasserkonzentrate werden von der DWK und in den USA Zement vorgesehen, in Marcoule und Cap de la Hague (Frankreich), Eurochemic, Mol (Belgien), Tokai Mura (Japan) und Tarapur (Indien) Bitumen angewandt. Mit beiden Verfahren sind großtechnische Erfahrungen vorhanden.

Die Zementierung radioaktiver Konzentrate ist apparativ recht einfach. Allerdings sind die Vorgänge bei der Hydratisierung von Zement recht komplex. Die Gegenwart von Substanzen im Abfall, die zu Reaktionen mit Zementbestandteilen führen (z.B. Sulfate, Borate, versch. organische Verbindungen), kann die Qualität der Endprodukte zum Teil erheblich verschlechtern.

Vielschichtig sind auch die Vorgänge bei der Auslaugung von zementierten Abfällen in Wasser und ganz besonders in Salzlauge. Pu und Am sind im Zement relativ fest gebunden (Auslaugraten $\sim 10^{-6} \text{ g}\cdot\text{cm}^{-2}\cdot\text{d}^{-1}$ in Wasser, $10^{-4} - 10^{-5} \text{ g}\cdot\text{cm}^{-2}\cdot\text{d}^{-1}$ in Carnallit-Lösung). Untersuchungen zur Langzeitbeständigkeit von Zementprodukten gegenüber Lagerstättenlauge und bei der Auslaugung unter Druck laufen noch. Vorhersagen können zur Zeit nur aufgrund von Versuchen bis max. 3 Jahre gemacht werden. Diese zeigen, daß die Korrosion von Zement bei einer Atmosphäre Druck und Zimmertemperatur offensichtlich langsam verläuft, durch Erhöhung der Temperatur jedoch stark beschleunigt wird. Aus der Betontechnologie ist bekannt, daß auch die Magnesiumchlorid-Korrosion langfristig sehr kritisch ist [7].

Die Zementmatrix ist für die bei der Verfestigung von schwach- und mittelaktiven Alpha-Konzentraten infrage kommenden integralen Dosen ($< 10^9$ rad) hinreichend strahlenbeständig. Allerdings wird das im Zementstein gebundene Wasser durch Radiolyse zersetzt. Pro 1 kg Zementstein und 10^6 rad (γ) entstehen unter Normalbedingungen 3 - 8 ml Wasserstoff. In

MAW-Konzentratprodukten ist eine integrale Alphadosis von $\sim 5 \cdot 10^8$ rad und eine integrale Beta-Dosis von $3 \cdot 10^7$ rad zu erwarten. Durch Entfernung der Hauptmenge des nicht chemisch oder interstitial gebundenen Wassers (Erhitzen auf höhere Temperaturen) oder die Gegenwart von Radikalfängern (z.B. Nitrate) geht die Wasserstoffbildung erheblich zurück [8, 9].

Die mechanischen Eigenschaften des Zements hängen bei Einbindung flüssiger Konzentrate vom Salzgehalt ab. Bei Salzgehalten von 10 Gew.-% im Endprodukt liegt die Druckfestigkeit in der Größenordnung von ungefähr 100 kp/cm². Dies reicht für die Praxis. Manche Abfallbestandteile können die Erhärtung von Zement verzögern bis verhindern.

Der Hauptnachteil der Zementierung liegt in den großen Volumina der Endprodukte. In einer 350 jato-Wiederaufarbeitungsanlage entstehen aus dem flüssigen MAW im Falle der Betonierung pro Jahr 5000 t verfestigter Rückstände. Das ergibt einschließlich der erforderlichen Betonabschirmungen > 43.000 t Abfall-Endprodukte, die zum Endlager zu transportieren und dort einzulagern sind. Bei der Bituminierung des MAW-Konzentrats und Verfüllung direkt in die Betonabschirmungen für 200 l-Fässer ließe sich dieser Werte um den Faktor 2,5 senken.

Eine grundlegende Verbesserung bei der Behandlung des flüssigen MAW könnte durch die Abtrennung der Aktiniden und einiger Beta/Gamma-Strahler erzielt werden. Versuche in dieser Richtung laufen im Institut für Nukleare Entsorgungstechnik (INE). Sie zeigen, daß die Aktiniden bis unter die Nachweisgrenze abgetrennt werden können. Durch Dekontaminationsfaktoren von 280 für ¹³⁷Cs, 12 für ¹²⁵Sb und 6 für ¹⁰⁶Ru könnte bei Einbindung der dekontaminierten Fraktion in Bitumen die Strahlendosis der Abfälle soweit verringert werden, daß die Abschirmung auf 10 cm Beton gesenkt werden könnte. Dies würde in einer 350 jato-Wiederaufarbeitungsanlage im Vergleich zur Zementierung pro Jahr zur Ersparnis von rund 38.000 t Abschirmbeton führen [10].

Die Konzentrierung der Hauptmenge der Radionuklide in einer volumenmäßig sehr kleinen Fraktion erfordert deren Einbindung in einer gut strahlen- und temperaturbeständigen Matrix. Diese Anforderungen erfüllen z.B. Glas und Keramikprodukte. Da Keramikprodukte auch für die Fixierung einer Reihe weiterer Alphaabfälle hervorragend geeignet sind, wurden sie im INE für diesen Zweck ausgewählt. Ihre Auslaugraten für Pu und Am liegen in Wasser und gesättigter Salzlagerstättenlauge (Q) bei $10^{-8} \text{ g} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{d}^{-1}$. Mit 25 Gew.-% Am und 8 Gew.-% Pu-238 wurden bereits Proben mit sehr hohen Aktinidgehalten hergestellt. Bei der bisher erreichten Alphadosis von $2,5 \cdot 10^{12}$ rad wurde keinerlei Veränderung der Produkteigenschaften festgestellt. Radiolysegase entstehen in einem solchen Produkt naturgemäß nicht mehr. Die Keramikprodukte sind gut temperaturbeständig und zeichnen sich durch ein hohes Maß an thermodynamischer Stabilität und Unempfindlichkeit gegenüber der chemischen Zusammensetzung des Abfalls aus [11].

3.3 Feste brennbare Alpha-Abfälle

Die weitaus größte Menge des im gesamten nuklearen Brennstoffkreislauf in den Abfall gelangenden Pu befindet sich in den brennbaren festen Abfällen aus der Fertigung Pu-haltiger Brennstoffe. Hinsichtlich ihres Rohvolumens nehmen diese Abfälle den zweiten Platz ein. Sie können allerdings (z.B. durch Verbrennung) stark eingeengt werden.

Ein Merkmal der brennbaren Abfälle ist neben der Schwankung der Zusammensetzung in weiten Grenzen die ungleichmäßige Verteilung des Pu. Nach Messungen der Alkem enthalten rund 70% des Abfalls weniger als 1 g Pu/kg (= rund 15% der Gesamtmenge an Pu) und der Pu-Gehalt von 80% der Abfälle liegt $< 2 \text{ g/kg}$ (= $\sim 20\%$ der Gesamtmenge an Pu). Demnach enthalten rund 20% der Abfälle $> 80\%$ des in den brennbaren Abfällen befindlichen Pu.

Für Abfälle mit geringem Pu-Gehalt ist die trockene Verbrennung gut geeignet. Sofern eine Pu-Abtrennung nicht vorgesehen ist, können die Aschen direkt zementiert werden. Damit wird ein Volumen-Reduktionsfaktor von ca. 20 erreicht. Aus dem nuklearen Brennstoffkreislauf, entsprechend

einer WA-Kapazität von 350 t/a, resultieren ungefähr 40 000 l-Fässer pro Jahr mit einer spezifischen Alphaaktivität von ca. 100 Ci/t im Mittel.

Die Verbrennung von Abfällen mit hohem Pu-Gehalt (> 2 g/kg) ist wesentlich schwieriger. Es stellen sich Kritikalitätsprobleme, und der Strahlenschutz erfordert einen hohen Aufwand. Nach dem DWK-Konzept werden diese Abfälle in 20 l-Blechbehälter dicht verpackt, in Abfallfässer gefüllt und mit Beton vergossen (11 Büchsen/400 l-Faß). Hieraus resultieren ungefähr 680 Fässer pro Jahr.

Bei der Lagerung brennbarer Abfälle mit hohen Aktinidgehalten kann es infolge von Radiolyse zu Druckaufbau in den Fässern kommen. Es wurde beobachtet, daß die organische Substanz in der Nachbarschaft "heißer Teilchen" zerstört wird, so daß sich diese langsam am Boden konzentrieren [12]. Aus PVC-Abfällen wird darüber hinaus HCl abgespalten, die im Zement gebunden wird.

Die Forschungs- und Entwicklungsarbeiten zur Verbrennung von Abfällen mit hohen Pu-Gehalten haben zu einer Vielzahl von Verfahren geführt, die zum Teil auch schon aktiv demonstriert wurden.

In Frankreich, Großbritannien und den USA wurden eine Reihe von Versuchsöfen unterschiedlicher Bauart für Pu-haltige feste Abfälle auf der Basis der trockenen Verbrennung entwickelt. Gewisse Probleme stellen bei manchen Anlagen die Abgasbehandlung und die Korrosion dar, bei hohen Pu-Gehalten auch die Kritikalität [13].

Bei der Hydrolyse wird über den Abfall überhitzter Wasserdampf geleitet. Dabei bildet sich, wie bei der Kohlevergasung, ein Gemisch aus CO und H₂, das anschließend nachverbrannt wird. Das Verfahren ist seit 1977 bei der Nukem in Entwicklung und wird derzeit in einer inaktiven Anlage mit einem Durchsatz von 25 kg/h erprobt [14].

Bei allen Hochtemperatur-Verbrennungsverfahren bereitet die Pu-Rückgewinnung erhebliche Schwierigkeiten. Hochgeglühtes PuO_2 kann nur mit HNO_3 unter Zusatz von HF oder Fluoriden (meist CaF_2) aufgeschlossen werden [15]. Durch Begrenzung der Verbrennungstemperatur auf 800°C kann zwar ein starkes Sintern von PuO_2 vermieden werden, einige Aschebestandteile wie Si, Zr, Al, Fe erschweren aber auch hier die Pu-Rückgewinnung und verringern die Ausbeute.

In Rocky Flats (USA) werden feste Alphaabfälle oder TBP-haltige Lösungsmittel in einem Na_2CO_3 -Fließbettreaktor bei ca. 550°C mit Luftüberschuß verbrannt [16]. Eine Anlage mit einem Durchsatz von 9 kg/h ist seit 4 Jahren mit radioaktivem Material in Erprobung. Die bei der Verbrennung gebildete Salzsäure wird im Fließbett neutralisiert. Um dessen Zusammenbacken zu verhindern, muß die Arbeitstemperatur genau eingehalten werden und der Wassergehalt im Abfall darf nicht zu groß sein. Die verhältnismäßig niedrige Arbeitstemperatur vermeidet ein Hochtemperaturglühen des PuO_2 . Trotzdem dürfte die Pu-Rückgewinnung aufwendig sein.

Im CEN 1) Mol werden brennbaren Abfälle unter Beimengung von Fällschlamm aus der Abwasserbehandlung verascht. Bei einer Betriebstemperatur von 1.200 bis 1.600°C wird ein basaltartiger Rückstand erhalten. Eine Anlage mit einem Durchsatz von 45 kg/h mit β/γ -aktivem Abfall ist im Probebetrieb. Die Behandlung von alphahaltigen Abfällen ist vorgesehen. Eine Wiedergewinnung von Plutonium ist naturgemäß nicht möglich [17].

Bei der Naßveraschung werden die brennbaren festen Abfälle in einem Gemisch von $\text{HNO}_3/\text{H}_2\text{SO}_4$ bei ca. 250°C zu CO_2 und H_2O oxidiert [18]. Die entstehenden Stickoxide werden wieder oxidiert, ausgewaschen und in Form von HNO_3 in den Prozeß zurückgeführt. Das Plutonium wird bei der Behandlung in Sulfat überführt und kann aus dem Rückstand nach Lösung in verdünnter Säure relativ leicht durch z.B. Extraktion zurückgewonnen werden.

1) CEN = Centre d'Etudes de l' Energie Nucléaire

In den HEDL 1) ist eine inaktive Versuchsanlage zur Naßveraschung (4,5 kg/h) seit 1975 in Betrieb. Eine Demonstrationsanlage (100 kg/16 h) wurde im November 1978 aktiv in Betrieb genommen. Im INE wurde eine anders konzipierte Anlage entwickelt, die sich wegen der besonderen Ausbildung des Reaktors durch einen wesentlich kleineren Platzbedarf, eine rasche Zersetzung des Abfalls und eine rasche Umwandlung von PuO_2 im Plutoniumsulfat auszeichnet. Ihre aktive Demonstration soll 1982 bei der Eurochemic, Mol, erfolgen, wo 1 t Abfall mit ca. 8 kg Pu zu veraschen sind [19].

Versuche zur Pu-Rückgewinnung und Pu-Reinigung bei der TH Darmstadt brachten selbst bei hochgeglühtem PuO_2 Ausbeuten von 90 - 95% [20]. Durch Versuche im INE konnte nachgewiesen werden, daß sich die Verbrennungsrückstände nach einer einfachen Vorbehandlung in keramischen Materialien fixieren lassen. Arbeiten zur Naßveraschung von Pu-haltigen Abfällen laufen außer in den USA und bei uns auch in Japan, Großbritannien und in der Schweiz.

Neuerdings wird auch, u.a. bei der Alkem und in Frankreich an der Rückgewinnung von Pu aus brennbaren Abfällen durch Waschprozesse gearbeitet. Diese setzten allerdings u.a. den Ersatz von Zellstoff-Tüchern durch solche aus Kunststoffen voraus. Die Waschverfahren sind einfach und haben sicherlich ein Potential; sie befinden sich allerdings noch in einem frühen Stadium der Entwicklung.

3.4 Brennelementhülsen

Diese Abfälle stehen bezüglich der Gesamtmenge an Plutonium an zweiter Stelle. Vom Volumen her nehmen sie einen Mittelplatz ein. Das Pu ist in den Hülsen fest gebunden. Merkmale der Zirkaloy-BE-Hülsen sind ihre relativ hohe Beta/Gamma-Aktivität, ihr hoher Tritiumgehalt (ungefähr 60 %

1) HEDL = Hanford Engineering and Development Laboratories (USA)

des gesamten Tritiuminventars der WA) und die Pyrophorizität kleiner Späne.

BE-Hülsen werden in der Praxis bisher in der Regel in Beton fixiert, meist jedoch erst nach einer längeren Zwischenlagerung in Wasserbecken. Angesichts der hohen spezifischen Aktivität der Brennelementhülsen und der meist gemeinsam mit ihnen verfestigten Strukturteile (integrale Alphadosis $\sim 5 \cdot 10^9$ rad, integrale Beta/Gamma-Dosis $\sim 2 \cdot 10^9$ rad) darf die Radiolyse nicht mehr vernachlässigt werden, auch wenn die in der Praxis beobachteten Werte wegen der offensichtlichen Bindung von H_2 bzw. HT im Zirkaloy nur etwa die Hälfte der erwarteten betragen.

Die hohen Aktivitätsgehalte der Strukturteile bewirken eine merkliche Selbsterwärmung der zementierten Produkte. Weil bei $105^\circ C$ das freie Wasser aus dem Zementstein verdunstet, ist eine Temperaturbegrenzung erforderlich. Bei der Endlagerung in 60 m tiefen Bohrlöchern in einer Salzformation müssen Abstände von 11 m zwischen den einzelnen Bohrlöchern eingehalten werden, um die Maximaltemperatur auf $100^\circ C$ zu begrenzen (36.000 MWd/t, 3 a Zwischenlagerung, 400 l-Fässer) [21].

Weltweit wird eine Vielzahl von Forschungs- und Entwicklungsarbeiten zur Verarbeitung von Brennelementhülsen durchgeführt. Beim CEN werden BE-Hülsen nach Kompaktierung in Bleilegierungen eingeschmolzen. Im Endprodukt verbleiben 15 - 18 Vol.% Luftblasen. Tritium soll nur in geringer Menge freigesetzt werden. Versuche in Harwell zeigten, daß sich von den BE-Hülsen fast 50% des Pu durch eine Wäsche mit 3 $MHNO_3$ in einem Ultraschallbad entfernen lassen; das entfernte Pu geht hierbei allerdings nur teilweise in Lösung. In den PNL 1) wurde von BE-Hülsen mit einer gasförmigen Mischung HF/Argon bei $600^\circ C$, gefolgt von einer nassen Wäsche mit organischen Säuren, 99% des Pu und mehr entfernt, gleichzeitig aber auch bis zu 10% des Zirkaloy aufgelöst. Weiterhin wurden BE-Hülsen in einem in-

1) PNL = Pazific Nothwest Laboratories, Richland, USA (Battelle)

duktionsbeheizten Graphit-Ofen zu Metallblöcken geschmolzen. Dabei kann auch ein Teil des im Zirkaloy gebundenen Tritiums freigesetzt werden.

In Schweden wurden BE-Hülsen im Versuchsmaßstab durch isostatisches Heipressen zu kompakten Metallblöcken verarbeitet. Diese können ggf. noch von einer Titanhülle umgeben werden. Im IT des KfK wird die Volumenreduktion von BE-Hülsen durch Blockwalzen untersucht. Im INE wurde demonstriert, daß BE-Hülsen bei Raumtemperatur zusammen mit Bleispänen zu einem homogenen, fast blasenfreien Block gepret werden können und auch die Einbindung von BE-Hülsen in einen Keramik-Zement ein gut strahlen- und temperaturbeständiges Produkt ergibt.

3.5 Auflöserrückstände

Die Auflöserrückstände (Feedklärschlamm, FKS) entstehen bei der Filtration der salpetersauren Lösungen nach der Auflösung bestrahlter Kernbrennstoffe. Sie bestehen in erster Linie aus RuO_2 , Pd, MoO_3 und Zirkaloy-Spänen, enthalten aber auch noch 0,1 bis 0,2% des Plutoniums. Bezüglich ihres Pu-Gehaltes stehen sie an 4. Stelle. Auch ihre spezifische Beta/Gamma-Aktivität ist mit 20 Ci/g (nach 3 a Kühlzeit) recht hoch. FKS fällt nach dem DWK-Konzept zunächst als eine etwa 2 - 3%ige Suspension an.

Das bisher einzige Verfahren zur Endkonditionierung des FKS ist die in der WAK geübte Zementierung der ganzen Filtersäcke zusammen mit den Hülsen. Das DWK-Konzept sieht die homogene Zementierung der FKS-Suspension vor. Das Endprodukt enthält dann rund 1 Gew.-% Abfall, was bei 7 a altem FKS zu keinen Temperaturproblemen führt. Bei kurz gekühltem FKS entstehen erhebliche Mengen an Radiolysegasen und Wärme.

In Marcoule sind orientierende Versuche zur Einbindung von FKS in Borosilikatgläsern durchgeführt worden. Die Produktqualität dieser ersten Proben war nicht sehr gut. Die meisten Bestandteile des FKS lösen sich nicht im Borosilikatglas. Aus der Glastechnologie ist bekannt, daß grö-

Bere Anteile an ungelösten Partikelchen die mechanischen Spannungen im Glas berächtlich erhöhen. Die FKS-Partikelchen können möglicherweise auch im keramischen Schmelzer zu Sedimentation und örtlicher Korrosion führen. Bei Battelle, Frankfurt und im IMF werden daher Versuche zur Einbindung von FKS in Sinterglas durchgeführt. Die Nukem schlägt zur Einbindung von FKS Graphit vor.

Im INE wurden Versuche zur Fixierung von FKS in keramischen Materialien durchgeführt. Bei 1300°C (1,5 h) betrug die Flüchtigkeit von Ruthen 2%; die Flüchtigkeit von MoO_3 konnte durch Zusätze auf $< 0,1\%$ begrenzt werden; Zirkaloy wird ohne Brand oxidiert. 1980 wurde echter FKS in Keramik eingebunden. Die Qualität der Produkte ist sehr gut. Die Verfahrenstechnik für den hochaktiven Betrieb muß noch entwickelt werden.

3.6 Sonstige unbrennbare aktinidenhaltige Festabfälle

Diese Abfälle sind weder von der Menge, noch von ihrem Pu-Gehalt, noch von ihrer Pu-Konzentration her sehr bedeutend. Man kann davon ausgehen, daß eine Fixierung in Beton weder Wärme- noch Radiolyse- noch sonstige Probleme aufwirft. Versuche zur Dekontamination alphakontaminierter Materialien auf Werte < 10 nCi/g durch Elektropolieren und Vibrationsglätten in den USA waren erfolgreich [22,23].

4. ZUSAMMENFASSUNG UND AUSBLICK

Aktinidenhaltige Abfälle bedürfen, sofern sie in großen Mengen anfallen, einer speziellen Behandlungstechnik. Diese ist, anders als für die meisten sonstigen radioaktiven Abfälle, heute noch nicht im vollen Umfang verfügbar. Dies ist gegenwärtig noch kein Problem, da kleine Mengen an aktinidenhaltigen Abfällen in großen Mengen anderer radioaktiver Abfälle völlig untergehen. Bis zur Einführung eines Brüter-Brennstoffkreislaufs im großen Umfang muß jedoch ein spezielles System für die Behandlung der dann anfallenden Abfälle mit verhältnismäßig großen Gehalten an Aktiniden und kurzer Vorkühlzeit verfügbar sein.

Das Fehlen von verbindlichen Regelungen für die Behandlung aktinidenhaltiger Abfälle ist der Entwicklung auf diesem Gebiet nicht förderlich. Das häufig in der Kerntechnik anzutreffende Problem, daß die Frage "how safe is safe enough" nicht verbindlich geregelt ist, wirkt sich bei den Alphaabfällen besonders gravierend aus.

Die langen Halbwertszeiten der meisten Aktiniden liegen jenseits jeder menschlichen Erfahrung und Vorstellungskraft und deshalb in Dimensionen, in denen philosophische Betrachtungen näher liegen als technische. Trotzdem ist ein überzeugendes Konzept für die sichere Behandlung und Endlagerung von aktinidenhaltigen Abfällen realisierbar. Aufbauend auf unseren großen Erfahrungsschatz sollte es mit einem hohen Maß an Fachwissen und Verantwortungsgefühl, Mut zu einer Vorwärtsstrategie und Augenmaß möglich sein, ein System zu entwickeln, das technisch machbar und finanziell vertretbar ist und alle Sicherheitsanforderungen überzeugend erfüllt. Dazu brauchen nur die in der nuklearen Abfalltechnik anerkannten Prinzipien mit den Besonderheiten der aktinidenhaltigen Abfälle kombiniert und eine Reihe bewährter Verfahren sowie einige bereits laufende Entwicklungen zum Einsatz gebracht werden.

Das nachfolgend skizzierte System sollte diese Kriterien erfüllen. Seine Grundgedanken sind:

- Verringerung des Anfalls an aktinidenhaltigen Abfällen auf ein Minimum
- möglichst weitgehende Einengung des Volumens der anfallenden Abfälle
- Abtrennung von Pu und sonstigen Aktiniden aus allen Abfällen, bei denen dies sinnvoll möglich ist
- möglichst vollständige Wiederverwendung des abgetrennten Pu
- Einbindung der Aktinidenkonzentrate in eine sehr stabile Matrix

Die Minimierung des Abfallanfalls ist eine allgemein geübte Praxis in der Kerntechnik. Bei den Alphaabfällen wird dies bereits im besonders großen Umfang getan und noch weiter ausgebaut. Der Einsatz reinigbarer, d.h. wiederverwendbarer Materialien ist hierfür ein Beispiel. Auch moder-

ne Prozeßschritte in der Wiederaufarbeitung, wie die elektrolytische Reduktion von Pu, die Lösungsmittelwäsche mittels Hydrazin oder die Vermeidung homogener Vergiftung zur Kritikalitätskontrolle durch die Verwendung von Hafnium als Behälterwerkstoff, bewirken eine wesentliche Verminderung des Abfallaufkommens.

Die Abtrennung von Plutonium zum Zwecke der Wiedergewinnung bietet sich vor allem bei den brennbaren Abfällen mit hohen Pu-Gehalten aus der MOX-Brennstoff-Herstellung und einigen Prozeßströmen an. Bei der Mehrzahl der Abfälle dürfte der Aufwand hierfür zu groß und der Nutzen zu klein sein.

Bei einigen Abfallströmen erscheint eine Abtrennung der Aktiniden mit dem Ziel der anschließenden Einbindung in besonders stabile mineralische Matrixmaterialien angezeigt. Für die Stabilität solcher Verbindungen z.T. sogar gegenüber langfristiger Alpha-Bestrahlung, liefert die Natur überzeugende Beispiele. Die Aktinidenabtrennung zum Zwecke der Verfestigung ist relativ einfach, sie erlaubt die Herstellung gewissermaßen "maßgeschneiderter" Produkte und führt zu einer nur kleinen Menge an aktinidenhaltigem Endprodukt. Prinzipiell geeignet für eine solche Behandlung erscheinen die flüssigen Alpha-Konzentrate, die mittelaktiven Abwässer, die Auflöserrückstände und die Rückstände aus der Naßveraschung. Die Aschen aus der trockenen Verbrennung können direkt in eine stabile Matrix eingebunden werden.

Durch Weiterführung einiger der bereits laufenden Forschungs- und Entwicklungs-Arbeiten bis zur Anwendungsreife und Planung künftiger Anlagen nach den skizzierten Prinzipien kann ein System der Behandlung aktinidenhaltiger Abfälle erstellt werden, das in sich so konsistent ist und zusammen mit der Endlagerung in einer geeigneten geologischen Formation ein solch großes Maß an Sicherheit bietet, daß es jeder objektiven Prüfung standhalten kann und selbst Gegner der Kernenergie überzeugen müßte. Damit sollte es nicht nur einen Beitrag zum Einsatz des Brütters im großen Umfang, sondern auch zur Akzeptanz der Kerntechnik schlechthin leisten.

- [1] Disposal of High-Level Wastes in Geological Repositories
10 CFR Part 60
(44 FR 70408/ December 6, 1979
Vol. 45 N^o 94/ May 13, 1980
Vol. 46 N^o 130/ July 8, 1981)

- [2] P. Barbero, L. Cecille, F. Mannone, G. Tanet,
S. Valkiers, H. Willers
Proc. Sec. Techn. Meeting on the Nuclear Trans-
mutation of Actinides; Ispra, Italy
EUR 6929 EN/FR 1980

- [3] J. Godfrin, F. Mousty, J. Planson,
J. Toussain, *ibid.*

- [4] W.D. Bond, R.E. Lenze
ACS Symposium Series 117, Washington D.C., 1980

- [5] C.W. Forsberg
ORNL/TM-6445 I/1980

- [6] Proc. Sec. Techn. Meeting on the Nuclear Trans-
mutation of Actinides
Conclusions
Ispra, Italy EUR 6929 EN/FR 1980

- [7] G. Rudolph, P. Vejmelka, R. Köster
Leach and Corrosion Tests under normal and
Accident Conditions on Cement Products from
Simulated Intermediate Level Evaporator
Concentrates
International Symposium on the Scientific Basis
for Nuclear Waste Management
November 16-20, 1980, Boston/Mas.

- [8] H. Moeckel, R. Köster
Untersuchungen zur Strahlenbeständigkeit von
zementierten LAW-MAW-Produkten
KfK 3045 (Dez. 1980)
- [9] Ned E. Bibler
Radiolytic Gas Generation in Concrete made with
Incinerator Ash containing Transuranium Nuclides
DP-MS-79-25
- [10] K. Gompper, persönl. Mitteilung
- [11] U. Riege, Th. Dippel, H. Kartes
Evaluation of Ceramic Materials as a Matrix for
Solidification of Alpha-Bearing Wastes
IAEA-SM-246/21
Management of Alpha Contaminated Wastes
Vienna 2-6 June, 1980
- [12] Martin A. Molecke
Gas Generation from Transuranic Waste Degradation:
Data Summary and Interpretation
SAND 79-1245, UC-70
- [13] Leon C. Borduin, Anibal L. Tabras
USDOE Radioactive Waste Incinerator Technology
Waste Management '80, Turcon, AZ
March 11, 1980
- [14] H. Vietzke, J. Hofmann
Volume Reduction of Alpha-waste by Pyrohydrolysis
IAEA-SM 246/16 (1981)
Management of Alpha Contaminated Wastes
Vienna 2-6 June, 1980

- 15 T.C. Johnson
Recovery of Plutonium from Incinerator Ash
at Rocky Flats
RFP-2520 (1976)
- 16 D.L. Ziegler
Fluidized Bed Incineration of Radioactive
Waste
RFP-2471 (1976)
- 17 N. Van de Voorde et al.
SM 207-7 Proc. IAEA/NEA
Internat. Symposium on the Management
of Radioactive Wastes from the
Nuclear Fuel Cycle
Vienna, 1976
- 18 A.G. Blasewitz, C.R. Allen et al.
Operation of the Radioactive Acid Digestion
Test Unit RADIU
IAEA-SM 246/27 (1981)
Management of Alpha Contaminated Wastes
Vienna 2-6 June, 1980
- 19 H. Wiczorek, G. Kemmler, H. Krause, H. Lahr
Acid Digestion Treatment of Plutonium Containing
Waste
IAEA-SM 246/20 (1981)
Management of Alpha Contaminated Wastes
Vienna 2-6 June, 1980
- 20 B. Stojanik, persönl. Mitteilung

- [21] E. Smailos
Temperatur- und Radiolyseeffekte bei der
Lagerung von konditionierten MAW-Abfällen
und Abfällen der oberen MAW-Kategorie
Tagung "Entwicklungsstand der Tieflagerung
radioaktiver Abfälle"; Haus der Technik,
Essen 10. Oktober 1979
- [22] R. Allen et al.
Decontamination of Alpha-contaminated Materials
IAEA-SM-246/25
Management of Alpha Contaminated Waste
Vienna, 2-6 June, 1980
- [23] Arrowsmith et al.
Ibid., IAEA-SM-246/26

Radiotoxizitätspotential der Alphaabfälle

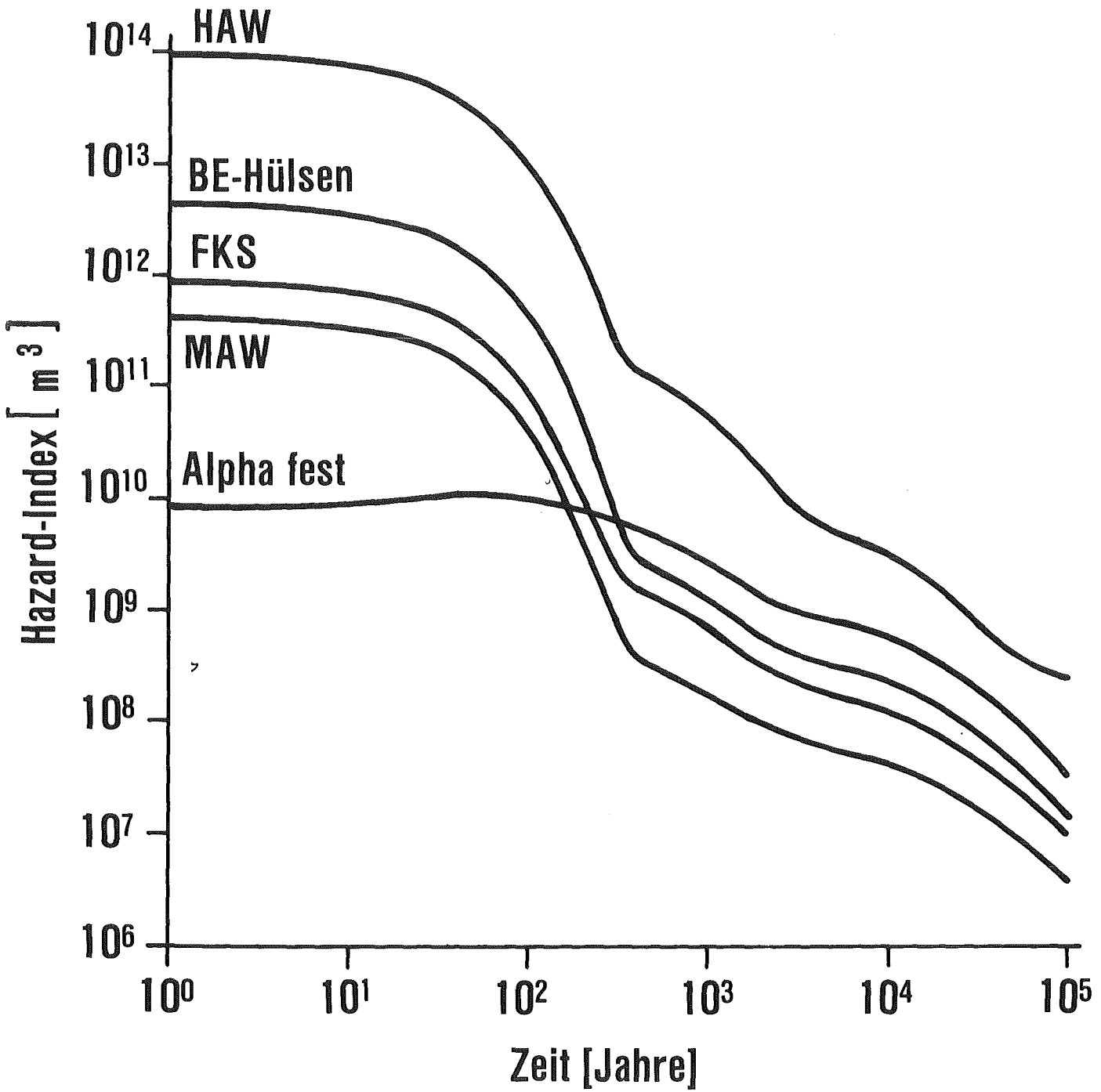


Tabelle 1:

Alphaabfälle aus der Wiederaufarbeitung mit angeschlossener MOX-Brennstoffherstellung

Pos. 1 bis 4: Brennstoff 40 000 MWd/t, 7 a Kühlzeit (DWK-Konzept v. 6.1.81)

Pos. 5 bis 7: Brennstoff 30 000 MWd/t, 3 a Kühlzeit (DWK-Konzept v. 7.8.78)

(Mengenangaben ohne Abschirmung, wenn nicht anders vermerkt)

	Abfallart (-Konditionierungsverfahren)	Rohabfall			Endprodukte	
		Volumen [m ³ ·a ⁻¹]	Pu-Gehalt [kg·a ⁻¹]	Alphaaktivität [Ci/a ⁻¹]	Menge [t·a ⁻¹]	spez.Alphaaktivität [Ci·t ⁻¹]
1	Hochaktive Spaltproduktlösung	100	11,5	3,8·E6 ¹⁾	129	5,2·E1
2	Mittelaktive Abwasserkonzentrate	1 500	2	1,2·E3	-	-
	- Zementierung	-	-	-	43 000 ²⁾	2,3·E-1 ³⁾
	- Bituminierung	-	-	-	17 000 ⁴⁾	1,1 ³⁾
	- Keramik nach Abtrennung der Alpha- u. Betastrahler	-	-	-	250 ⁵⁾	1,3·E2 ³⁾
3	Brennelementhülsen	110	19,5	1,1·E4	600	1,8·E1
4	Auflöserückstand	60	8,9	5,2·E3	-	-
	- Zementierung	-	-	-	300	1,7·E1
	- Keramik	-	-	-	30	1,6·E2
5	Nicht brennbare Festabfälle	25	0,5	3·E2	120	2,6
6	Brennbare Festabfälle ⁶⁾	600	6,3	3,7·E3	30	1,1·E2
7	Brennbare Festabfälle ⁷⁾	150	25	1,5·E4	-	-
	- Überbetonierung	-	-	-	230	6,6·E1
	- Keramik nach Veraschung	-	-	-	30 ⁸⁾	5,4·E2 ³⁾

1) Gesamte Alphaaktivität

2) Abfallprodukt mit verlorener Betonabschirmung (VBA)

3) bezogen auf Abfallprodukt

4) direkt in VBA gefüllt

5) zusätzlich 4040 t Birumenprodukt in 200 l Gebinde mit VBA (10 cm Wandstärke)

6) 80 % des brennbaren Festabfalls mit 20 % des im brennbaren Festabfall enthaltenen Plutonium

7) 20 % des brennbaren Festabfalls mit 80 % des im brennbaren Festabfall enthaltenen Plutonium

8) 200 l Gebinde in 400 l Gebinde überbetoniert

DAS DEUTSCHE TECHNOLOGIEPROGRAMM ZUR
HAW-VERFESTIGUNG

w. Heimerl

DWK - M01

Alle Entwicklungsarbeiten, die in der Bundesrepublik Deutschland auf dem Gebiet der Verglasung von hochradioaktiven Abfallösungen durchgeführt werden, sind in einem gemeinsamen Programm, dem "Technologieprogramm zur HAW-Verfestigung", zusammengefaßt. Eingeschlossen sind auch entsprechende Arbeiten, die in Mol/Belgien laufen. Alle genannten Arbeiten werden von Bundesminister für Forschung und Technologie gefördert.

Das HAW-Technologieprogramm ist ganz auf das PAMELA-Projekt ausgerichtet.

Alternativ zum französischen AVM-Verfahren der HAW-Verglasung soll das PAMELA-Verfahren als Ergebnis der deutschen Entwicklungsarbeiten in einer technischen Anlage demonstriert werden.

Diese PAMELA-Anlage befindet sich zur Zeit auf dem Gelände der Eurochemic in Mol im Bau.

Der PAMELA-Verfahrensablauf ist schematisch im Grundfließbild Abb. 1 dargestellt.

Ziel des HAW-Technologieprogramms ist es in erster Linie, die Verfahrensgrundlagen für PAMELA zu erarbeiten und das Projekt hinsichtlich der Ermittlung auslegungstechnischer Daten planungsbegleitend zu unterstützen.

Im einzelnen wurden folgende Ziele definiert :

- a) Produktentwicklung und Charakterisierung des Borosilikatglasblocks und des VITROMET-Gebindes.

b) Erstellung auslegungstechnischer Daten für die Komponenten des Verfahrenskonzeptes sowie Demonstration der Funktion und Verfügbarkeit unter Einsatz von Fernbedienungstechniken und repräsentativen Bedingungen.

c) Erfüllung der RSK/SSK-Empfehlungen vom 15.2.1978.

Bevor ich im Detail auf das HAW-Technologieprogramm eingehe, erlauben Sie mir bitte einen kurzen historischen Rückblick auf dessen Entstehungsgeschichte.

Im Juni 1977 wurde im BMFT ein HAW-Seminar durchgeführt, bei dem über das weitere Vorgehen in Sachen HAW-Verfestigung in Deutschland diskutiert wurde. Man kam dabei u. a. zu folgenden Empfehlungen :

- Der Aufbau einer Pilotanlage zur Verglasung von HAW-Lösungen bei der Eurochemic in Mol sollte mit Vorrang betrieben werden.
- Alle Entwicklungsarbeiten zur HAW-Verglasung sollten einer gemeinsamen Projektleitung unterstellt und auf dieses Ziel ausgerichtet werden.

Unter der Federführung der DWK wurde daraufhin Anfang 1978 in Zusammenarbeit mit der ehemaligen Gelsenberg AG, der KfK, der KFA und der Nukem ein Rahmenprogramm erstellt, in dem die erforderlichen F+E-Arbeiten zur HAW-Verfestigung erfaßt und in Prioritätskategorien eingeteilt wurden.

Außerdem wurden die vorgesehenen Bearbeiter sowie der jeweilige Bearbeitungszeitraum benannt.

Bis zum Beginn des Jahres 1978 hatte die Gelsenberg AG die vorbereitenden Arbeiten für das PAMELA-Projekt in Mol in Zusammenarbeit mit der Eurochemic und mit Unterstützung des BMFT durchgeführt.

Im Oktober 1978 kam es zur Übernahme des Gelsenberg-Anteils an der PAMELA-Entwicklung durch die DWK. Im Rahmen der anschließenden Überarbeitung des Projekts ergaben sich folgende wesentliche Änderungen für das in Mol zu realisierende Verglasungsverfahren :

1) Wegfall der Denitrierungsstufe

Begründung : Die Denitrierung stellt in erster Linie einen Weg zur Unterdrückung der Rutheniumverflüchtigung dar. Ein anderer Weg besteht darin, daß man sich verflüchtigende Rutheniumverbindungen durch den Einsatz spezieller Filter aus dem Abgas abtrennt.

Man hat sich bei PAMELA für diesen zweiten, verfahrenstechnisch einfacheren Weg entschieden.

Hinzu kommt der Umstand, daß der Gehalt an aktivem Ruthenium (das ist in erster Linie Ru-106 mit einer Halbwertszeit von ca. einem Jahr) in der HAW-Lösung in Mol aufgrund ihres relativ hohen Alters zum Zeitpunkt der Verarbeitung sehr gering ist.

Aus radiologischer Sicht stellt deshalb Ruthenium in diesem Falle kaum ein Problem dar.

2) Übergang von Phosphatglas zu Borosilikatglas

Begründung : In den USA, Großbritannien und Frankreich wurde allein die Borosilikatglasentwicklung verfolgt.

Die Phosphatglasentwicklung PAMELA stand im Jahre 1978 relativ isoliert da. So war einer der Gründe für den Übergang zu Borosilikatglas der, daß man am internationalen Erfahrungsaustausch auf diesem Gebiet teilnehmen wollte.

Ein weiterer Grund lag darin, daß das PAMELA-Phosphatglas, welches bei Temperaturen von 100 °C eine hervorragende Auslaugbeständigkeit aufwies, unter hydrothermalen Bedingungen (150 - 200 °C, 150 bar) ziemlich rasch desintegrierte.

3) Herstellung sowohl von Vitromet-Produkten als auch von monolithischen Glasblöcken

Begründung : Die Produktion von Vitromet-Gebinden stellt im Vergleich zu der von Glasblöcken zweifellos einen technischen Mehraufwand dar. Zur Rechtfertigung dieses Mehraufwandes müssen die wesentlichen Produkteigenschaften des Vitromets gegenüber denen eines Glasblocks deutlich verbessert sein.

Um dies zu überprüfen, ist es sinnvoll, unter Verwendung ein und derselben HAW-Lösung unter weitgehend gleichen Bedingungen aktive Vitrometblöcke und Glasblöcke im 1 : 1 - Maßstab heiß herzustellen und sie anschließend einer vergleichenden Untersuchung zu unterwerfen.

Deshalb sollen in der PAMELA-Anlage sowohl Vitromet- als auch Glasblöcke in etwa gleicher Anzahl hergestellt werden.

Unter Berücksichtigung der aufgeführten Änderungen wurde das HAW-F+E-Programm Anfang Oktober 1978 überarbeitet und gleichzeitig mit einem neuen Titel versehen.

Es heißt seitdem "Technologieprogramm zur HAW-Verfestigung".

Das Programm wurde Ende Oktober 1978 dem BMFT-Sachverständigenkreis "Behandlung und Beseitigung radioaktiver Abfälle" vorgestellt und im November 1978 verabschiedet.

Die Projektleitung wurde der DWK übertragen, die ihrerseits wieder gemäß der Aufgabenteilung im Firmenverband WAK-E beauftragte.

Als Bearbeiter wurden folgende F+E-Partner (aufgeführt in alphabetischer Reihenfolge) einbezogen :

DWK	Mol/Belgien
Eurochemic	Mol/Belgien
HMI	Berlin
KFA	Jülich
KFK	Karlsruhe
NUKEM	Hanau
SCK/CEN	Mol/Belgien

Insgesamt gibt es bei den aufgeführten Partnern für das HAW-Technologieprogramm im Jahre 1981 einen Personaleinsatz von ca. 89 MJ. Die Aufteilung dieses Personaleinsatzes gibt Abb. 2 wieder.

Gliederung des Technologieprogramms und erwartete Ergebnisse

Das HAW-Technologieprogramm ist in acht Abschnitte gegliedert.

Die folgende Tabelle gibt diese Aufgliederung sowie die Beteiligung der F+E-Partner an den einzelnen Abschnitten wieder.

	KfK	DWK/ Mbl	Euro- chemic	HMI	NUKEM	KFA	SCK/ CEN
5.110 Feed-System	X	X					
5.120 Verglasung im keramischen Ofen	X	X					
5.130 Abgasstrecke	X	X				X	X
5.140 Glasblockstraße	X	X			X		
5.150 Vitrometstraße			X		X		
5.160 Fernbedienungs- technik	X				X		
5.170 Produktentwick- lung und -charak- terisierung	X		X	X			
5.180 Prozeßkontrolle und Betriebs- analytik	X	X	X				X

Die Abschnitte 5.110 bis 5.150 sind in die Teilpunkte

1. Komponenten
2. Abklärung von Verfahrensweisen
3. Notwendige Untersuchungen
4. Betriebsstörungen

gegliedert.

In den Abschnitten 5.150 bis 5.180 ist die Gliederung den Erfordernissen gemäß modifiziert.

1. Komponenten

Im Rahmen dieses Teilpunktes wird die "Hardware" der Ver-
glasungsanlage konstruiert, erprobt, optimiert und einem
Dauertest unterworfen. Gleichzeitig müssen die Standzeit
und die Verfügbarkeit der Komponenten bestimmt werden.
Als Ergebnisse fallen Auslegungsdaten, Konstruktions-
zeichnungen und Beschreibungen an.

2. Abklärung von Verfahrensweisen

Häufig ist erst nach Erprobung gleich qualifiziert er-
scheinender Verfahrensweisen eine Entscheidung möglich.
Als Ergebnis werden detaillierte Angaben zur Verfahrens-
führung und zum Betrieb der unter 1. entwickelten Kompo-
nenten erwartet.

3. Notwendige Untersuchungen

Verschiedentlich sind zur Komponentenentwicklung oder zur
Bestimmung der am besten geeigneten Verfahrensweise ent-
sprechende Untersuchungen notwendig. Diese Untersuchungen
sind in diesem Teilpunkt aufgeführt. Die Ergebnisse
werden in Form von Untersuchungsberichten abgeliefert.

4. Betriebsstörungen

Unter Betriebsstörungen werden Störungen des normalen Betriebsablaufs und zu Versuchszwecken gezielt herbeigeführte Betriebsstörungen verstanden.

Die aufgeführten Arbeitsschritte stellen die denkbaren Betriebsstörungen nach dem derzeitigen Stand der Technik dar. Die Liste wird mit zunehmender Erfahrung - evtl. gemeinsam mit dem Planer - erweitert. Als Ergebnisse werden die Dokumentation der aufgetretenen Betriebsstörungen mit Angabe der Ursachen und Folgen und Vorschläge zur Verhinderung oder Beseitigung erwartet.

Bei simulierten Betriebsstörungen sind die Versuchsprotokolle und eine Beschreibung der Auswirkungen auf den Betrieb notwendig.

Überblick über den aktuellen Stand der Arbeiten bei den
einzelnen F+E-Partnern

Lassen Sie mich hier mit den Arbeiten in der KFK beginnen, die einen ganz wesentlichen Beitrag auf dem Wege zur Realisierung des PAMELA-Vorhabens darstellen.

In der Abteilung Verfahrenstechnik des Instituts für Nukleare Entsorgungstechnik liegt der Schwerpunkt z. Zt. beim Aufbau und der Inbetriebnahme einer Verglasungslinie mit dem Namen VA-3.

Mit dieser Linie werden in den Jahren 1982 und 1983, also vor der kalten Inbetriebnahmephase der PAMELA-Anlage in Mol, repräsentative Betriebsergebnisse zum Verfahrensablauf gewonnen, die ohne Einschränkungen übertragbar sind.

In der Verglasungslinie VA-3 werden die Hauptkomponenten des Verfahrens im 1 : 1 Maßstab nach der für PAMELA vorliegenden Aufstellungsplanung installiert. Von den Betriebsergebnissen wird u. a. eine wesentliche Erleichterung und Abkürzung der kalten Inbetriebnahmephase bei PAMELA erwartet. Der Schwerpunkt liegt dabei bei der Glasblockproduktion ("Glasblockstraße", siehe Abb. 3, linke Spalte).

Der Aufbau der Verglasungslinie VA-3 in der INE-Technikums-halle Bau 712 ist bereits weit fortgeschritten. Das Antempfern des Schmelzofens K-3, der das Herzstück der Verglasungslinie darstellt, soll im November 1981 erfolgen.

Die Fertigstellung der gesamten Linie ist für Ende Juli 1982 vorgesehen.

Parallel zum Aufbau der Linie VA-3 läuft z.Zt. der Betrieb der Vorgänger-Linie VA-2. Ein erster 235 h-Dauerversuch im I. Quartal 1981 lieferte wertvolle Erkenntnisse für die weiteren Arbeiten und führte zur Optimierung verschiedener Einzelkomponenten und der Glasmatrix. Bei KFK-INE beschäftigt man sich außerdem mit der Untersuchung des Zustandes bzw. der Eigenschaften von Glasblöcken im 1 : 1 - Maßstab.

Zwar kein direkter Teilnehmer des HAW-Technologieprogramms, aber dem Programm assoziiert, ist die Projektteilung B der Hauptteilung Ingenieurtechnik der KFK (KFK-IT). Hier liegt der Schwerpunkt der Arbeiten für PAMELA beim Aufbau eines Modells der Ofenzelle im Maßstab 1 : 1 zur Entwicklung und Demonstration der Techniken zum fernbedienten Ein- bzw. Ausbau aller Austauschkomponenten. Der Aufbau des Modells ist inzwischen in wesentlichen Punkten abgeschlossen.

Mit dem Vorliegen der abschließenden Dokumentation der Ergebnisse, besonders im Hinblick auf die Wechseltechnik, wird gegen Mitte 1983 gerechnet.

Nun lassen Sie mich zu den F+E-Partnern außerhalb der KFK übergehen.

Bei der Fa. Nukem war einer der Schwerpunkte der Arbeiten die Erstellung eines 1 : 5 - Modells der PAMELA-Ofenzelle.

Dieses Modell ist inzwischen fertiggestellt. Ein weiterer Schwerpunkt liegt bei der Entwicklung und Erprobung von Werkzeugen und Hilfsvorrichtungen für die PAMELA-Zerlegezelle. In dieser Zelle soll u.a. die Zerlegung eines zu verschrotenden Keramikschmelzers wie auch die Zerkleinerung von überfüllten Glasblockkokillen möglich sein.

Der Aufbau eines entsprechenden Versuchsstandes ist bei Nukem weitgehend abgeschlossen.

Einen weiteren Punkt stellt die Konstruktion und Fertigung des Kokillenhubwagens sowie der Kokillen-Deko-Station dar.

Die KFA Jülich ist beim HAW-Technologieprogramm mit Arbeiten zur Abgasstrecke beteiligt. Es handelt sich zum einen um Versuche zum Einsatz eines Massenspektrometers in Kopplung an eine Themowaage. Mit diesem System soll die Verflüchtigung verschiedener Spezies aus einer Glasschmelze bei verschiedenen Versuchsbedingungen ermittelt werden.

Außerdem werden grundlegende Untersuchungen zur Rutheniumverflüchtigung durchgeführt.

Im HMI Berlin liegt der Schwerpunkt der Arbeiten bei der Glasentwicklung und -untersuchung.

Dabei müssen die z. T. gegensätzlichen Anforderungen von der Prozeßseite und von der Qualität des Produkts her berücksichtigt werden.

Nach der näheren Untersuchung von sechs in Frage kommenden Borosilikatglaszusammensetzungen konnte Ende Juli 1981 eine Glasfritte für die weiteren Arbeiten vorgegeben werden.

Weitere Arbeiten beschäftigen sich mit der Untersuchung der zulässigen Bandbreite der Konzentration verschiedener Wastebestandteile im Glas, mit Fragen der Korrosivität der Glasschmelze in Bezug auf die Ofenmaterialien und mit einer weiteren Detailoptimierung der Auslaugbeständigkeit.

Die übrigen drei F+E-Partner führen ihre Arbeiten in Mol/ Belgien, also am Standort der zukünftigen PAMELA-Anlage durch. Dazu gehören das belgische Studiecentrum voor Kernenergie (SCK), die Eurochemic und das HAW-Technikum der DWK.

Im SCK beschäftigt man sich in erster Linie mit der Rückhaltung von flüchtigen Rutheniumverbindungen im Ofenabgas-system sowie mit abgasanalytischen Problemen.

Zur Rückhaltung von Ruthenium werden Silicagel und Eisenoxid/ Chromoxid untersucht. Die Abgasanalyse umfaßt in erster Linie Verfahren zur In-Line Messung von NO und NO₂ sowie von SO₂ und SO₃.

Im HAW-Technikum Mol der DWK konzentrieren sich die Arbeiten zur Zeit auf Aufbau und Inbetriebnahme der Verglasungslinie KS-2. Der Schwerpunkt beim Betrieb dieser Linie wird auf der Produktion von Vitromet-Produkten (Glasperlen in Metallmatrix) liegen ("Vitrometstraße", siehe Abb. 3, rechte Spalte).

Die Verglasungslinie hat den Maßstab 1 : 1 zur zukünftigen PAMELA-Anlage. Die Ausführung erfolgte so projektnahe wie unter den gegebenen Umständen möglich, jedoch mußten besonders bei der Infrastruktur Kompromisse gemacht werden.

Bei der Realisierung wurden die Erfahrungen berücksichtigt, die beim Betrieb zweier keramischer Öfen in kleinerem Maßstab in den vergangenen Jahren gewonnen wurden.

Die Verglasungslinie KS 2 ist weitgehend fertiggestellt.

Der keramische Schmelzofen KS-2 soll im November 1981 angetempert und in Betrieb genommen werden. Nach Durchführung zahlreicher Funktionstests soll Anfang 1982 mit einem repräsentativen Betrieb der Verglasungslinie unter Flüssigeinspeisung von Waste-Simulat begonnen werden.

Dem Ofen nachgeschaltet wird die Anlage zur Glasperlenproduktion.

Dieser Anlagenteil gehört zum Aufgabenbereich der Eurochemic. Diese beschäftigt sich mit den Entwicklungsarbeiten zur Vitrometproduktion. Dazu gehören vor allem die Produktion von Glasperlen und die sich anschließende Einbettung der Perlen in eine Bleimatrix.

Der Aufbau einer Anlage zur Glasperlenproduktion und einer Einheit zur Metalleinbettung im 1 : 1 - Maßstab sind z. Zt. im Gange. Dabei werden die Erfahrungen genutzt, die beim Betrieb entsprechender Einheiten im kleineren Maßstab gewonnen wurden. Die Glasperlenproduktion erfolgt unterhalb des keramischen Schmelzofens KS-2.

Ein echter Koppelbetrieb zwischen keramischem Ofen und Glasperlenproduktion, d.h. ein repräsentativer Gesamtbetrieb der Vitrometlinie, dürfte etwa Ende des I. Quartals 1982 möglich sein.

Eine zusammenfassende Darstellung der Modelle bzw. Mock-up-Anlagen zur Erarbeitung der repräsentativen Verfahrens-, Hantierungs- und Wechseltechnik für PAMELA gibt Abb. 4.

Das HAW-Technologieprogramm ist auch in den internationalen Erfahrungsaustausch eingebunden. Hier ist in erster Linie die enge Zusammenarbeit mit den USA im Rahmen des "Cooperative Radioactive Waste Management Agreement" zwischen der Bundesrepublik und den Vereinigten Staaten zu nennen, welches seit Anfang dieses Jahres praktiziert wird. Mehrere gegenseitige Besuche von Expertengruppen mit Besichtigungen der jeweiligen Versuchsanlagen und Fachdiskussionen brachten zahlreiche Anregungen und praktische Ergebnisse.

Auch mit Japan wird im Rahmen eines Vertrages zwischen KFK und PNC (Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation) ein Erfahrungsaustausch gepflegt.

Ein sehr wichtiger Punkt ist die zeitliche Koordinierung der Entwicklungsarbeiten mit dem Zeitplan für Bau und Inbetriebnahme der heißen PAMELA-Anlage in Mol.

Die Bauarbeiten in Mol haben Mitte dieses Jahres begonnen, die offizielle Grundsteinlegung erfolgte am 8.9.1981.

Die Montage der Hauptverfahrenskomponenten ist für den Zeitraum zweite Hälfte 1983 bis Anfang 1984 vorgesehen.

Berücksichtigt man die notwendigen Vorlaufzeiten für Vergabevorbereitung, Angebotsausarbeitung sowie Fertigung und Lieferung, so wird klar, daß die Verfahrenskomponenten bis spätestens Ende 1981 im wesentlichen festgeschrieben sein müssen. Einen Spielraum zum Einbringen neuer Entwicklungen gibt es nicht mehr. Das schließt natürlich nicht aus, daß Detailänderungen, die sich als dringend erforderlich erweisen sollten, noch berücksichtigt werden.

Die wesentlichen Aufgaben des HAW-Technologieprogramms für die Jahre 1982 und 1983 sehen wie folgt aus :

- Inaktive Demonstration der technischen Durchführung der Borosilikatverglasung im 1 : 1 Maßstab mit den Verglasungslinien in Karlsruhe und Mol. Trocknen, Kalzinieren und Verglasen des flüssigen LEWC-Simulats werden unter Zusatz von Glasfritte kontinuierlich in elektrisch direktbeheizten keramischen Schmelzöfen durchgeführt.

Die vom HMI im Labormaßstab entwickelte und charakterisierte Glasfritte muß im 1 : 1 Maßstab erprobt werden.

- Untersuchung des Verhaltens der Anlagekomponenten im Verbundbetrieb, wobei besonders das Steuer- und Regelverhalten der Linien erprobt werden muß.

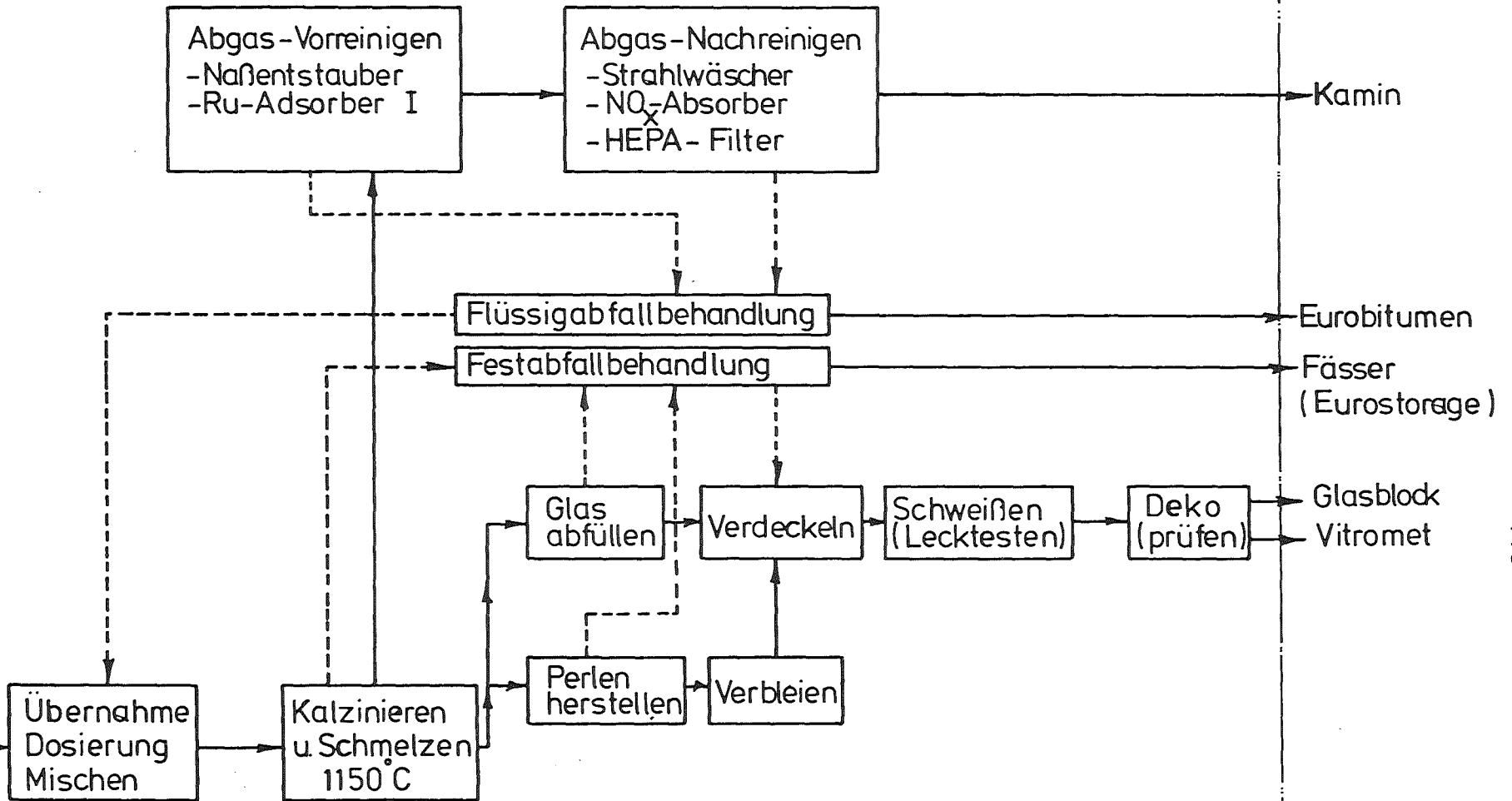
- Nachweis der Dauerstandfestigkeit von Komponenten bzw. Werkstoffen in mehreren Betriebskampagnen bei Dauer- und Wechselbelastung.
- Ermittlung von Betriebsstörungen. Beseitigung unter Fernbedienungsbedingungen. Erarbeitung der Konsequenzen für PAMELA.
- Erarbeitung der Grundlagen für das Interventions-, Wechsel- und Reparaturkonzept für PAMELA (auf der Basis des 1 : 1 - Modells und der Mock-up Anlagen).
- Ermittlung der Bandbreiten von Prozeßparametern im Hinblick auf die Änderung von Produkteigenschaften (Qualitätsicherung des Produkts). Festschreibung des Betriebskonzepts.
- Feinoptimierung des Glases.
- Personalschulung für Betrieb PAMELA.

Abschließend kann festgestellt werden, daß sich die Zusammenfassung aller HAW-Entwicklungsaktivitäten im Rahmen des "HAW-Technologieprogramms" im Jahre 1978 als ein sehr erfolgreicher Schritt erwiesen hat.

Die zügige Realisierung des PAMELA-Projektes wurde dadurch ganz wesentlich unterstützt, ja erst ermöglicht. Allen F+E-Partnern sei deshalb an dieser Stelle für ihre bisherige intensive und wertvolle Mitarbeit gedankt. Besonderen Dank möchte ich gerade hier in Karlsruhe den beteiligten Mitarbeitern von KFK aussprechen, deren Arbeiten einen ganz wesentlichen Stützpfiler des HAW-Technologieprogramms darstellen.

PAMELA- VERGLASUNGSANLAGE

LEWC-Tank



Grundfließbild

ABBILDUNG 1

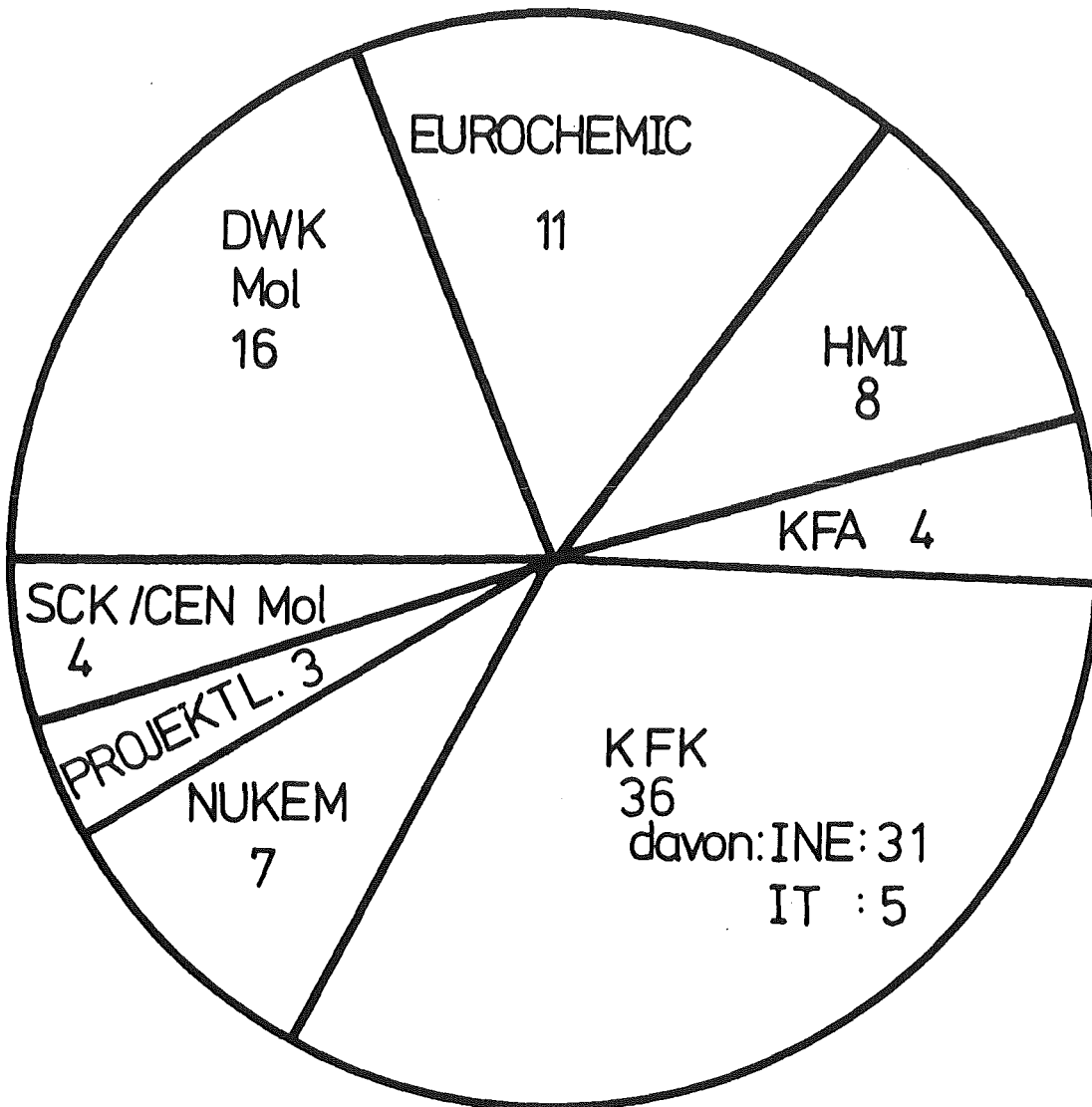
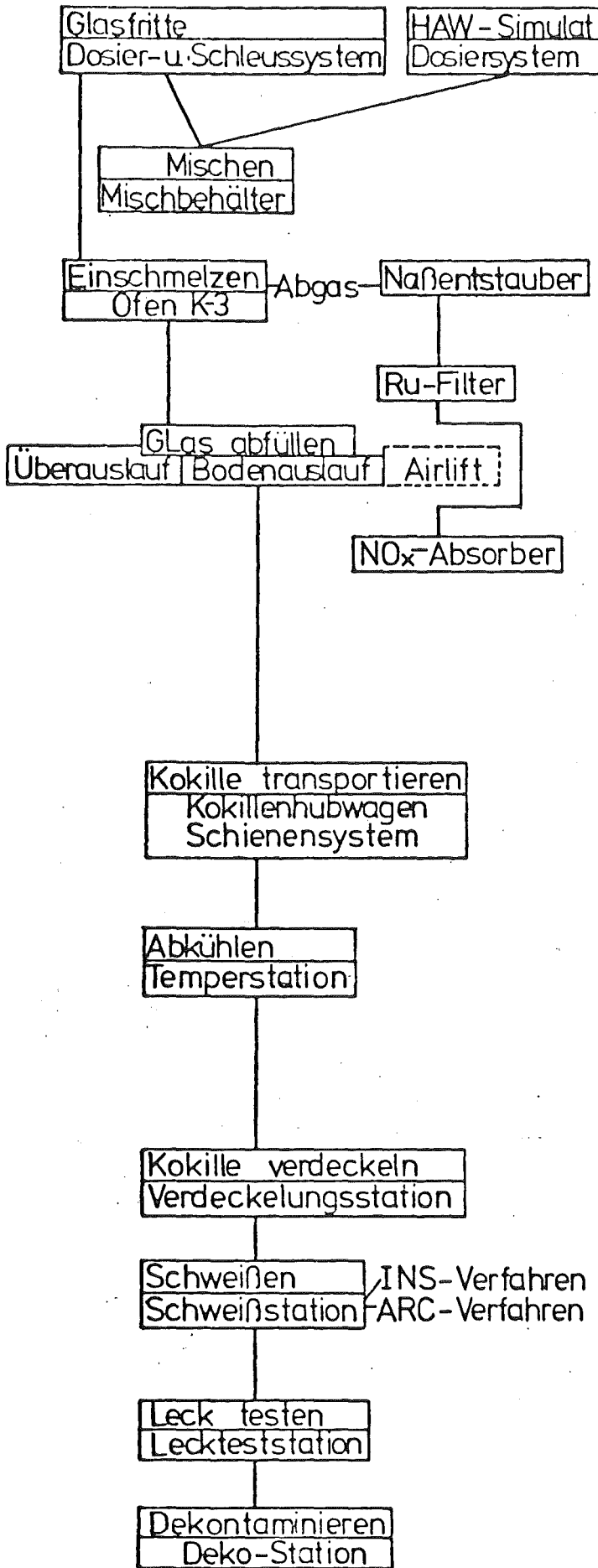
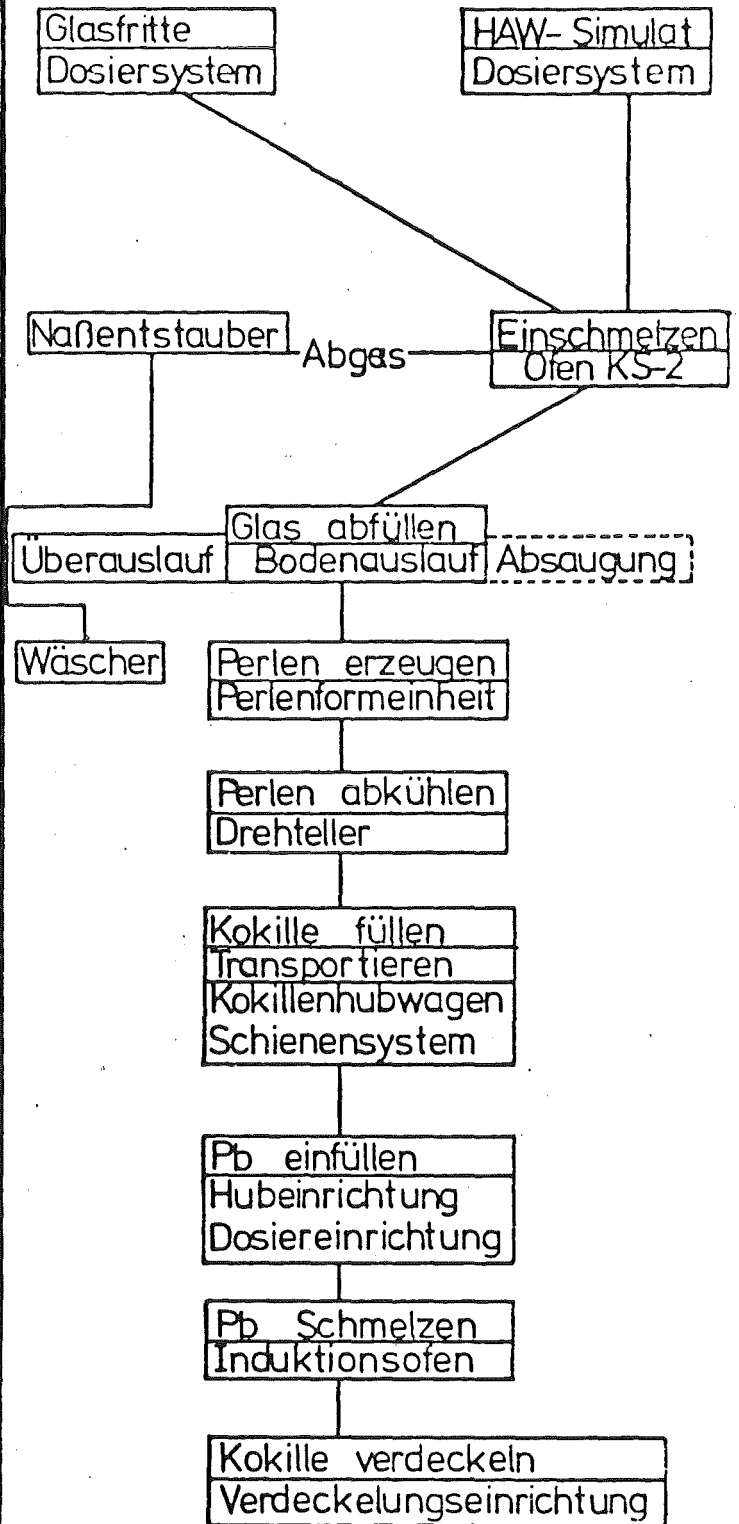


ABBILDUNG 2 : Personaleinsatz für das
HAW - Technologieprogramm
im Jahre 1981 (MJ)



Glasblockstraße
(KFK-INE)



Vitrometstraße
(DWK-Mol/Eurochemic)

ERARBEITUNG DER REPRÄSENTATIVEN VERFAHRENS-, HANTIERUNGS- UND WECHSELTECHNIK FÜR PAMELA

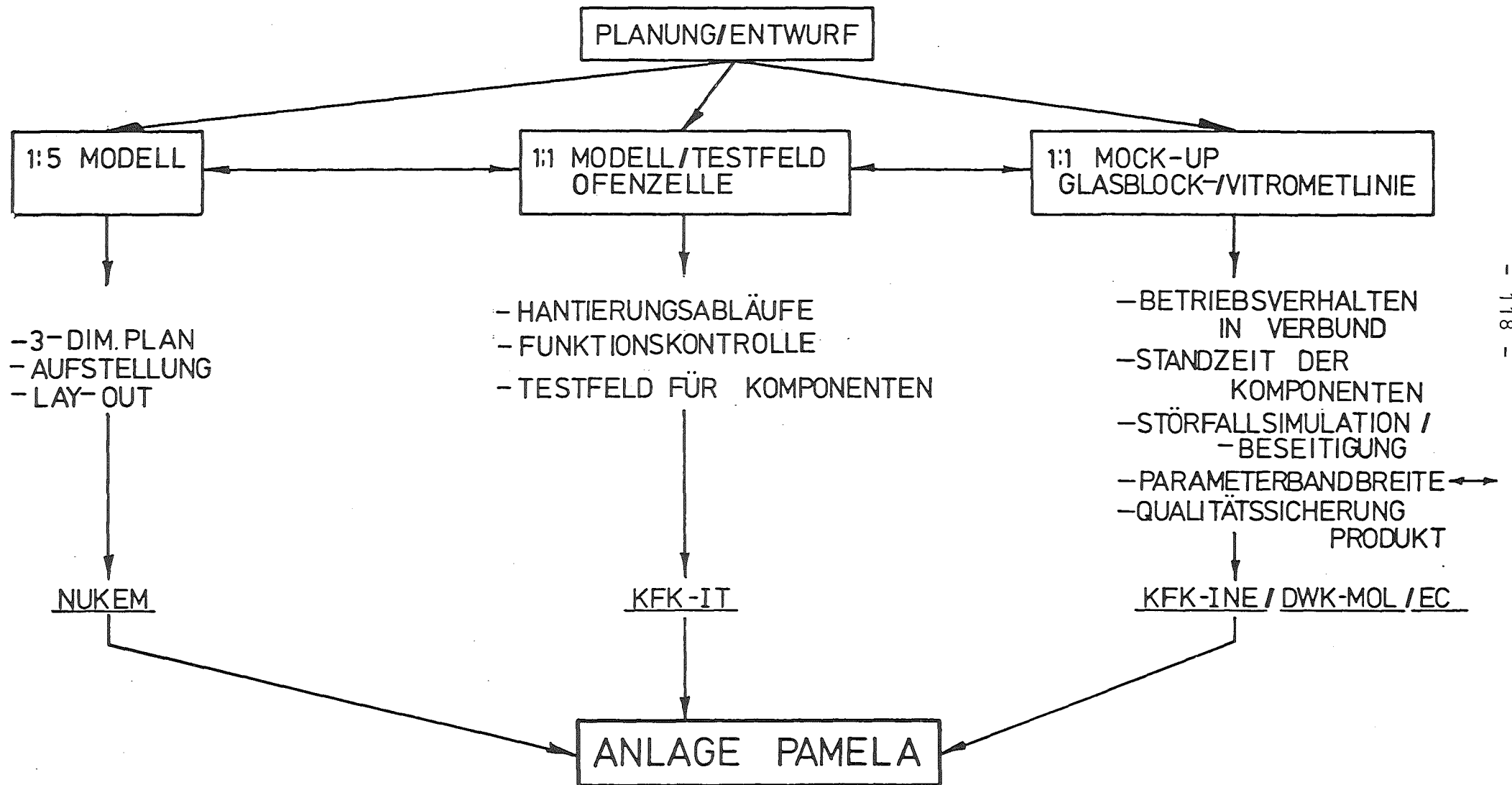


ABBILDUNG 4

FILTERSTRECKE ZUR AEROSOL- UND IODABSCHIEDUNG AUS DEM
AUFLÖSERABGAS EINER ZUKÜNFTIGEN WIEDERAUFARBEITUNGSANLAGE

J. G. Wilhelm, J. Furrer, R. Kaempffer, A. Linek

Kernforschungszentrum Karlsruhe
Laboratorium für Aerosolphysik und Filtertechnik

1. Einleitung

Im Auflöserabgas einer Wiederaufarbeitungsanlage entstehen Tropfenaerosole, die in ihrer Zusammensetzung annähernd der Brennstofflösung entsprechen. Sie werden vom Auflöserabgas in den nachgeschalteten Kondensator und in die Waschkolonnen zur NO₂-Absorption transportiert. Dabei werden die Tropfenaerosole teilweise ausgewaschen oder an Oberflächen abgeschieden sowie neue Tropfenaerosole erzeugt, so daß sich ihre Zusammensetzung und Konzentration laufend ändert. Weiter werden in das Auflöserabgas Edelgase und Spaltiod freigesetzt. Das Spaltiod geht teilweise in das Kondensat und die rückgewonnene Säure über. Aus dem Abgas kann es durch Chemisorption an festen Filtermaterialien oder durch Naßwaschverfahren entfernt werden.

Das größte Potential für die Umgebungsbelastung einer WA ist durch die nicht flüchtigen Spaltprodukte, die Transurane und den Brennstoff gegeben. Für den aerosolförmig in das Abgas übertretenden Anteil dieser Stoffe ist ein Gesamtab-schidegrad von > 99,999 % zu fordern. Das Spaltiod ist mit Ab-

scheidegraden > 99 % zurückzuhalten. Genauere Werte können nur bei Kenntnis der lokalen Bedingungen angegeben werden. Von den gas- bzw. dampfförmig auftretenden Radioisotopen hat das Spaltiod die größte Bedeutung für die Umgebungsbelastung; dies gilt sowohl für die Teilkörper-Äquivalentdosis als auch die effektive Äquivalentdosis (nach ICRP 26) der kritischen Bevölkerungsgruppe /1/.

Das im LAF II erarbeitete und für eine zukünftige deutsche WA zur Schwebstoff- und Iodabscheidung aus dem Auflöserabgas entwickelte Verfahren schließt eine Feintropfen- und Feststoffabscheidung an einem Faserpaketabscheider mit Abscheidegraden > 99 % und eine Iodabscheidung durch Chemisorption an festen Iod-Sorptionsmaterialien ein. Die am Faserpaketabscheider anfallende Flüssigkeit dient gleichzeitig als Transportmittel für die abgeschiedenen radioaktiven Feststoff-Partikel, so daß eine Selbstabreinigung erfolgt; lange Standzeiten des Abscheiders können erwartet werden, eine Rückführung der abgeschiedenen Stoffe in den Prozeß wird ermöglicht. Der Anfall an kontaminierten Schwebstofffiltern wird wesentlich reduziert. Die Iodabscheidung am Festbettfilter führt im Gegensatz zu Naßwaschverfahren in einem einzigen Schritt zu einem festen, lagerungsfähigen Endprodukt.

Untersuchungen zur Wirtschaftlichkeit der Spaltiodabscheidung mit dem dafür hier entwickelten AC 6120 im Vergleich und in Kombination mit einem Naßwaschverfahren (alkalische Waschlösung, anschließende Überführung des Spaltiodes in PbI_2) wurden vor kurzem vom Centre Etudes Atomique in Zusammenarbeit mit Saint Gobain Nucléaire durchgeführt und veröffentlicht. Als kostengünstigste Lösung wurde die Abscheidung des gesamten Spaltiodes aus dem Auflöserabgas an AC 6120 angegeben /2/.

2. Experimentelle Arbeiten

Zur Erprobung der zur Schwebstoff- und Iodabscheidung gemeinsam von LAF II und IT entwickelten Komponenten wurde die Versuchsanlage PASSAT entwickelt (Abb. 1), die im LAF II betrieben wird und Versuche mit simuliertem, stickoxidhaltigen Auflöserabgas unter Einspeisung von Aerosolen und Iod erlaubt. Mit dieser Anlage wurden zuerst sicherheitstechnische Funktionsnachweise erbracht, die von den Genehmigungsbehörden vor dem Einbau einzelner Filterkomponenten in eine verbesserte Abgasstrecke der WAK gefordert wurden. Ziel des z. Z. laufenden Versuchsprogramms ist die Gewinnung von Daten zur optimalen Auslegung einer Auflöser-Abgasstrecke. Der bisher durchgeführte Programmteil betraf Messungen am Feintropfenabscheider (Faserpaketabscheider) und Iodfilter. Beide Komponenten wurden als fernbedienbare Einheiten konstruiert und in die PASSAT eingebaut.

2.1 Faserpaketabscheider

Die Filterpatrone des Faserpaketabscheiders besteht im Prinzip aus einer Faserpackung, die konzentrisch um einen aus einem Stützgitter gebildeten Hohlzylinder angeordnet ist und durch ein äußeres Stützgitter gehalten wird (Abb. 2). Ein Aufbau aus nicht gesinterten Glasfasern mit einem Durchmesser von 10 - 20 μm , einer Packungsdicke von 50 mm und einer Packungsdichte von 230 kg/m^3 wurde aufgrund von Vorversuchen mit verschiedenen Filterpatronen ausgewählt /3/. Um eine möglichst große Fläche zur Ablagerung von Partikeln zur Verfügung zu haben wird die Filterpatrone von außen angeströmt. Der Aufbau des fernbedienbaren Filtergehäuses geht aus Abb. 3 hervor. Zur zusätzlichen Abreinigung von eventuell auskristallisierenden Salzen und von Feststoffpartikeln sind in das Filtergehäuse Sprühdüsen eingebaut, die eine intensive Abreinigung der Filterpatrone in eingebautem Zustand ermöglichen. Eine kontinuierliche Dichtsitzprüfung, die während des Filterbetriebes eine sofortige Leckageerkennung

erlaubt, wird durch eine Ringnut ermöglicht, die durch die Dichtung der Filterpatrone beim Einsetzen in das Gehäuse verschlossen und mit einem geringen Überdruck der fortlaufend anstehenden Prüfluft belastet wird. Leckagen werden durch einen Abfall des Prüfdruckes angezeigt. Weitere Einzelheiten können /4/ entnommen werden.

Die Abscheidung größerer Tropfen ($d > 10 \mu\text{m}$) im Faserpaket erfolgt vorwiegend durch den Sperr- und Trägheitseffekt. Bei der Abscheidung sehr kleiner Partikel spielt der Diffusionseffekt eine entscheidende Rolle. Die abgeschiedenen Tropfen werden durch das Trägergas ins Innere des Faserpaketes befördert und laufen nach unten ab, so daß eine kontinuierliche Drainage des Faserpaketes erfolgt.

Ein wesentlicher Anteil der Untersuchungen betraf die Bestimmung der Abscheideleistung des Faserpaketabscheiders gegenüber Feintropfen und Feststoffpartikeln. Außerdem wurden folgende Betriebsparameter ermittelt: Verteilung der abgeschiedenen Partikeln über die Anströmfläche sowie Gleichgewichtsbeladung in Abhängigkeit von Gasdurchsatz und Aerosolkonzentration, Druckabfall in Abhängigkeit vom Durchsatz, Flüssigkeitsbedarf zur Freispülung des Faserpaketes und benötigte Trocknungszeiten vor dem Auswechseln.

2.1.1 Bestimmung des Abscheidegrades gegenüber Tropfenaerosolen

Zur Erzeugung von Tropfenaerosolen mit einem Häufigkeitsmaximum bei Tropfendurchmessern $< 10 \mu\text{m}$, die sich besonders schwer abscheiden lassen und daher als Testaerosole ausgewählt wurden, konnte die Zerstäubung über eine Zweistoffdüse (Luft/Wasser) eingesetzt werden. Die erzielte Tropfengrößenverteilung kann der Abb. 4 entnommen werden. Die Bestimmung von Tropfengröße und Zahl wurde durch Streulichtmessung in einem so kleinen abgegrenzten Meßvolumen ($100 \mu\text{m}$ Kantenlänge) in Teilströmen des Abgases vor und hinter dem Faserpaketabscheider vorgenommen, daß auch bei höheren

Partikelkonzentrationen koinzidente Signale des von den einzelnen Partikeln rückgestreuten Lichtes weitgehend ausgeschlossen werden konnten. Die Intensität des rückgestreuten Lichtes kann daher zur Bestimmung des Partikeldurchmessers verwendet werden, die Teilchenzahl und damit Konzentration ergibt sich aus der Signalzahl pro Zeiteinheit und dem durchgesetzten Gasvolumen.

Ergebnisse

Zuerst seien die auf die Partikelzahl bezogenen Abscheidegrade erwähnt. Werden sie für die kleinsten und damit am schlechtesten abzuscheidenden Tropfen bestimmt, ergeben sich Abscheidegrade, die auch bei ungünstigsten Partikelgrößenverteilungen der im Prozeß auftretenden Aerosole (unbekannter Zusammensetzung) nicht unterschritten werden. Hinzu kommt, daß die Masse der abgeschiedenen Flüssigkeit vorwiegend in den größeren Tropfen enthalten ist; der die Abgabe von radioaktiven Stoffen bestimmende Massenabscheidegrad also höher liegen muß. Die durchmesserspezifischen Abscheidegrade lagen überwiegend zwischen 99,8 und 99,99991 % (Abb. 5). Dies entspricht Dekontaminationsfaktoren zwischen 500 und $2 \cdot 10^6$. Eine Abhängigkeit der Tropfenabscheidung vom Volumenstrom konnte im Bereich der untersuchten Gasdurchsätze ($75 - 150 \text{ m}^3/\text{h}$) nicht festgestellt werden.

Da kleine Flüssigkeitstropfen schnell verdunsten und so hohe Abscheidegrade vortäuschen können, wurden Messungen mit Salzlösungen durchgeführt, bei denen die Massen des auf Kernporenfiltern abgeschiedenen Salzes aus Roh- und Reingas bestimmt und verglichen wurden. Da sich durch Verdunstung zwar die Tropfen- bzw. Teilchengröße bis herab zum Salzpartikel reduzieren kann, die Salzmenge aber nicht verändert wird, können mit dieser Methode massenbezogene Abscheidegrade unabhängig von Verdampfungsverlusten gemessen werden. Die so gemessenen massenbezogenen Abscheidegrade lagen bei allen Versuchen über 99,9 % /3/.

2.1.2 Bestimmung des Abscheidegrades gegenüber Feststoffaerosolen

Zur Messung der Abscheideleistung gegenüber Feststoffpartikeln wurden Prüfaerosole aus Na-Fluorescein (Uranin) mit einem mittleren Partikeldurchmesser von ca. $0,12 \mu\text{m}$ in das Rohgas vor dem Faserpaketabscheider eingespeist. Es ergaben sich Dekontaminationsfaktoren > 1000 ; entscheidend für die Abscheidung war offensichtlich der Diffusionseffekt, dementsprechend wurde ein Ansteigen des Abscheidegrades mit sinkendem Durchsatz und damit sinkender linearer Gasgeschwindigkeit festgestellt /3/ (Abb. 6).

2.1.3 Abreinigung des Faserpaketabscheiders

Durch die sich auf den Fasern aus dem Auflöserabgas abscheidenden bzw. auskristallisierenden Stoffe wird der Strömungswiderstand und die Ortsdosisleistung des Faserpaketabscheiders erhöht. Tritt trotz der laufenden Abreinigung durch die abgeschiedenen Tropfen eine unzulässige Erhöhung des Differenzdruckes ($> 4000 \text{ Pa}$) bzw. der Ortsdosisleistung ($> 80 \text{ mrem/h}$ an der Gehäuseoberfläche) auf, sollte ein Verfahren verfügbar sein, mit dem der Abscheider in eingebautem Zustand gereinigt werden kann.

Die im Abgas einer WA auftretenden Salzpartikeln wurden soweit wie möglich durch einen Natriumnitratnebel simuliert, der in das Rohgas eingesprüht wurde. Durch die Aufgabe von insgesamt 130 g Natriumnitrat wurde die Salzbeladung simuliert, die sich innerhalb von 4 Tagen bei einer angenommenen Feststoffkonzentration von 10 mg/m^3 ohne Selbstabreinigung aufbaut. Mit einem Aufwand von insgesamt 30 l Spülwasser, das in einer WA als flüssiger mittelaktiver Abfall anfallen würde, konnte bei geeigneter Düsenanordnung und impulsweisem Besprühen nach einer Dauer von ca. 5 h der ursprüngliche Differenzdruck wieder erreicht werden.

Vor dem Wechsel des Faserpaketabscheiders muß dieser durch Spülung von radioaktiven Stoffen dekontaminiert werden.

Dazu sollte der Verbrauch an Spülflüssigkeit bekannt sein. Diese Werte konnten durch Einsatz von $^{139}\text{Ba}(\text{NO}_3)_2$ erhalten werden. Praktisch die gesamte eingelagerte Aktivität konnte mit 75 l H_2O bei einer Spüldauer von 15 min entfernt werden. Durch das eingelagerte Spülwasser wird beim Reinigungsvorgang der Differenzdruck kurzzeitig noch über den Ausgangswert erhöht. Der maximal auftretende Differenzdruck kann durch mehrmaliges Einspritzen von kleinen Spülwassermengen kleiner gehalten werden als bei einmaliger, länger andauernder Spülung, allerdings ist der Wasserverbrauch insgesamt etwas höher /5/. Die Abb. 7 zeigt den Austrag der Aktivität und den Verlauf des Differenzdruckes bei einer einmaligen Spülung; die Abb. 8 den Aktivitätsaustrag bei mehrmaliger Spülung. (GFAMA = Glasfasermattenabscheider)

2.1.4 Flächenbelegung des Faserpaketes durch abgeschiedene Schwebstoffe, Bildung von Sekundäraerosolen

Eine möglichst gleichmäßige Flächenbelegung des Faserpaketes mit den abzuschheidenden Schwebstoffen ist in Hinsicht auf lange Einsatzzeiten anzustreben. Durch Beladung mit einer $^{56}\text{Mn}(\text{NO}_3)_2$ Lösung und Ausmessung der Dosisleistung an verschiedenen Punkten des Filtergehäuses mit einem Dosisleistungsmeßgerät und Kollimator konnte eine annähernd gleichmäßige Beladung nachgewiesen werden.

Durch Bestimmung der Laufzeit der aerosolförmigen Aktivität durch den Abscheider kann festgestellt werden, ob Sekundäraerosole durch Tropfenabriß im Faserpaket entstehen oder ob auf der Reingasseite nur der nicht abgeschiedene Anteil der primär aufgegebenen Tropfenaerosole erscheint. Dazu ist eine gepulste Aufgabe des radioaktiven Prüfaerosols notwendig, da Sekundäraerosole am verzögerten Auftreten der Aktivität auf der Reingasseite zu erkennen sind. Zur Bestimmung der Laufzeit des Trägergases durch den Abscheider wurde ^{41}Ar benutzt. Die Laufzeit der radioaktiven Tropfenaerosole entsprach der des ^{41}Ar , Sekundäraerosole traten also nicht auf.

Die angewandten radioaktiven Meßverfahren wurden vom LIT entwickelt, das auch die experimentelle Durchführung betreute. Wir sind besonders Herrn Dr. Merz vom LIT zu Dank verpflichtet. Die Abb. 9 zeigt den Versuchsaufbau zur Ermittlung von Beladungs- und Spüldaten.

2.1.5 Trocknungszeiten

Falls der Differenzdruck des Faserpaketabscheiders bei Nenn-durchsatz durch Spülen nicht mehr unter 4000 Pa abgesenkt werden kann, ist ein Auswechseln der Filterpatrone vorgesehen. Dabei darf die Filterzelle nicht durch abtropfende radioaktive Lösung kontaminiert werden. Im Interesse eines zügigen Betriebes muß die Trocknungszeit der zu wechselnden Patrone so kurz wie möglich gehalten werden. Bei Spülung des Abscheiders mit Luft von 90 °C und 2 % r. F. wurden bei einem Durchsatz von 50 m³/h 6 Stunden benötigt bis die relativen Gasfeuchten der Zu- und Abluft des Abscheiders einander entsprachen. Diese Werte gelten allerdings nur für eine vorausgegangene Beladung mit Wasser, bei Anwesenheit von Salzen werden längere Zeiten erwartet.

2.2 Iod-Verhalten und Iod-Abscheidung im 1 : 1 Versuch

Bei den bereits seit 1975 in der WAK erprobten Verfahren zur Iodabscheidung /6/ wurde ein Konzept verwirklicht, bei dem das Iod aus den Auflöserabgasen an Tiefbett-Filtern nahezu quantitativ abgeschieden wird. Das gleiche Verfahren ist für zukünftige Wiederaufarbeitungsanlagen vorgesehen.

Die Iodabscheidung erfolgt durch Reaktion der Iodverbindungen am Iod-Sorptionsmaterial AC 6120 in einem zweistufigen Iodfilter, dessen 1. Stufe zur Silberersparnis möglichst erschöpfend beladen werden muß, während die zweite Stufe als Sicherheitsfilter die Einhaltung des notwendigen Dekontaminationsfaktors zu gewährleisten hat.

Die bisherigen Iod-Konzentrationen im Auflöserabgas der WAK betragen $40 - 70 \text{ mg/m}^3$, während in den zukünftigen Wiederaufarbeitungsanlagen deutlich höhere Iod-Konzentrationen von $1 - 2 \text{ g/m}^3$ durch Vergrößerung der Auflöserchargen und Minimierung des Abgasvolumenstroms erwartet werden.

Um das "plate out" Verhalten des Iodes in einer Abgasanlage unter simulierten Auflöserabgasbedingungen und die Iod-Abscheidung an den Iodfiltern der PASSAT zu überprüfen, wurden Versuche durch Zugabe von elementarem Iod in das Rohgas durchgeführt. Die in PASSAT eingespeiste Iodmenge betrug $11,5 \text{ kg}$, getracert mit insgesamt $39 \text{ mCi } ^{131}\text{I}$. Eine Iodfiltertrommel enthält $85,5 \text{ kg AC 6120}$ und $12^{\text{W}}/\text{o Silber}$; dies entspricht einer Menge von $10,3 \text{ kg Silber}$. Dabei können maximal $12,1 \text{ kg Iod}$ chemisorbiert werden. Beim Betrieb der PASSAT-Iodfilter wurden Abgasproben vor, zwischen und hinter den Filtergehäusen zur Ermittlung der Kapazitätsausnutzung und der Abscheidegrade entnommen. Die ^{131}I -Aktivität dient zur Ermittlung der Massenbilanzen. Die während der einzelnen Beladungsschritte gemessenen Abscheidegrade (T_1, T_2 usw.) zeigt Abb. 10. Dabei wurde die Einleitung von 500 g getracertem Iod (nach einer Aufnahme von insgesamt ca. $10,5 \text{ kg}$ im Iodfilter) in einem Luft/ NO_2 -Gemisch bei 6 Vol\% NO_2 vorgenommen. Hier zeigte sich der bereits früher beobachtete Regenerationsprozeß /6/ am geringfügig gealterten Iod-Sorptionsmaterial AC 6120 durch Erhöhung der Kapazität infolge der Umwandlung von reduziertem Silber zu reaktivem Silbernitrat.

Unter Berücksichtigung der während der Probennahmen entnommenen Iodmengen von ca. 30 g I_2 in der Zuluft zum 1. Iodfilter ergibt sich bis zum Durchbruch von ca. 16 g I_2 bei einem noch vorhandenen Abscheidegrad des 1. Iodfilters von ca. 97% eine Kapazitätsausnutzung des Iodsorptionsmaterials von 95% .

Beim Transport des Iodes in dem Teil der Anlage, in dem sich durch Kondensat und Tropfenabscheidung flüssige Gasbestandteile absetzen, stellt sich ein Absorptions-Desorptionsgleichgewicht durch Lösen eines kleinen Anteils des gasgetragenen Iodes in den Flüssigkeitsrückständen ein. Die Desorption des im Naßteil der PASSAT abgeschiedenen Iodes erfolgte bei Luftspülung nach Versuchsende in ca. 5 Stunden (Nenndurchsatz). Bei voller Belastung des Faserpaketabscheiders durch die versprühten Tropfen (1 l/h) wurden 0,035 % des Iodes (gemessen über die ^{131}I -Aktivität) von der abgeschiedenen Flüssigkeit (Aufnahmekapazität des Faserpaketes ca. 8 Liter) über die Kondensatleitungen in die Zwischenbehälter ausgetragen/7/.

Schwierigkeiten durch Korrosion treten bei einigen Edelstählen bei gemeinsamer Einwirkung von $\text{H}_2\text{O}-\text{NO}_2$ bzw. $\text{HNO}_2-\text{HNO}_3$ und elementarem Iod auf. Obwohl durch Beizen und Passivieren eine Vorbehandlung der Edelstähle in der PASSAT gegeben war, verursachte Korrosion Oberflächenabtrag (Abb. 11). Im trockenen Teil der Anlage wurden keine Korrosionserscheinungen beobachtet.

Nach der bereits anfangs erwähnten Iodbeladung und 5 Stunden Spülung mit Luft unter Betriebstemperatur wurde beim Öffnen von Filtereinheiten (Faserpaketabscheider, Schwebstofffilter und Iodfilter) mit einem Iodmonitor (Nachweisgrenze ca. $2 \cdot 10^{-9}$ Ci $^{131}\text{I}/\text{m}^3$) keine Luftkontamination festgestellt, obwohl sich die Ansaugleitung direkt im geöffneten Gehäuse befand. Auch Wischproben an den Gehäuseinnenseiten und Gehäusedeckeln zeigten keine Iodablagerung im trockenen geheizten Teil der Anlage. Die neueste, abgeschirmte Ausführung des fernbedienbaren Filtergehäuses mit Iodfiltertrommel zeigt Abb. 12.

2.3 Auslaugversuche am Iod-beladenen Sorptionsmaterial AC 6120

Durch die Auslaugversuche soll festgestellt werden, ob das Iod-beladene AC 6120 für die Endlagerung in einer Salzkaverne einen zusätzlichen Einschluß erfordert. Wegen der Schwerlöslichkeit des AgI, das vorwiegend in die Porenstruktur des Trägers aus unlöslich gemachter, hochporöser Kieselsäure eingebettet ist, werden nur geringe Auslaugraten erwartet. Allerdings ist keine feste mechanische Bindung des AgI an das Trägermaterial gegeben.

Für die Versuche wurde AC 6120/H₁ (12^W/o Ag) eingesetzt, dessen Silber zu 95 % durch Spaltiod aus dem Auflöserabgas der WAK umgesetzt worden war. Zur Auslaugung wurden folgende Lösungen verwandt: aqua dest., gesättigte NaCl-Lösung, Karnallitlösung mit 0,6 % KCl, 0,2 % NaCl, 3,8 % MgSO₄ · 7H₂O, 66,6 % MgCl₂ · 6H₂O und 28,8 % H₂O. Das Verhältnis von Volumen des Auslaugmittels zur äußeren Oberfläche des Sorptionsmaterials wurde zu 0,05 cm festgelegt.

Von der NaCl- und Karnallitlösung wurde nach 180 d maximal 0,04 %, vom Wasser \leq 0,02 % des AgI gelöst. Die ausgelaugten Mengen blieben in der Lösung, die nicht ausgewechselt wurde, spätestens ab dem 60. Tag (bei Raumtemperatur und Atmosphärendruck) konstant (Abb. 13). Durch mechanischen Abrieb infolge des täglichen Schüttelns der Proben wurde mehr als das 20fache der vorstehend angegebenen Anteile des Silberiodids in Form eines filtrierbaren Niederschlages vom Sorptionsmaterial abgelöst /8/. Neueste Untersuchungen unter Einsatz von jeweils frischem Lösungsmittel zeigen, daß die geringer gelösten und abgespülten Iodmengen nach einiger Zeit auf extrem niedrigem Niveau konstant werden (Abb. 14).

3. Zusammenfassung

Mit der Konstruktion, Erprobung und Optimierung eines fernbedienbaren Faserpaket-Abscheiders, der in ein Abfallfaß paßt, wurde ein wesentlicher Schritt zur Verwirklichung des Head-End

Abgasreinigungskonzepts durchgeführt. Die Zielsetzung, einen funktionstüchtigen rückspülbaren Vorabscheider für Tropfen- und Feststoff-Aerosole zu entwickeln, um das nachfolgende Schwebstofffilter zu schützen, wurde erreicht. Einige Anforderungen, z.B. bei der Feststoff-Aerosolabscheidung, wurden weit übertroffen. Die erreichten Dekontaminationsfaktoren von > 1000 für Tropfen- und Feststoffaerosole, die geringen Differenzdrucke (10 - 15 mbar beim maximalen Volumenstrom von $150 \text{ N m}^3/\text{h}$), die gute Spülbarkeit und die relativ kurzen Trocknungszeiten ermöglichen den problemlosen Betrieb dieser Filter in einer Auflöserabgasstrecke.

Bei einer Kapazitätsausnutzung von 95 % des Silbergehaltes des Iod-Sorptionsmaterials wurde ein Restabscheidegrad der ersten Filtertrommel zur Spaltiodabscheidung von 97 % ermittelt. Eine Kontamination der Zellenluft durch ^{131}I beim Wechsel der Iodfiltertrommel sowie der vorangehenden Filter, wie Faserpaketabscheider und Schwebstofffilter, wurde nicht festgestellt.

Auslaugversuche an AC 6120, das in der WAK mit Iod beladen worden war, ergaben sehr geringe gelöste Anteile. Durch Abrieb und Ablösung wurde ein zusätzlicher Anteil des AgI in filtrierbarer Form freigesetzt.

Wir danken der KTB-Betriebsmannschaft für die störungsfreie Durchführung des Betriebs der PASSAT-Anlage.

LITERATUR

- /1/ NEA Group of Experts, Radiological Significance and Management of Tritium, Carbon-14, Krypton-85, Iodine-129, Arising from the Nuclear Fuel Cycle, Nuclear Energy Agency, OECD (1980)
- /2/ P. Miquel, E. Zellner, C. Jaouen, M. Pierlas, unveröffentlicht (1981)
- /3/ J. Furrer, H.-G. Dillmann, R. Herrmann, H. Hunsinger, A. Linek, unveröffentlicht (1979)
- /4/ K. Jannakos, W. Lange, G. Potgeter, J. Furrer, J.G. Wilhelm, Selected Solutions and Design Features from the Design of Remotely Handled Filters and the Technology of Remote Filter Handling, Previous Operating Experience with these Components in the PASSAT Facility, CONF-801038, S. 317 (1981)
- /5/ J. Furrer, H. Hunsinger, A. Linek, unveröffentlicht (1981)
- /6/ J.G. Wilhelm, J. Furrer, E. Schultes, Head-End Iodine Removal from a Reprocessing Plant with a Solid Sorbent, CONF-760822, S. 447 (1977)

/7/ J. Furrer, R. Kaempffer, A. Linek, A. Merz,
Results of Cleaning Dissolver Off-Gas in the PASSAT
Prototyp Dissolver Off-Gas Filter System,
CONF-801038, S. 566 (1981)

/8/ J. Furrer, R. Kaempffer,
unveröffentlicht (1981)

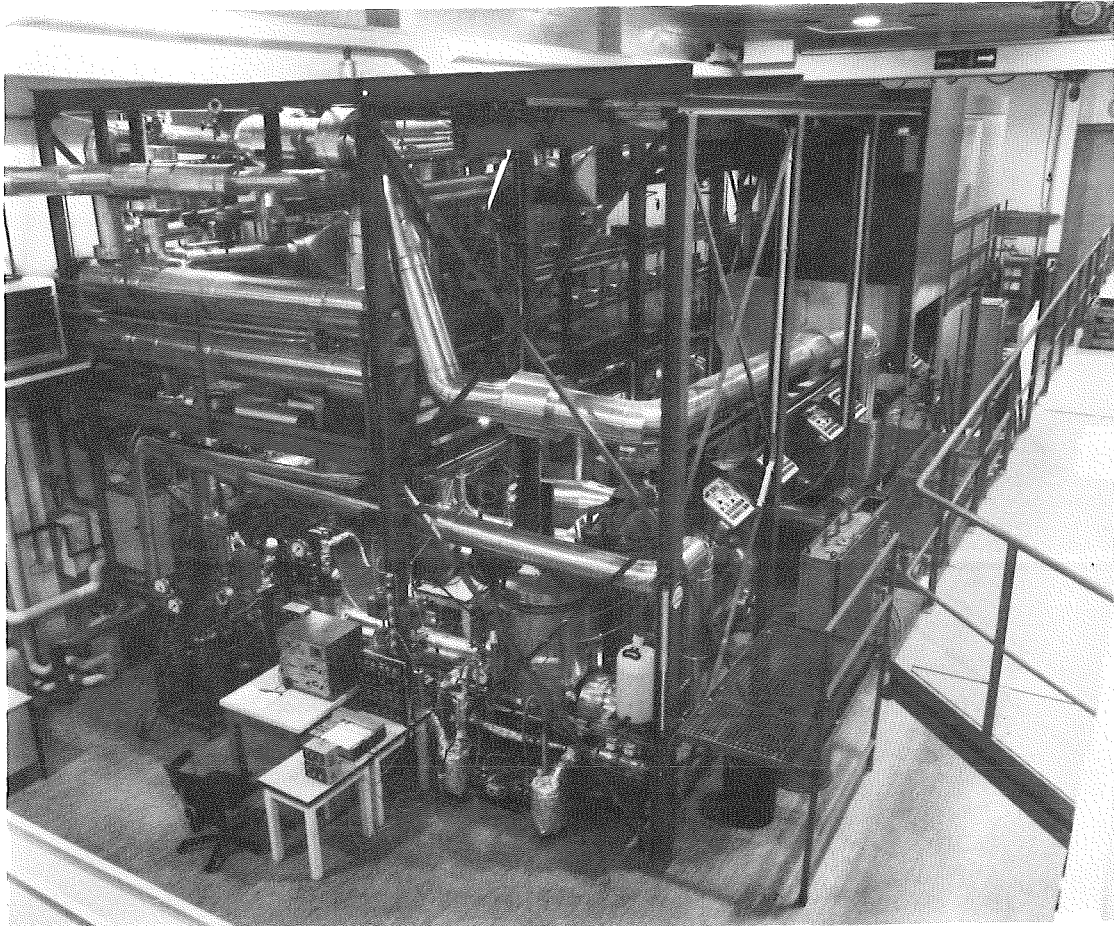


Abb. 1: Prototyp-Anlage mit Schwebstoff- und Sorptionsfiltern zur Auflöserabgasreinigung im technischen Maßstab (PASSAT)

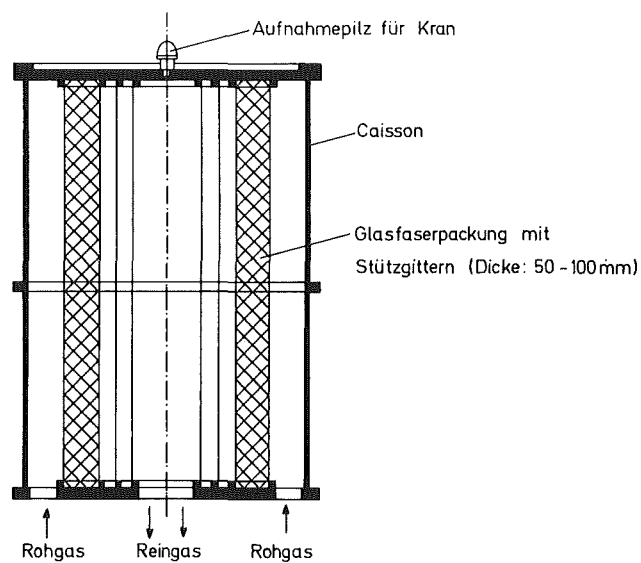
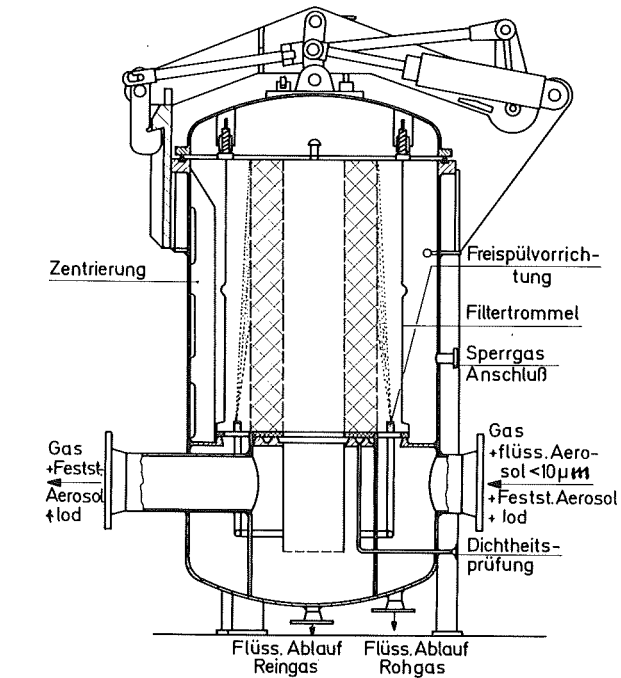


Abb. 2: Filterpatrone des Faserpaketabscheiders



ORF LAF II.52 1979

Faserpaket -Abscheider Passat-Komponente II Abscheidung von Tropfen $< 10 \mu\text{m}$

Abb. 3

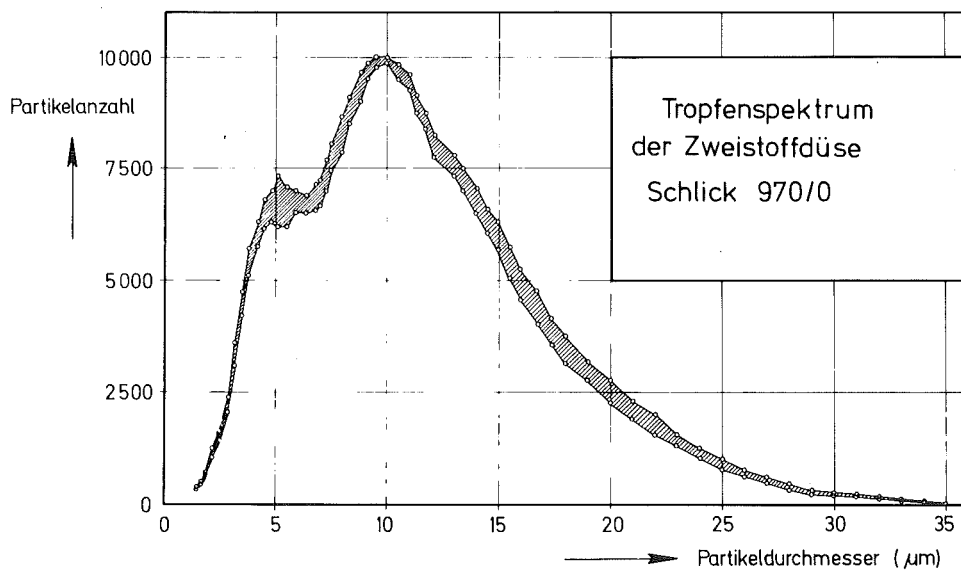


Abb. 4

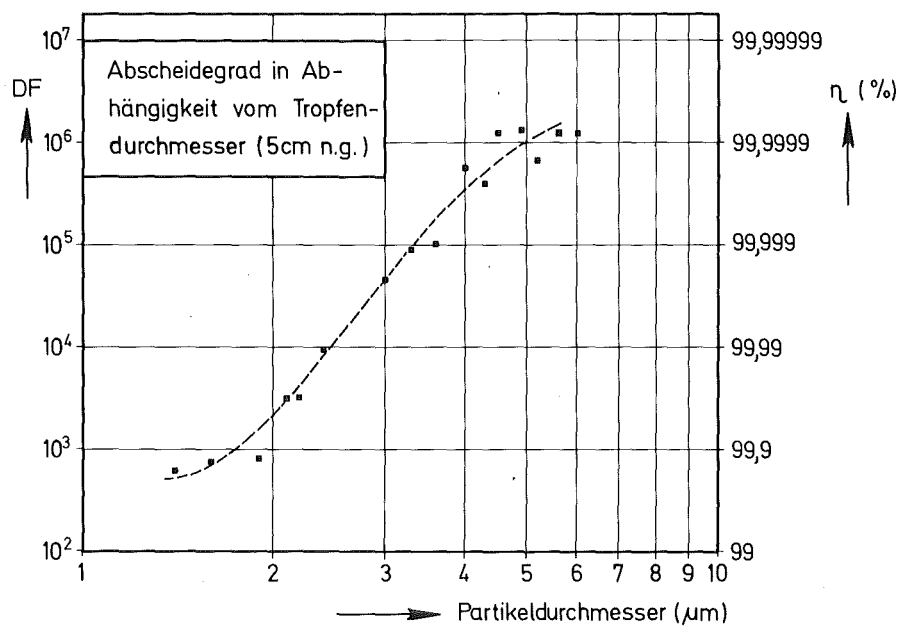


Abb. 5

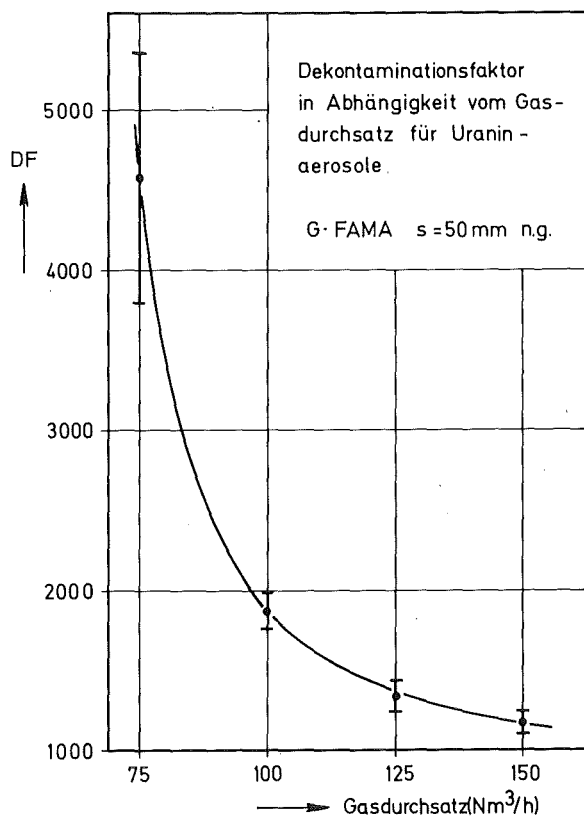


Abb. 6

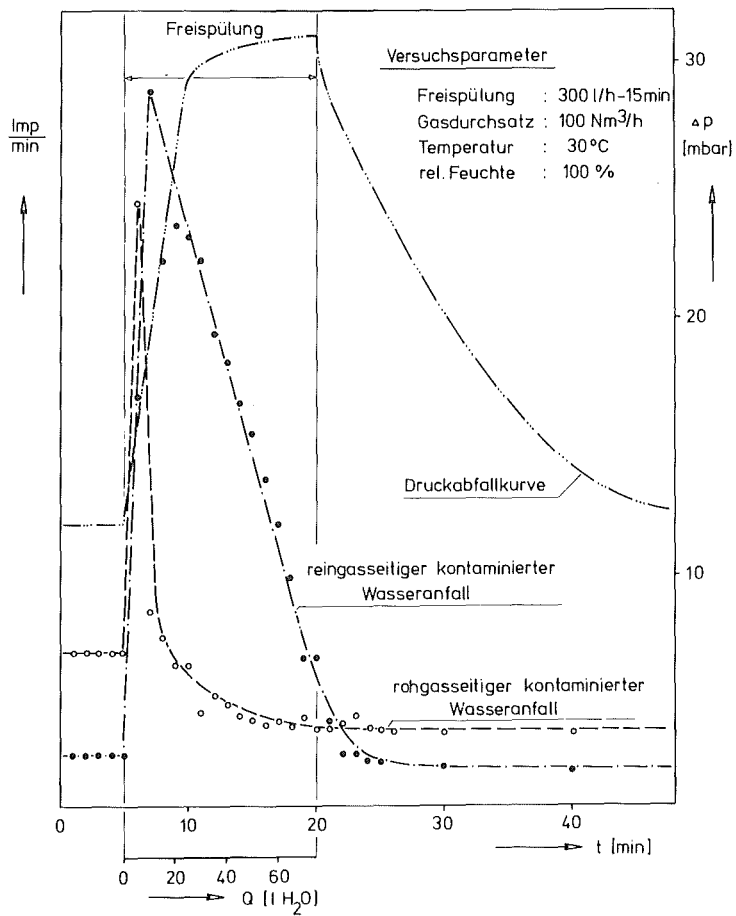
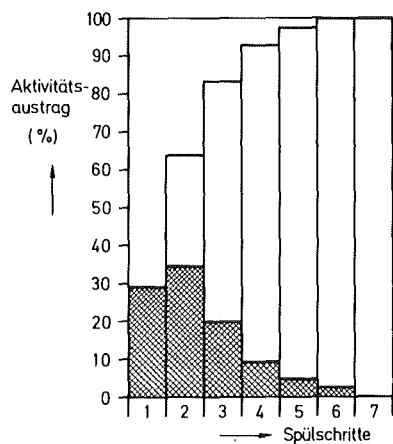


Abb. 7



Versuchsparameter

Spülschritte	Spülzeiten	Drainagezeiten	Spülwasser
1-5	3 min	27 min	15 l
6-7	6 min	24 min	30 l



Integrale und differentielle Abreinigung des mit Ba-139 (NO₃)₂-Lsg. beladenen GFAMA

Abb. 8

Schematischer Versuchsaufbau
zur Ermittlung von Beladungs- und Freispüldaten

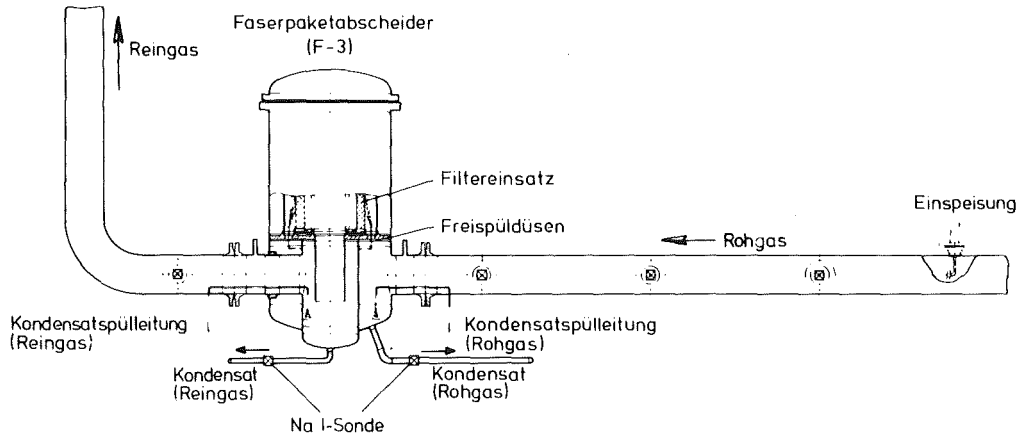
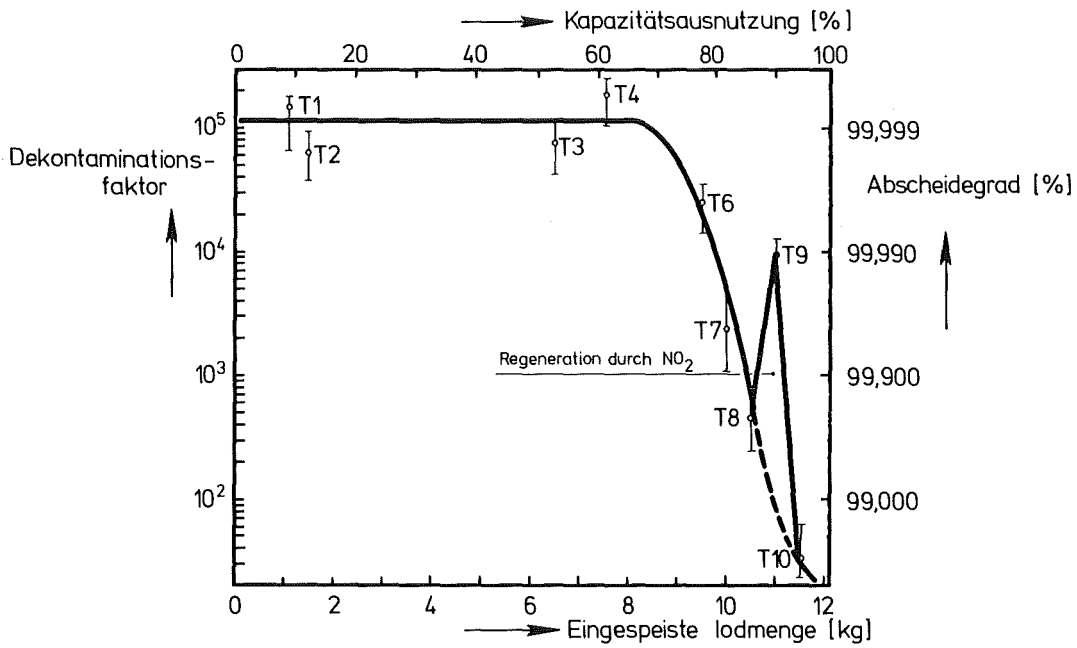


Abb. 9



KfK LAF/80

Dekontaminationsfaktor als Funktion der eingespeisten Iodmenge im ersten Iodfilter der PASSAT

Abb. 10

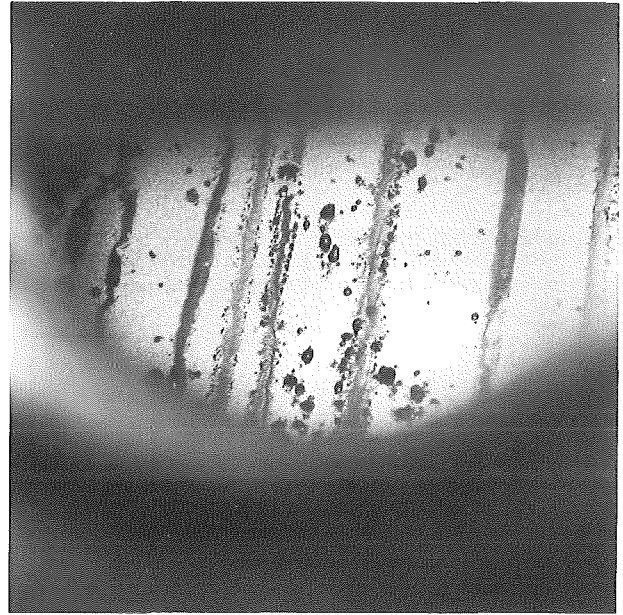
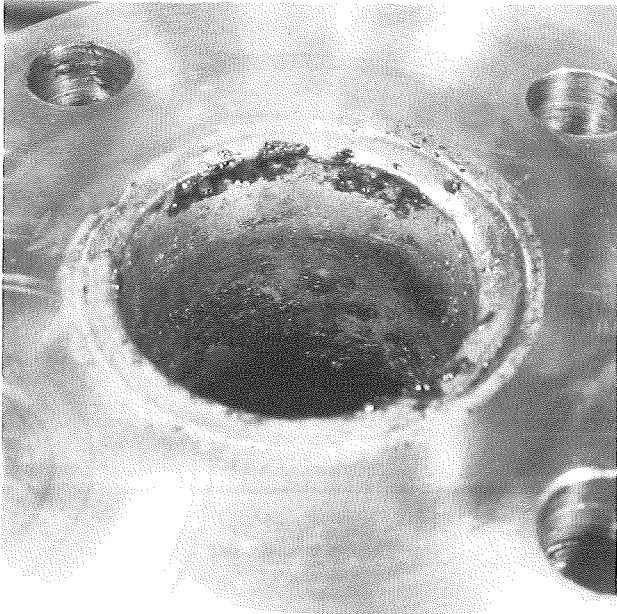


Abb. 11: Korrosion im Naßteil von PASSAT

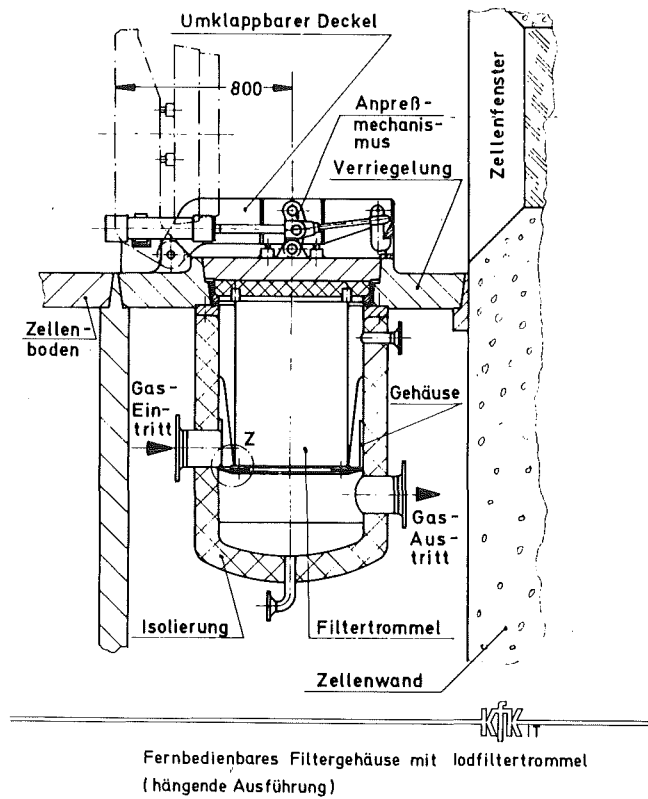
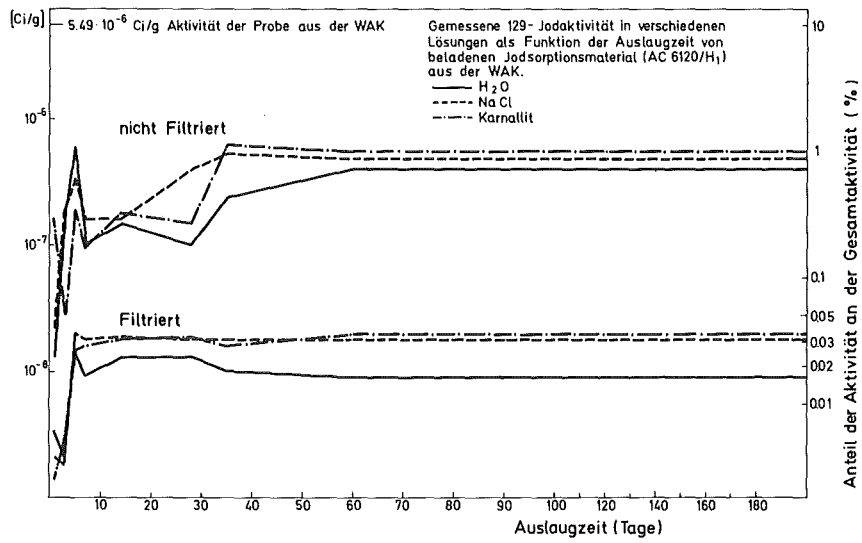
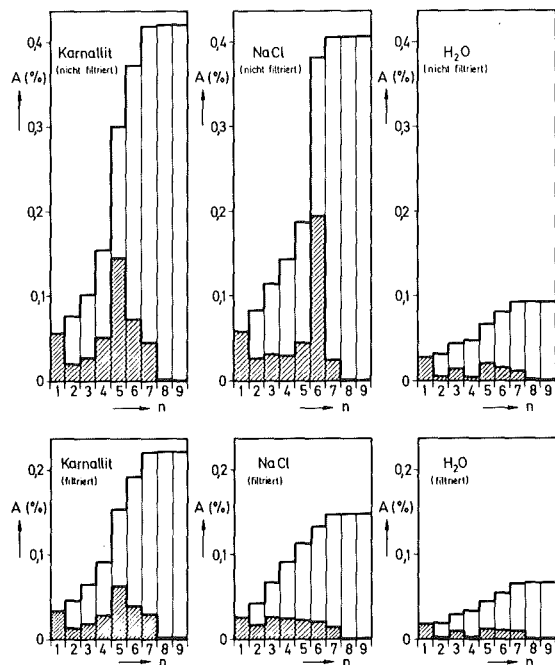


Abb. 12



129- Iod Auslaugrate an Iodsorptionsmaterial AC 6120/H₁

Abb. 13



Integrale und differentielle Auslaugrate (A) von ¹²⁹-Iod an Iodsorptionsmaterial AC 6120 als Funktion der Anzahl der Wechsel (n) der Auslauglösung.

Abb. 14

Wiederaufarbeitung von KNK II-Brennstäben in der MILLI

H.-J. Bleyl, W. Ochsenfeld, Institut für Heiße Chemie,
Kernforschungszentrum Karlsruhe

Der Karlsruher Natriumgekühlte Kernreaktor II ist ein schneller Reaktor. Es wird dort oxidischer Brennstoff verwandt. Das im Institut für Heiße Chemie aufgearbeitete Material bestand vor der Reaktorstandzeit im Bereich des Cores aus Uran- und Plutoniumoxid (U-Anreicherung 93%, Pu-Anteil 30%) und im Bereich des Blankets aus Uranoxid abgereicherten Urans. Hergestellt wurde der Brennstoff von den Firmen ALKEM und Belgo Nucleaire Anfang der 70er Jahre durch mechanisches Mischen der Oxide nach einem aus heutiger Sicht veralteten Verfahren. Die untersuchte Charge stammte aus einem Brennelement, das im Juni 1979 entladen wurde. Bis dahin war ein Abbrand von 1,3% erreicht. Die Wiederaufarbeitung begann 23 Monate später.

Mit der Wiederaufarbeitung des KNK-Brennstoffs war vor allem ein Ziel verbunden: Uran und Plutonium sollten rezykliert werden. Dabei ging es nicht um die Rückführung großer Mengen, sondern um die Demonstration der Rezyklierbarkeit und um den geschlossenen Brennstoffkreislauf. Es konnte nicht das Ziel der Arbeiten sein, die Eignung des PUREX-Prozesses für die Wiederaufarbeitung von Brüterbrennstoffen zu überprüfen. Dazu machte die relativ kleine spezifische Aktivität, wie sie sich aus den oben genannten Angaben über Abbrand und Kühlzeit ergibt, den Brennstoff wenig geeignet. (Thermischer Brennstoff mit einer um den Faktor 5 höheren spezifischen Aktivität wurde in der MILLI schon erfolgreich aufgearbeitet)

Der Brennstoff wurde nach dem PUREX-Prozeß aufgearbeitet. Dabei hat man als ersten Schritt das feste Material in eine Lösung zu überführen. Als Lösemittel wurde 7 M Salpetersäure angewandt. Die folgenden Schritte beinhalten das Verfahren der Flüssig-flüssig-Extraktion in sog. Extraktionszyklen mit dem Zweck, die Spaltprodukte von Uran und Plutonium, sowie diese Elemente voneinander zu trennen. Angewandt wurden 3 Extraktionszyklen, nämlich

- ein Kodekontaminationszyklus, der ein U + Pu-Produkt ergab,
- ein U/Pu-Trennzyklus, mit der Pu-Fraktion als Endprodukt,
- ein U-Feinreinigungszyklus für das U-Endprodukt.

Im Folgenden sollen manche Einzelheiten der Wiederaufarbeitung näher erläutert und zugleich Ergebnisse vom Ablauf des Verfahrens berichtet werden.

Beim 1. Extraktionszyklus (vgl. Abb.1) wurden 3 Extraktoren eingesetzt: HA (10), HS (14) und HC (16), in Klammern deren Stufenzahl. In den Extraktor HA wurde die wäßrige Lösung (blau-grün) des Brennstoffs (HAF) in der angegebenen Zusammensetzung eingespeist, zugleich die nicht wäßrige Lösung (rot) des Extraktionsmittels (HAX). Ein weiterer wäßriger Zulauf kam aus dem benachbarten Extraktor HS. Was spielte sich im Extraktor HA bezüglich der eingeführten Lösungsbestandteile ab? Dazu die Erweiterung der Abbildung in Form einer Graphik. Aufgetragen sind die Konzentration (g/l) von U, Pu und HNO_3 in den beiden Lösungen als Funktion der Stufe des Extraktors zu einem einzigen Zeitpunkt (Konzentrationsprofile). Der Zeitpunkt wurde während des stationären Zustandes des Verfahrens gewählt, gibt also die über ca. 50 Stunden andauernden Verhältnisse wieder. Man erkennt, daß die Brennstofflösung schon in der Eingangsstufe in ihrem Gehalt an U (Kreise) und Pu (Quadrate) deutlich reduziert wurde (U von 227 auf 20 g/l, Pu von 27 auf 4 g/l). Die Konzentration dieser Stoffe nimmt im Weiterfluß der wäßrigen Lösung bis auf ca. $1,5 \cdot 10^{-3}$ g/l ab. In der Extraktionsmittellösung lag die U- und Pu-Konzentration immer etwas höher als in der wäßrigen Lösung, sie erreichte am Auslauf ca. 100 g/l für U und ca. 20 g/l für Pu. Vergleicht man die Konzentrationen in den beiden Ausläufen, dann sieht man, daß diese Elemente den Extraktor nahezu

vollständig mit der Extraktionsmittellösung verlassen haben. Die sog. Pu-Verluste in den hochaktiven Waste betragen $< 0.01\%$. Die Spaltprodukte andererseits wurden zu $\geq 99\%$ mit der wäßrigen Lösung ausgeführt (die Abb. enthält keine Angaben darüber).

Im 1. Extraktionszyklus folgte dem Extraktor HA der Extraktor HS. Dort wurde die Extraktionsmittellösung mit 3 M Salpetersäure kontaktiert. Das bewirkte für die gelösten Bestandteile: in der Extraktionsmittellösung reduzierte sich die Konzentration des Urans auf ca. 70 g/l, die des Plutoniums auf ca. 8,5 g/l, in die frisch eingespeiste Salpetersäurelösung wurden Uran und Plutonium aufgenommen. In der Graphik sind außerdem Angaben über 4 Spaltprodukte als Bestandteile der Extraktionsmittellösung enthalten. Die Dreiecke markieren die Anteile (%) von Zr-95, Ru-106, Cs-137 und Ce-144 bezogen auf die mit der Brennstofflösung in den Extraktor HA eingeführten Mengen. Die Anteile waren unterschiedlich hoch und nahmen mit dem Weiterfluß der Extraktionsmittellösung noch deutlich ab. Am Auslauf betrug sie ungefähr 0,5% für Zr und Ru, 10^{-2} % für Cs und Ce.

Schließlich endete der 1. Extraktionszyklus im Extraktor HC. Hier wurden der Extraktionsmittellösung 0,02 M Salpetersäure, die im vorderen Bereich durch Zufuhr von 3 M Salpetersäure auf eine Molarität von ca. 0,25 aufgestockt wurde, gegenübergestellt. Die Wirkung zeigte sich daran, daß die auslaufende Extraktionsmittellösung nur noch $< 0,1$ g U/l und $< 10^{-3}$ g Pu/l enthielt. Uran und Plutonium waren, zusammen mit dem Rest der Spaltprodukte, aus der Extraktionsmittellösung in die Salpetersäurelösung reextrahiert worden. Das hier angewandte Verfahren der Rückextraktion nur mit Salpetersäure, nicht mit Hilfe eines Reduktionsmittels, führte zu einem im nächsten Schritt wiederum gut extrahierbaren Plutonium.

Im 2. Extraktionszyklus ging es um eine weitere Reduzierung der verbliebenen Spaltprodukte und um die Trennung der Elemente Uran und Plutonium selbst. Der Zyklus bestand aus 5 Extraktoren: 1A (9), 1AS (7),

1BX (12), 1BS (4) und 1C(16). Im Folgenden wird nur auf den Betrieb der Extraktoren für die U/Pu-Trennung eingegangen, vgl. Abb.2. Dem Extraktor 1BX wurden die zu trennenden Elemente mit der Extraktionsmittellösung (1BXF) zugeführt. Als Gegenstrom wurde eine wäßrige Lösung von 0,10 M Salpetersäure und 0,21 M Hydrazin eingespeist. Durch alle 12 Stufen des Extraktors wurde elektrischer Strom geleitet, abgestuft zwischen 50 und 250 mA. Es wurde also das elektrochemisch initiierte U/Pu-Trennverfahren durchgeführt. Aus der graphischen Darstellung der Konzentrationsprofile ist zu erkennen, daß in der Extraktionsmittellösung beim Fluß durch den Extraktor die Konzentration des Urans etwa konstant blieb (ca. 40 g/l), während die des Plutoniums von 5 auf 10^{-4} g/l reduziert wurde. Das entspricht einem Trennfaktor von mehr als 4 Größenordnungen. Die wäßrige Lösung enthielt bei ihrem Auslauf ca. 6 g U/l und 16 g Pu/l. Diese Zusammensetzung wurde im sich anschließenden 1BS-Extraktor verändert. Hier wurde die wäßrige Lösung mit frischer Extraktionsmittellösung kontaktiert, wobei sich bei etwa gleichbleibender Konzentration des Plutoniums die des Urans auf ca. 0,1 g/l reduzierte.

Der wäßrige Auslauf des 1BS-Extraktors entsprach bezüglich seiner Aktivität der Spaltprodukte den Spezifikationen der Fa. ALKEM. Lediglich der Anteil des Urans lag darüber (1280 anstatt 300 ppm). Das war im vorliegenden Fall ohne Bedeutung, weil die Refabrikation zu Mischoxid nach einem Kopräzipitationsverfahren durchgeführt werden sollte. Nach Aufkonzentrieren wurde die Lösung ausgeliefert. Sie hatte die in Tab.1 angegebene Zusammensetzung.

Ein 3. Extraktionszyklus war notwendig, um das Uran spezifikationsgerecht herzustellen. Gegenüber dem Produkt aus dem Trennzyklus mußte eine weitergehende Abreicherung des Plutoniums und der Spaltprodukte erreicht werden. Dazu wurde in etwa der 2. Zyklus wiederholt, allerdings mit dem Unterschied, daß das Reduktionsmittel Uran-VI als Lösung eingespeist wurde. Das Produkt des Uranfeinreinigungszyklus hatte nach dem Durchlaufen eines Verdampfers die in Tab.2 angegebene Zusammensetzung.

In der Zwischenzeit läuft die Refabrikation des Urans und des Plutoniums zu einem Mischoxid-Brennstoff, wiederum für den KNK II. Als Termin für seinen Einsatz ist die Abschaltpause 1982 vorgesehen.

Beiträge zum Gelingen der Arbeit kamen aus vielen Bereichen der KfK, angefangen von KTB/ HZ und der Gruppe Analytik des IRCh bis zur Betriebsanalytik des IHCh und den Mitarbeitern von der MILLI-Anlage.

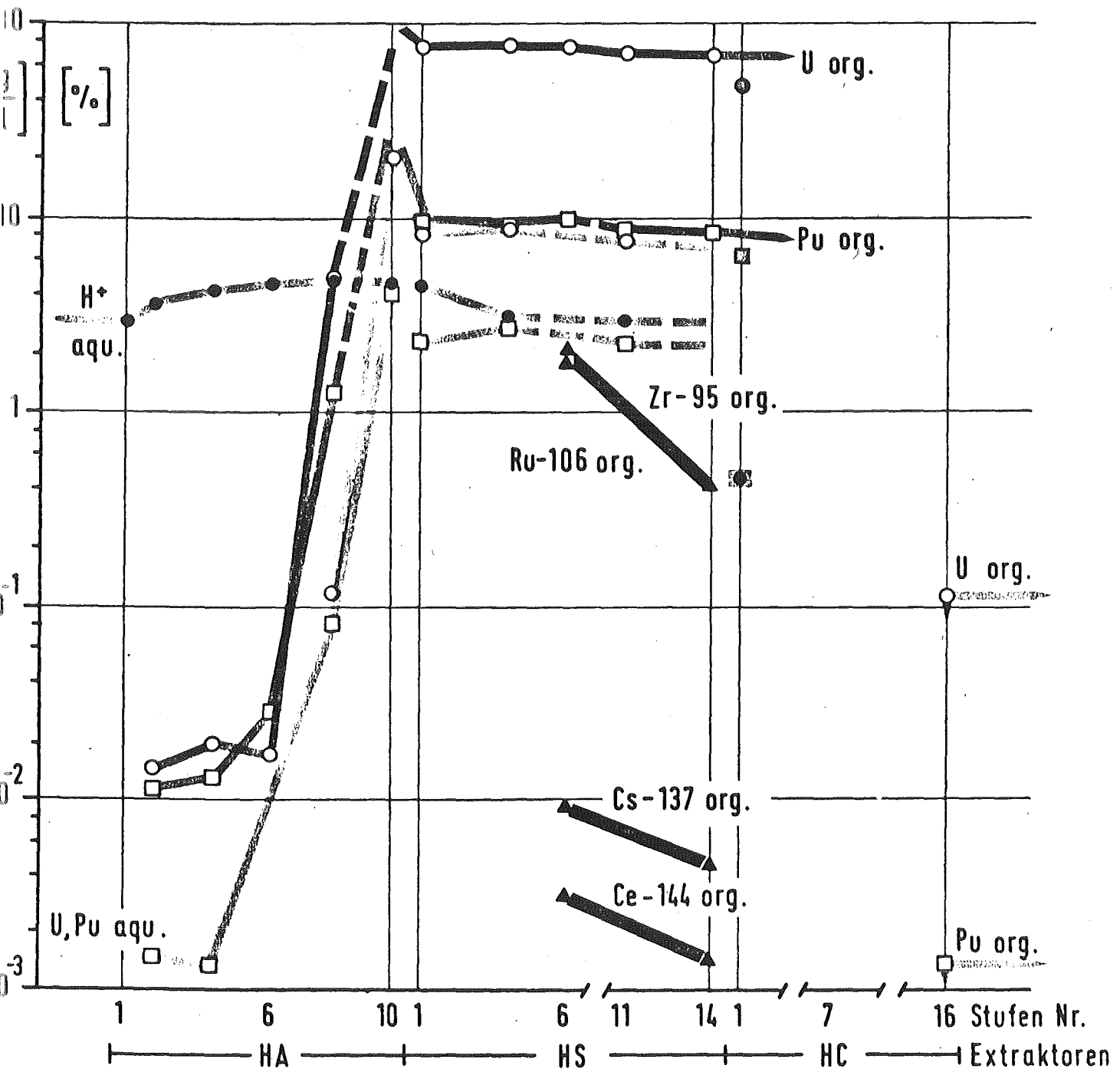
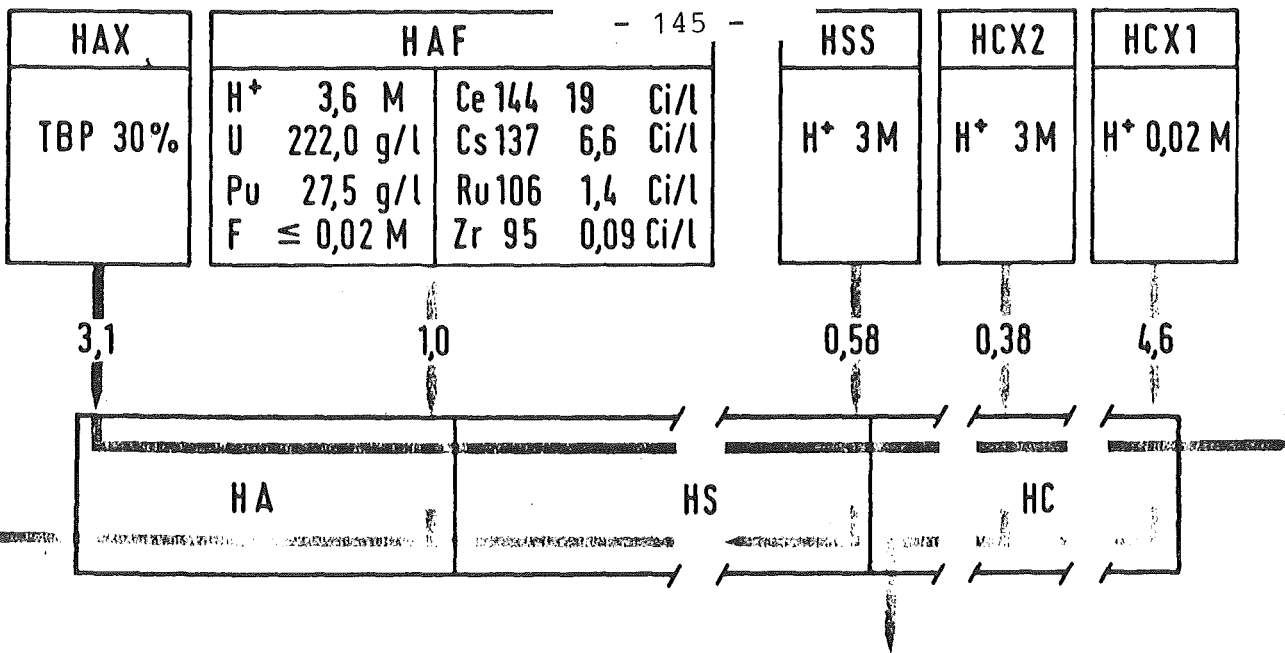


Abb. 1



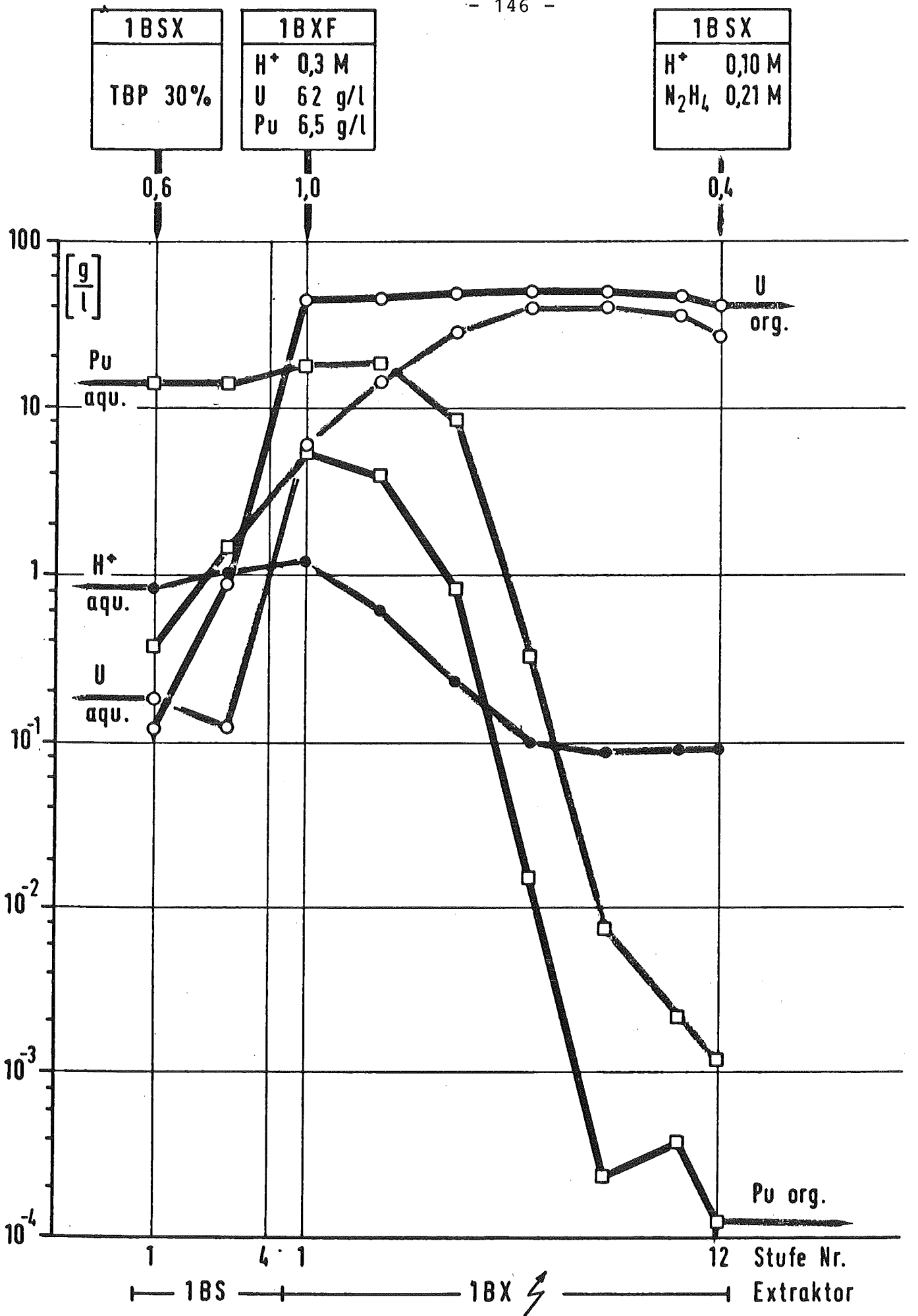


Abb. 2



Pu	234 g/l
U	3,0 g/l
HNO ₃	6,2 M
Ru-106	100 µCi/l
Zr-95	30 µCi/l
Cs-137	20 µCi/l
Sm, Eu, Gd, Dy	< 1 ppm
Nb, Mo, Ag, Sn	≤ 10 ppm



Plutonium - Produktlösung

Tab. 1:

U	388 g/l
Pu	0,3 mg/l
HNO ₃	0,1 M
Cs-137	0,9 µCi/l
Ce-144	0,3 µCi/l
Fe	20 ppm
Co, Ni	< 10 ppm



Uran - Produktlösung

Tab. 2:

VERSUCHE ZUM STOFFAUSTAUSCH UND ZUR HYDRAULISCHEN
OPTIMIERUNG EINER ORIGINALMISCHABSETZERKAMMER FÜR
DIE TRITIUMABTRENNUNG IN EINER WIEDERAUFARBEITUNGSANLAGE

H. Bauer
K. Eiben
H. Evers
L. Finsterwalder
H. Klonek
B. Schieferdecker

I n h a l t

1. Einleitung
2. Hydraulische Versuche
3. Stoffübergangsversuche

1. Einführung

Bei der Wiederaufarbeitung von LWR-Brennelementen geht ein Teil des Tritiums in gelöster Form und als Entrainment in das mit Uran und Plutonium beladene organische Extraktionsmittel über.

Um eine Verschleppung dieses Tritiums über den erweiterten Head-End-Bereich hinaus zu verhindern, soll an die erste Spaltproduktwäsche (HS1 - Kolonne) eine spezielle Tritiumwäsche angeschlossen werden.

Dieses kann mit einem mehrstufigen Mischabsetzer geschehen.

Für die Auslegung eines geeigneten Mischabsetzers dieser Größenordnung fehlten belastbare Daten und betriebstechnische Erfahrungen.

Die fehlenden Kenntnisse erforderten den Entwurf und die Errichtung einer Versuchsstufe in Originalgröße für den seinerzeit geplanten Durchsatz der Großanlage von 4 tU/d. Da eine geometrisch kritisch sichere Schichthöhe im Apparat von 200 mm vorgegeben war, ergab sich eine als ungünstig anzusehende Mischkammergeometrie.

Zur Minimierung der tritiumhaltigen Abfallmenge wurde ein Phasenflußverhältnis von 40:1 organisch zu wässriger Phase gefordert. Um trotzdem in der Mischkammer ein günstiges Phasenverhältnis von 1 aufrecht zu erhalten, mußte die Waschphase aus der Absetzkammer zurückgeführt werden.

Versuchsziel an dieser Einzelstufe war die Entwicklung einer geeigneten Pump-Misch-Vorrichtung.

Es sollte erreicht werden:

- eine vollständige Durchmischung der gesamten Mischkammer
- die Einstellung eines einheitlichen Tropfenspektrums mit einem geringen Feinstropfenanteil
- stabiles Anfahr- und Betriebsverhalten des Mischabsetzers bei organisch- sowie bei wässrig kontinuierlicher Fahrweise.

In den anschließenden Stoffübergangsversuchen sollte dann der Stufenwirkungsgrad für die Extraktion von Tritium bestimmt werden.

2. Hydraulische Versuche

Die aus Edelstahl gefertigte Mischabsetzerstufe (TRIMA=Tritiummischabsetzer) wurde im Technikum des IHCh aufgebaut.

Die Stufe, bestehend aus quadratischer Mischkammer mit angesetzter Absetzkammer hatte die Abmessungen von 4 m Länge, 0,7 m Breite und 0,35 m Höhe. Seitlich und oben waren Plexiglasscheiben angebracht.

Alle Einbauten wurden leicht austauschbar gehalten. Damit erreichte man die für den Versuchsbetrieb notwendige Umrüstflexibilität.

Die Eingangsöffnungen für die eintretenden Flüssigkeitsströme lagen am Mischkammerboden, die Rückführung der Waschphase erfolgte über eine Rohrleitung vom Ende der Absetzkammer zentral unter den Ansaugstutzen des Mischrades.

Abb.1 Mischabsetzer

Als Antrieb für den Mischer diente ein Motor mit stufenlos regelbarem Getriebe.

Mit Hilfe eines mechanisch verstellbaren Wehres konnte die Trennschichtlage in der Absetzkammer gesteuert werden. Betriebsmedien für die hydraulischen Versuche waren 2 m HNO_3 und \sim 30%iges TBP in Kerosin.

Gemessen wurden

- der Hold-up in der Mischkammer an verschiedenen Positionen
- die Tropfengrößenverteilung (fotografische Auswertung)
- die Dispersionskeildicken in der Absetzkammer
- das Entrainment in den ablaufenden Flüssigkeitsströmen.

Versuchsparameter waren die Mischkammereinbauten und die Rührerdrehzahl während der organische Feed und die recyklierte Waschphasenmenge konstant gehalten wurden.

Aus WAK-Erfahrungen war bekannt, daß bei einer Umfangsgeschwindigkeit der Rührer von 1,6 m/sec zufriedenstellende Ergebnisse hinsichtlich Stoffübergang und Entrainment erzielt werden.

Bei dieser Umfangsgeschwindigkeit sollte die Förderleistung des Mixers ausreichen, die zufließenden 2000 l/h org. Feed, 50 l zufließenden Scrub mit 2000 l/h rückgeführter Waschphase zu dispergieren und somit ein Mischverhältnis von o:w = 1 in der Mischkammer zu erreichen.

Die Strömungsgeschwindigkeit der am Rührer austretenden Mischphase sollte groß genug sein, daß eine gleichmäßige Verteilung der Tropfen in der Mischkammer erreicht würde.

Das Pump-Mischrad wurde als 2flutiges Radialrad ausgebildet, die Schaufelhöhe konnte variiert werden.

Ein in einer nackten Mischkammer arbeitendes Rührwerk würde den Inhalt in eine schnelle Rotation versetzen, die aus hydraulischen Gründen unerwünscht ist. Deshalb wurden Einbauten in Form von Strombrechern oder wahlweise einem Leitrad um das Mischrad untersucht.

Abb.2 Mischkammerschnitt

Um einen Vergleich der Strombrecher zu dem Leitrad herzustellen, wurden alle Versuche mit beiden Einbauten durchgeführt.

Die Qualität der Durchmischung in der Mischkammer wurde durch Hold-up-Bestimmungen an 9 in Höhe und Breite unterschiedlichen Positionen nachgewiesen. Mit beiden Einbauten konnte eine gute Durchmischung erzielt werden.

Abb. 3 Hold-up-Kurven

Bei Drehzahlen über 240 rpm wurde aufgrund der ansteigenden Pumpleistung des Mischers die rückgeführte Waschphase mit einer Blende eingedrosselt und auf 2000 l/h gehalten.

Im Drehzahlbereich von 180-340 rpm zeigte sich ein durchweg enges Tropfenspektrum. Der Feinsttropfenanteil war sehr gering. Dieses wurde auch durch niedrige Fremdphasenverunreinigung in den ablaufenden Strömen aus der Absetzkammer bestätigt.

Abb.4 Tropfenspektrum bei unterschiedlichen Drehzahlen im wässrig kontinuierlichen Betrieb.

Die Phasenlage wurde durch den Anfahrvorgang bestimmt. Die Phasenstabilität konnte für beide Betriebszustände, für organisch und wässrig kontinuierlich, in Langzeitversuchen demonstriert werden.

Die Dispersionskeilstärke in der Absetzkammer erreichte bei organisch kontinuierlicher Fahrweise ein Maximum von ca. 30 mm.

Anschließende Versuche mit Uran beladenen Phasen sollte das Verhalten der Stufe bei höherer Dichte und Zähigkeit der Phasen demonstrieren. Hierzu wurden die im Kreislauf befindlichen Phasen mit Uran versetzt und ins Gleichgewicht gebracht.

org.Phase 70 g U/l, 0,2 m HNO₃
wässr.Phase 11 g U/l, 2,6 m HNO₃

Dabei mußte die Drehzahl des Rührers um ca. 40 rpm erhöht werden, um die vorgegebenen 2000 l/h der wässrigen Phase zu rezyklieren.

Der Versuchsbetrieb zeigte kaum nennenswerte Unterschiede zu den Ergebnissen der hydraulischen Versuche mit unbeladenen Phasen. Bedingt durch die höheren Brechzeiten der beladenen Phasen baute sich besonders bei organisch kontinuierlichem Betrieb eine höhere Dispersionsschicht auf. Dieses führte zu einem erhöhten Fremdphasenanteil in der ablaufenden organischen Phase. Das sich einstellende Tropfenspektrum lag im Bereich der aus den vorgegangenen Versuchen hochgerechneten Werte.

3. Stoffübergangsversuche

Die hydraulischen Versuche wurden durch Stoffübergangsversuche ergänzt.

Ziel der Untersuchungen war die Bestimmung der Stufenwirksamkeit für den Stoffaustausch von Tritium. Dieses ermöglicht die Abschätzung eines erreichbaren Dekofaktors in einem mehrstufigen Mischabsetzer.

Im Head-end der WAA kann die Tritium-Konzentration bis zu ca. 0,25 Ci/l ansteigen.

Da Tritium in dieser Konzentration im Labor, jedoch nicht im Technikum gehandhabt werden kann, stellte sich die Frage, ob T nicht durch Deuterium ersetzt werden kann. Durch den Einsatz von Deuterium (D_2O) als Ersatzkomponente kann das Strahlenschutzproblem umgangen werden.

Aus analytischen Gründen war jedoch der Einsatz von Makromengen an Deuterium erforderlich. Der experimentelle Nachweis des gleichen Verhaltens von Tritium in Mikromengen und Deuterium in Makromengen sollte in einem Laborversuch erbracht werden.

Diese Überlegungen führten zur Gestaltung des folgenden Versuchsprogramms:

1. Laborversuch mit U,T,D im System TBP-30/3 m HNO_3 als Verteilungsexperiment, um eine 4stufige Gegenstromwäsche im Phasenfließverhältnis o:w = 40 zu simulieren. Ziel war es, das gleiche Verhalten von T und D nachzuweisen.

2. Stoffübergangsversuche mit Salpetersäure in der Modellstufe TRIMA, um den Stufenwirkungsgrad bei Austausch mit HNO_3 zu messen.
3. Stoffübergangsversuche mit D_2O in der Modellstufe TRIMA zur Ermittlung des Stufenwirkungsgrades für D_2O mit dem Ziel, einen Vergleich zu den HNO_3 -Versuchen zu bekommen.

Zu 1:

In den Laborversuchen wurde uranbeladenes TBP-30 mit tritiumhaltigem D_2O aus dem FR2 ins Gleichgewicht gebracht. Dieser D- und T-haltige Feed wurde dann nach einem Schema im Gegenstromprinzip bis zur Gleichgewichtseinstellung geschüttelt.

Zusammengefaßt erbrachte der Versuch die folgenden Ergebnisse:

- Die Wasserstoffisotope H, D und T verhalten sich wie erwartet gleich und verteilen sich deshalb im Verhältnis des angebotenen austauschfähigen Wasserstoffs in beiden Phasen. Der Verteilungskoeffizient für D und T bezogen auf den gesamt austauschfähigen Wasserstoff ist 1.
- Der Massenverteilungskoeffizient und damit der erreichbare Dekofaktor hängt ab vom Gehalt an H_2O und HNO_3 in der organischen Phase. Bei steigender Uranbeladung wird H_2O und HNO_3 aus der organischen Phase verdrängt, die Effektivität der Tritiumwäsche wird dadurch begünstigt.

Abb.5 Werte der erreichten Stufen DF für T und D

Zu 2:

Bei den HNO_3 -Versuchen sollte der Säuretransport durch den organischen Lösungsmittelstrom verfolgt werden. Hierzu wurde die org. Phase in einem Topfextraktor mit HNO_3 beladen, welche in der Mischabsetzerstufe TRIMA mit vorgelegtem VE-Wasser rückgewaschen wurde. Die Zunahme der HNO_3 -Konzentration des in der TRIMA vorgelegten VE-Wassers wurde zeitlich verfolgt. Die wässrigen Phasen beider Extraktoren wurden nicht ausgetauscht, so daß sich in den Phasen letztlich ein Konzentrationsausgleich einstellte. Der Fluß des im Kreis geführten Extraktionsmittels betrug 2000 l/h, die wässrige Phase der TRIMA wurde mit 2000 l/h rezykliert.

Abb. 6 zeigt den typischen Verlauf des Säuretransportes in den Phasen beider Extraktoren.

Zur Bestimmung der Stufenwirksamkeit wurden zeitgleiche Proben der organischen und der wässrigen Phase aus der Absetzkammer analysiert, anschließend bis zum Konzentrationsausgleich geschüttelt und erneut analysiert. Die Stufenwirksamkeit errechnete sich dann aus dem Verhältnis des erreichten Konzentrationssprunges zum maximal möglichen Konzentrationssprung. In einer Serie von 7 Versuchen wurde eine durchschnittliche Stufenwirksamkeit von 84 % ermittelt. Die Werte der Versuche mit und ohne Leitrad lagen eng zusammen.

Zu 3:

D₂O-Stoffübergangsversuche

Die D₂O-Stoffübergangsversuche wurden nach dem gleichen Schema der HNO₃-Versuche durchgeführt.

Das im Kreislauf befindliche Lösungsmittel war im Konzentrationsgleichgewicht mit 2 m HNO₃. Im Topfextraktor wurden 120 kg T-freies D₂O vorgelegt und mit HNO₃ auf 2 M/l eingestellt.

Gemessen wurde nach dem Anfahren der Extraktoren die D₂O-Konzentration in der organischen Phase und der D₂O-Anstieg der in der TRIMA vorgelegten wässrigen Phase. Die Berechnung der Stufenwirksamkeit erbrachte hier Werte von 92 - 97 % (ohne Leitrad) und 86 - 100 % Stufenwirksamkeit mit Leitrad.

Zusammenfassung

Die hier beschriebenen Labor- und Technikumsversuche haben gezeigt, daß ein 5-stufiger Gegenstrom-Mischabsetzer dimensioniert nach der TRIMA-Einzelstufe als Tritiumstripper prinzipiell geeignet ist. Der Gesamt-DF für T wird nach den vorliegenden Ergebnissen mit ≥ 120 abgeschätzt. Er wird neben dem Flußverhältnis stark von der Uranbeladung, Flußschwankungen und dem Entrainment abhängen. Zwischenzeitlich wurde im Versuchskreislauf UEZ in der TEKO ein 5-stufiger Mischabsetzer in Betrieb genommen, mit dem diese Ergebnisse bestätigt werden müssen.

Abb. 1 Versuchsaufbau der Mischabsetzerstufe

Abb. 2 Mischkammerschnitt

Abb. 3 Hold-up-Profile

Abb. 4 Tropfenspektrum bei unterschiedlichen Drehzahlen

Abb. 5 Tabelle der erreichten DF für D und T

Abb. 6 Konzentrationsverlauf HNO_3 -Stoffübergangsversuch

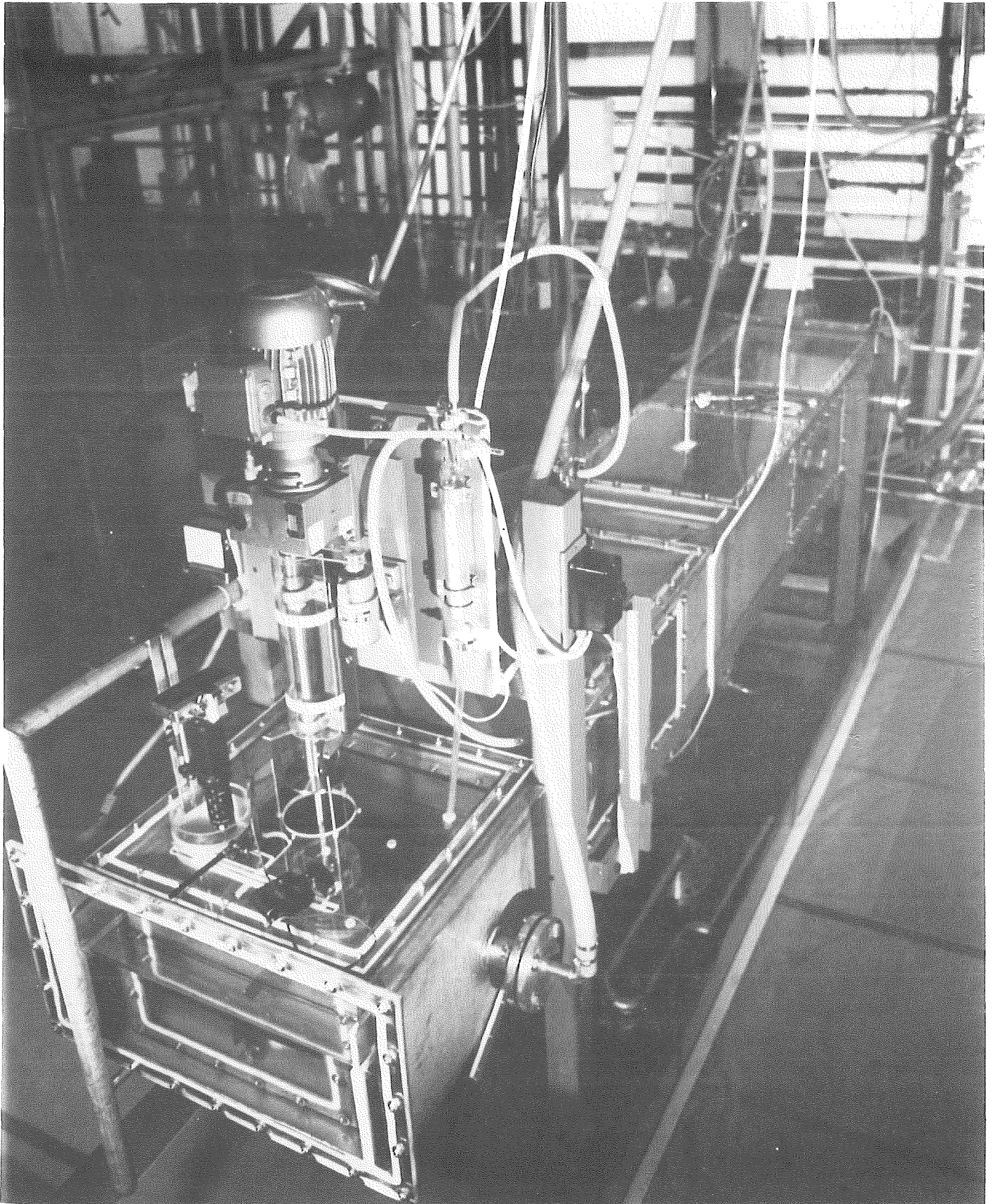


Bild Nr. 1 Ansicht der Mischabsetzerstufe



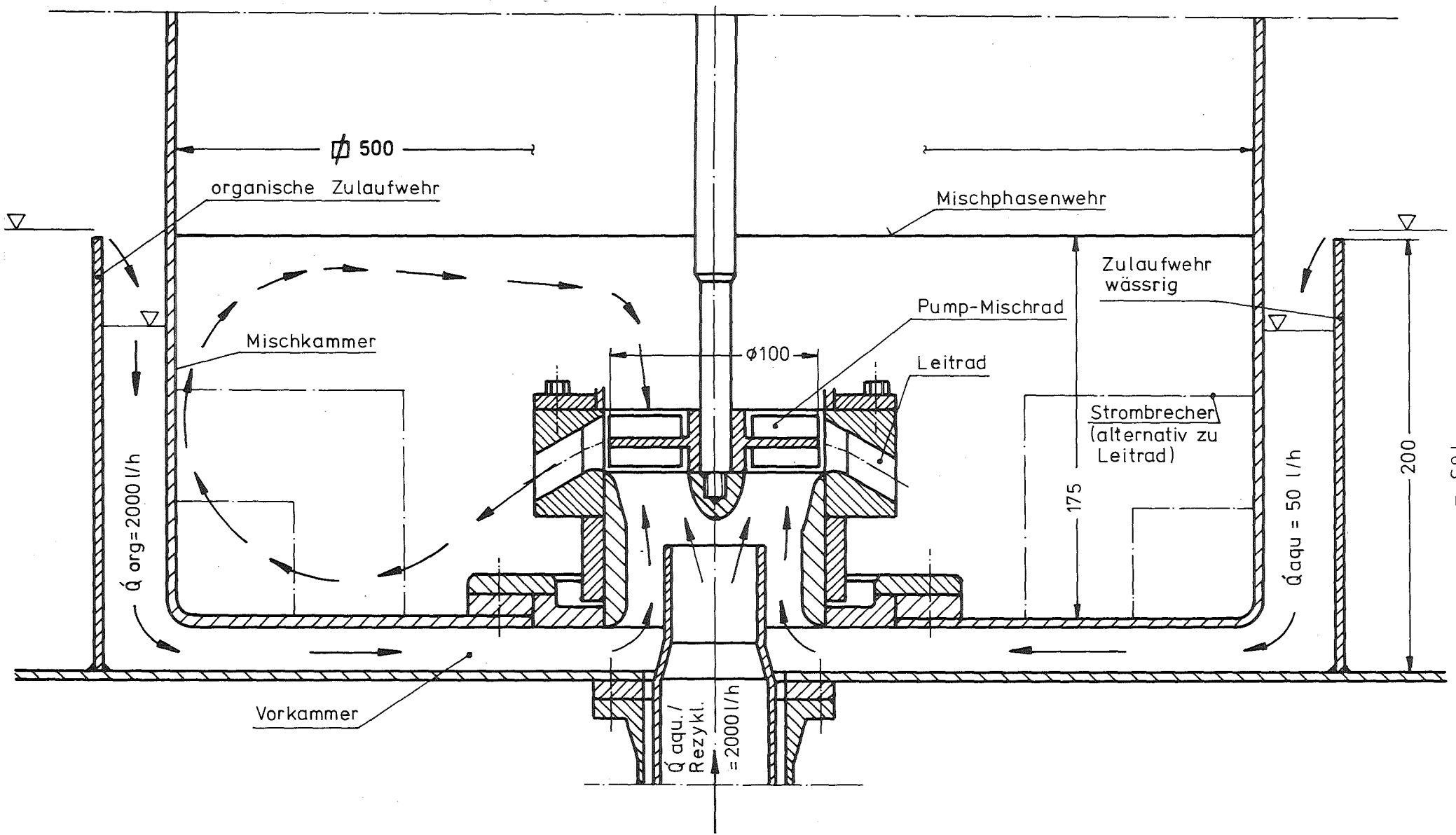


Abb. 2	Mischkammerschnitt	
--------	--------------------	--

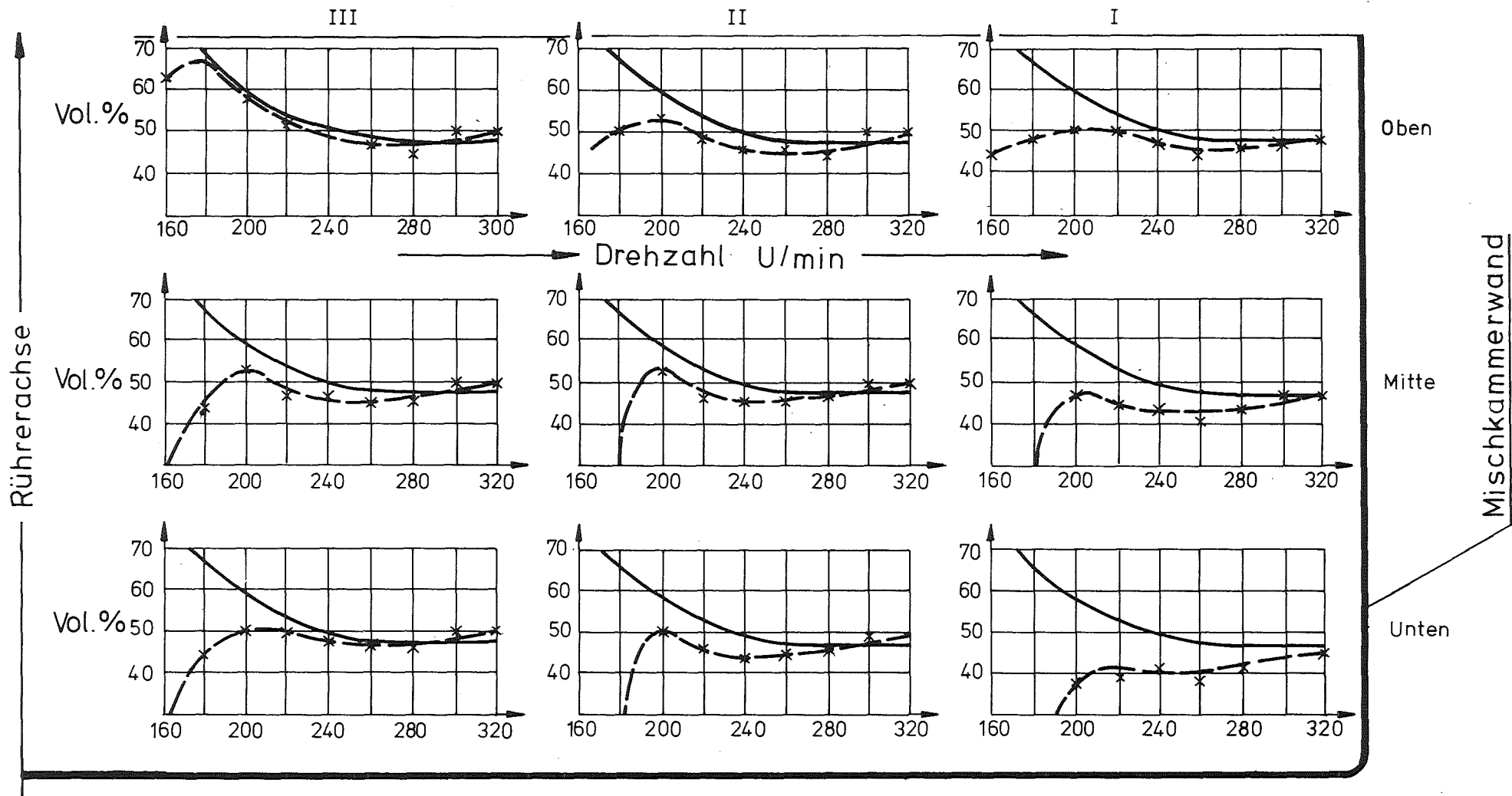
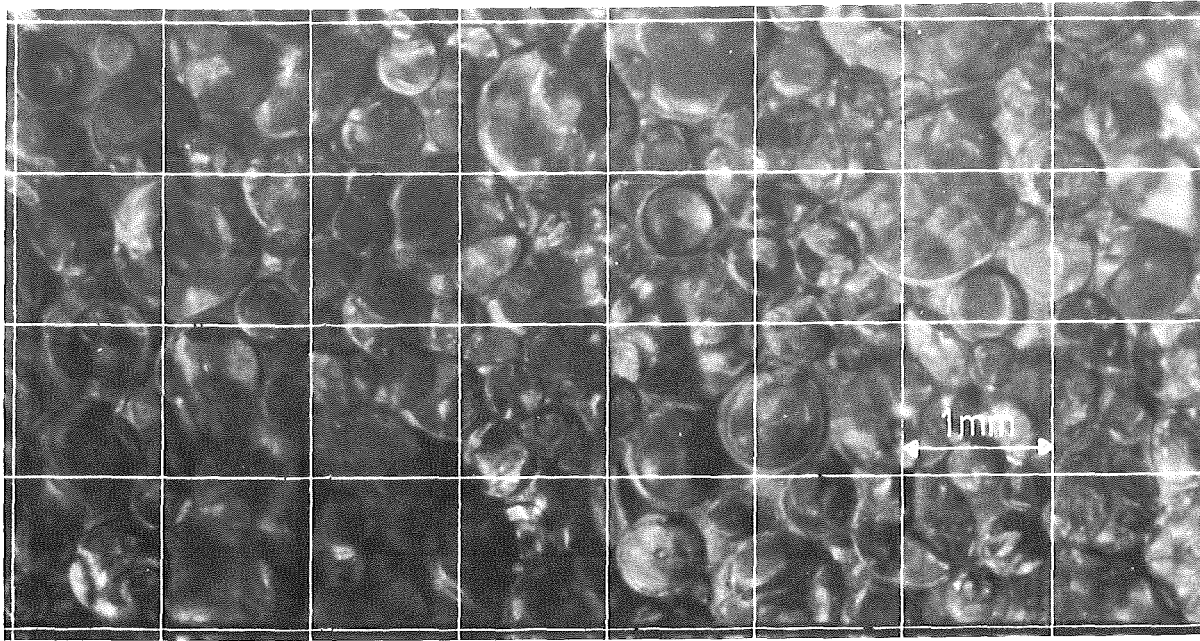
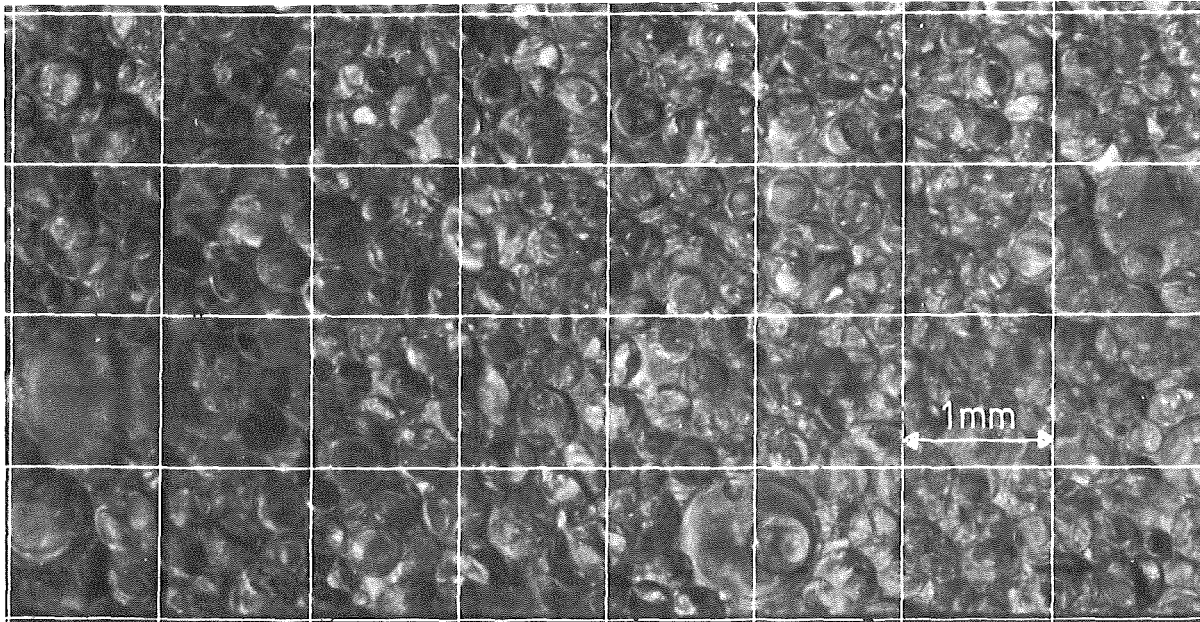


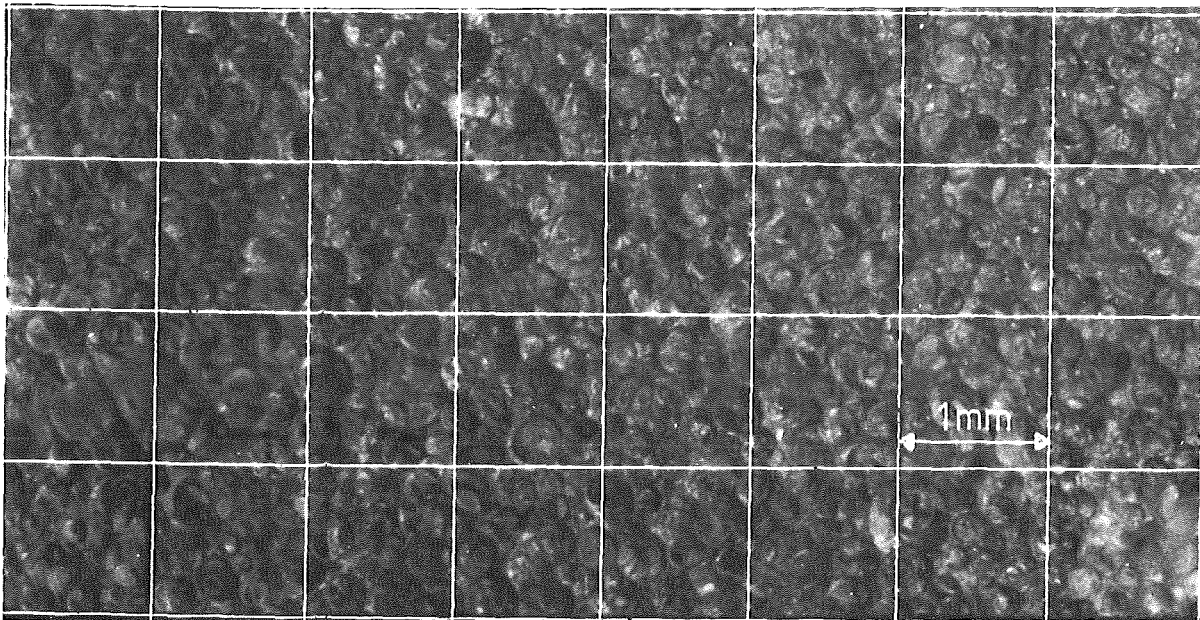
Abb. 3 | Hold up Profil
in der Mischkammer (wässrig kont.)



180 rpm



240 rpm



300 rpm



Abb. Nr. 4 Tropfengröße bei unterschiedlichen Drehzahlen

Extraktions - Stufen	Dekofaktor für Deuterium	Dekofaktor für Tritium
1	4,25	4,47
2	3,20	2,97
3	3,86	4,12
4	3,95	3,85
Gesamt Dekofaktor	207	2,10

Stufen Dekofaktoren für Deuterium
und Tritium

Abb. 5



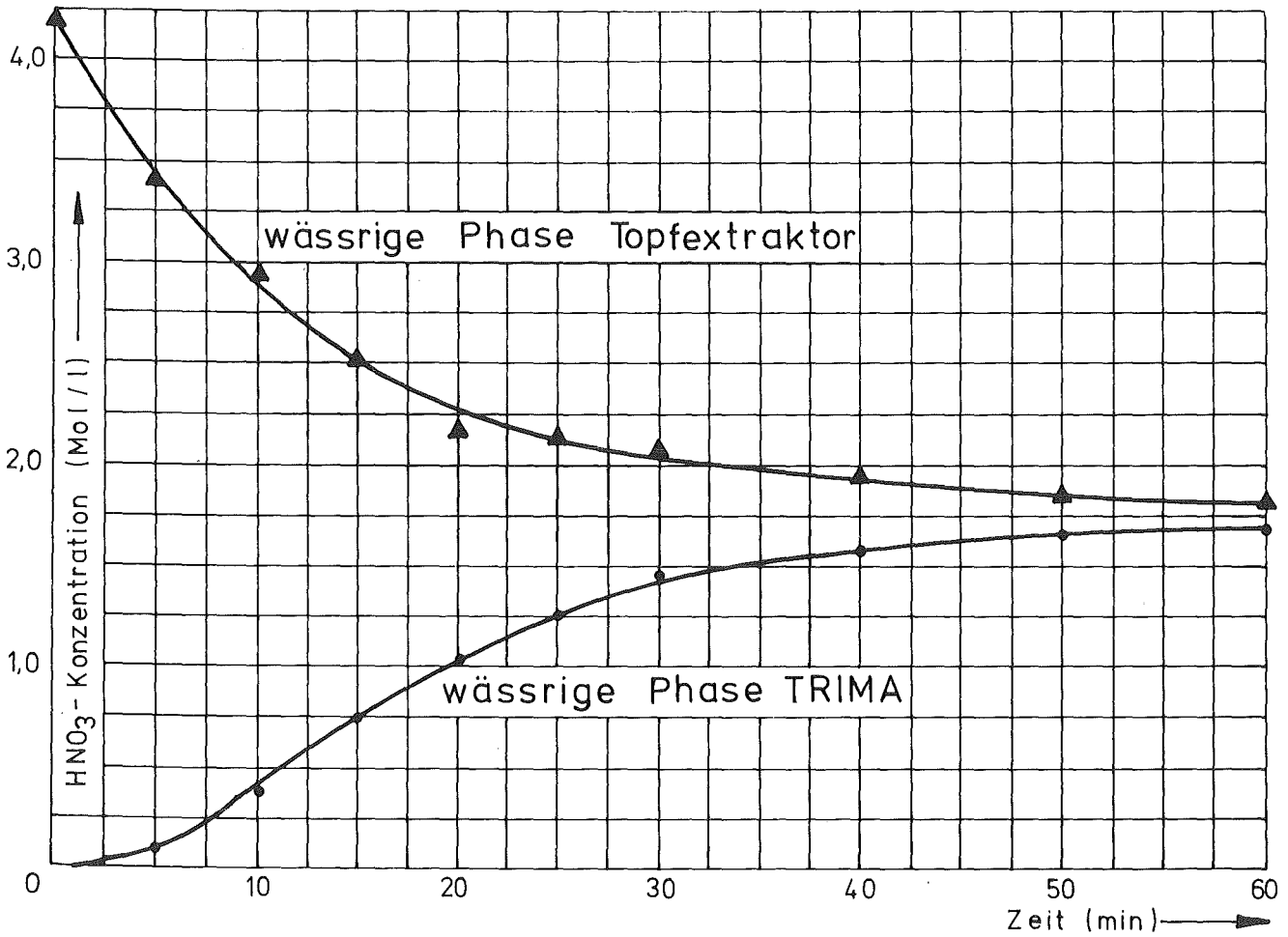
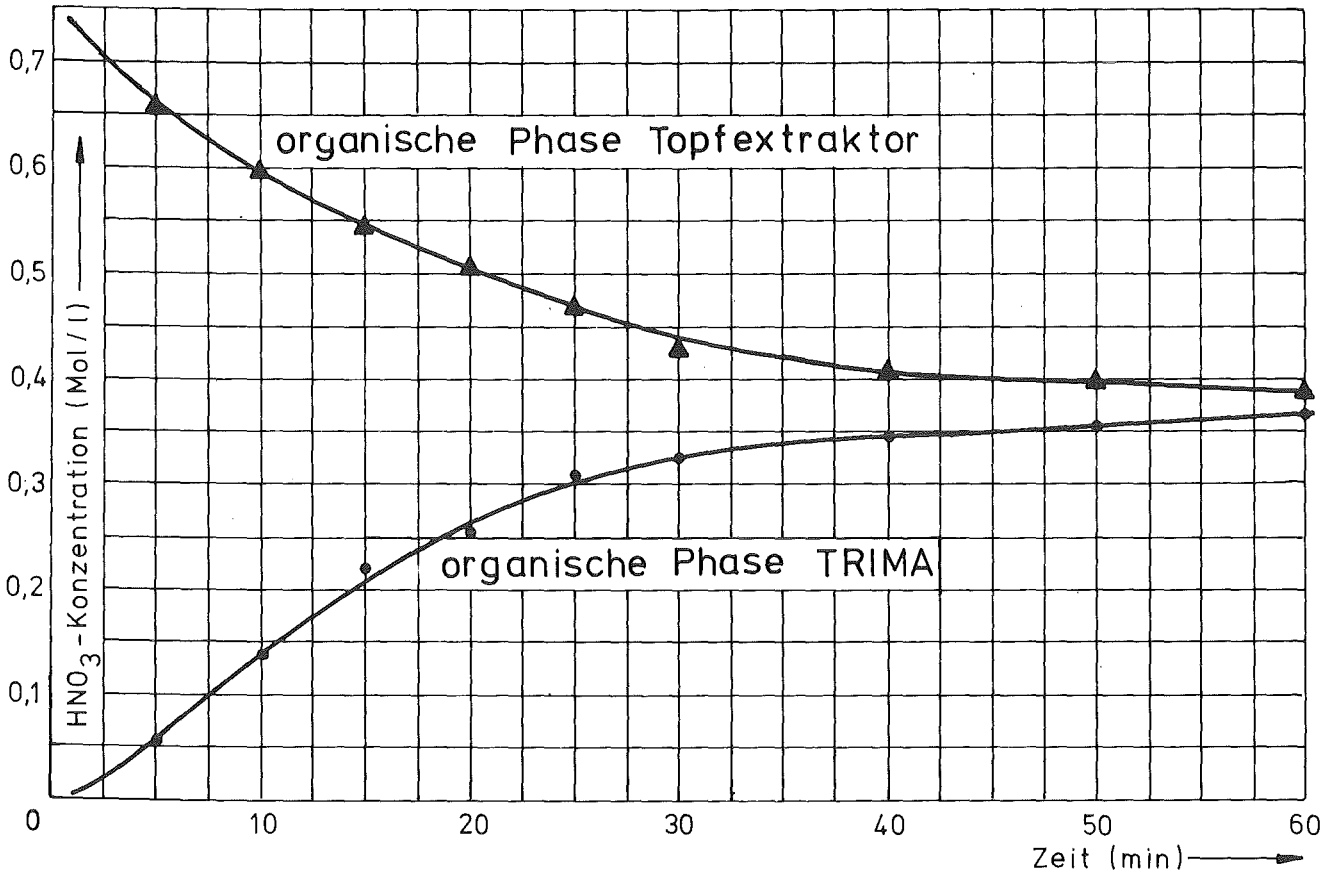


Abb. 6 Konzentrationsverlauf HNO₃-Stoffübergangversuch

HYDRAULISCHE UNTERSUCHUNGEN AN SIEB-
UND DÜSENBÖDEN VON PULSKOLONNEN

von

H. Klönk

H. Evers

H. Zimmermann

1. Einleitung

Für die optimale Extraktionswirksamkeit von gepulsten Siebbodenkolonnen spielen eine große Zahl von Parametern eine Rolle. Dazu zählen als hydraulische Parameter hold-up, Phasenlage, Tropfengröße und Tropfengrößenverteilung, als Stoffparameter Zähigkeit, Grenzflächenspannung, Stoffübergangsgeschwindigkeit u.s.f. Die hydraulischen Parameter sind verfahrenstechnisch beeinflussbar durch die Lage der Trennschicht, Pulsationsfrequenz und -amplitude, Form und Anordnung der Siebböden.

Eine wichtige Materialeigenschaft der Siebböden, die sich hydraulisch bemerkbar macht, ist das Benetzungsverhalten der einzelnen Phasen. Grundsätzlich gilt, daß ein Siebboden nur von der kontinuierlichen Phase benetzt werden darf. Wird er dagegen von der dispersen Phase benetzt, wird die Tropfenbildung und -ablösung gestört oder gar unterbunden. Es erscheinen große, unregelmäßige Dispersphasenaggregate ("Quaddeln"), die zu hydraulischen Instabilitäten führen und den Stoffaustausch behindern.

Da Metalle grundsätzlich bevorzugt wässrig benetzt werden - und auch bei einer leichten, fast immer anzutreffenden organischen Belegung überwiegt diese Eigenschaft - eignen sich metallische Siebböden in erster Linie zur wässrig kontinuierlichen Fahrweise, wie sie für die Rückextraktion gewählt wird. Dabei steigt die zu Tropfen zerlegte organische Phase im wässrigen Kontinuum auf und koalesziert an der oben liegenden Trennschicht. Für die Extraktion, und hier insbesondere die HA-Extraktion und die Wäsche in der HS-Kolonnen, wird aus verfahrenstechnischen Gründen die organisch kontinuierliche

Fahrweise bevorzugt. Dabei liegt die Trennschicht unten, die wäßrigen Tropfen fallen durch das organische Kontinuum nach unten.

Die Siebböden der HA-Pulskolonne müssen also so beschaffen sein, daß sie eine ausreichende Zerteilung der wäßrigen Phase bewirken. Sie sollten von daher organisch benetzend sein, wie es z.B. Böden aus Kunststoff wären. Es bestanden Bedenken, ob dies mit metallischen Siebböden möglich ist.

In den Kolonnen des Uranextraktionszyklus UEZ in der TEKO sind Titan-Siebböden eingebaut mit 23 % freier Lochquerschnittfläche und 3 mm Lochdurchmesser. Titan deshalb, weil es in seinen Oberflächeneigenschaften dem zur Kritikalitätskontrolle angestrebten Hafnium ähnlich ist, diese Geometrie deshalb, weil sie eine bisher übliche und "universelle" Siebbodengeometrie darstellt.

Wie die schon abgeschlossene kalte Inbetriebnahme des UEZ gezeigt hat, sind diese Siebböden in den organisch kontinuierlich gefahrenen Kolonnen in der Tat ungeeignet.

Ziel der hier beschriebenen Untersuchungen war daher einen Siebboden zu finden, der eine organisch kontinuierliche Fahrweise erlaubt, und zwar so, daß Tropfengröße und Hold-up durch die Verfahrensparameter Pulsationsenergie und Flußverhältnis kontrollierbar sind. Der Boden sollte auch aus Hafnium herstellbar sein.

2. Der Versuchsstand CAT

Um die Effekte unterschiedlicher Siebbodengeometrien und Materialien realistisch und betriebsnah zu studieren, wurde im Technikum im IHCh eine Test-Pulskolonne CAT (Cartridge-Testkolonne) aufgebaut (Abb. 1) mit einem Durchmesser von 100 mm und einer aktiven, d.h. mit Böden bestückten Länge von 3 m. Die Kolonne ist mit einem Kopf- und einem Fußdekanter versehen für sowohl wässrig als auch organisch kontinuierlichen Betrieb. Der Kopfdekanter besitzt einen Deckel, durch den die gesamte Cartridge, bestehend aus 60 Siebböden und Zentralstab, einfach gezogen und ausgetauscht werden kann.

2 Vorlagebehälter mit 2 Pumpen und der entsprechenden Verrohrung ergänzen die Kolonne zum Teststand. Gefahren wurde mit 2 m HNO₃ und 30 Vol-% TBP in Kerosin ohne und mit Uran im Gleichgewicht, das heißt ohne Stoffaustausch bei Rekyclierung beider Phasen. Gepulst wird die Kolonne pneumatisch über 2 elektronisch gesteuerte Magnetventile. Pulsfrequenzen bis 90 min⁻¹ und Amplituden bis ca. 40 mm sind einstellbar.

Die Flüsse werden über Rotameter kontrolliert, sie sind einstellbar von 50-500 l/h je Phase. Die Hold-up-Messung erfolgte diskontinuierlich durch Abstellen aller Flüsse und Messung des Volumens der koaleszierten dispersen Phase in der kalibrierten Kolonne.

Die Versuchsauswertung beschränkte sich auf die Bestimmung der Flutungskurven und der hold-up Werte sowie auf den visuellen Eindruck des Tropfenbildes in der Kolonne, quantifiziert durch fotografische Tropfengrößenauswertung und dokumentiert durch Videoaufnahmen.

3. Experimente und Ergebnisse

Da es keine geschlossene Theorie aber auch keine empirischen Untersuchungen und damit Vorhersagemöglichkeit über den Einfluß von Siebbodengeometrien auf das hydraulische Verhalten als Ganzes gibt, konnte der Versuchsablauf auch lediglich empirisch durch "Ausprobieren" sein.

Zur Darstellung des Benetzungseffektes zeigt Abb. 2 Tropfenbilder bei vergleichbaren verfahrenstechnischen Parametern an Edelstahl- und an Teflon-Siebböden, beide mit 23 % freier Querschnittsfläche und 3 mm Lochdurchmesser, 1,5 mm dick:

Der Teflonboden eignet sich, da organisch benetzt, für organisch kontinuierlich, der Edelstahlboden für wässrig kontinuierlich. Bei umgekehrter Fahrweise werden unerwünschte Quaddeln erzeugt.

Ausgangspunkt der Versuche waren die UEZ-Siebböden. Ti-Böden gleicher Art, ebenso mit einem Spezialsand gestrahlt zur Erzeugung der für Hafnium typischen Rauhtiefe von 7 μm , waren nur für wässrig, nicht für organisch kontinuierlichen Betrieb geeignet, sie wurden bevorzugt wässrig benetzt. Ein Grobsandstrahlen (Rauhtiefe 20 - 30 μm) erbrachte eine überraschende Umkehr des Verhaltens. Der entsprechende Effekt konnte jedoch später mit Edelstahlsiebblechen nicht mehr wiederholt werden. Außerdem ist das grobe Sandstrahlen nicht als wünschbare Vorbehandlung von Apparateteilen anzusehen.

Die in den folgenden Experimenten getesteten Siebböden sind in Abb. 3 zusammengestellt. Allen gemeinsam sind 23 % freie Querschnittsfläche. Wir gingen über zu Düsenböden, d.h. Siebböden mit durchgedrückten oder konisch erweiterten

Löchern. Solange der Lochdurchmesser bei den anfangs gewählten 3 mm blieb, war kein Erfolg zu verzeichnen. Auch der Düsenboden, von dem durch die geometrische Gestaltung des Loches oder des Kanals ein anderer Tropfenbildungsmechanismus erwartet wurde, verhielt sich ebenso schlecht. Eine geschlossene wäßrige Benetzung verhinderte die saubere Zerteilung der zu dispergierenden wäßrigen Phase.

Dieser Boden stand über 3 Monate in den Prozeßlösungen, eine in dieser Zeit stattfindende Belegung durch Organika ist sicher erfolgt, änderte aber die Grundeigenschaften nicht. Versuchsweise wurden einige Böden mit Teflon beschichtet, mit Erfolg, jedoch ohne Bestand der Schicht. Erst ein zufälliges Eintrocknen einiger ausgebauter und nicht abgespülter Böden führte zu einer Umkehr im Benetzungsverhalten und damit zu guten wäßrigen Tropfen.

Einen geeigneten Boden erhielten wir beim Einsatz der gleichen Düsengeometrie, jedoch mit 4,5 mm Lochdurchmesser statt 3,0 mm aber gleicher freier Lochquerschnittsfläche von 23 %. Die organisch kontinuierliche Fahrweise ist betriebssicher und mit guter Tropfenbildung möglich. Die Flutungsgrenze liegt mit max. $120 \text{ m}^3/\text{h}\cdot\text{m}^2$ außerordentlich hoch.

Dieser Düsenboden wurde genauer untersucht (Abb. 4-6). Die Flutungskurve (Abb. 4) verläuft sehr flach, bei hohen Durchsätzen kurz unterhalb des Flutungspunktes bildet sich ein Zustand aus, der hydraulisch als instabil anzusehen ist, jedoch über Stunden hinweg gehalten werden kann. An jedem Boden erfolgt bei Vor- und Rückhub eine Phasenumkehr, ohne daß dabei das Gesamtbild der organisch kontinuierlichen Fahrweise verloren geht. Dies ist auch der Grund für den flachen Verlauf der Flutungskurve bei hohen Pulsenergien.

Bei 60-80 % Flutungskapazität reagiert das Tropfenspektrum empfindlich und sofort auf veränderte Pulsationsbedingungen. Tropfengrößen von 2 - 5 mm sind gezielt einstellbar. Eine genaue Auswertung der Tropfengrößen befindet sich zur Zeit noch in Arbeit. Der Hold-up beträgt, abhängig vom Durchsatz und nur wenig beeinflusst von der Pulsation, zwischen 6 und 45 % (Abb. 5).

Bei Umkehr der Phasenlage (Verlagerung der Trennschicht nach oben, wäßrig kontinuierlich) ohne Umkehr der Düsenböden ("Fahren gegen die Düsen") ist zwar das Tropfenbild etwas gröber, das Tropfenspektrum breiter, der Durchsatz jedoch kaum vermindert.

Die Düsenböden wurden ausgebaut und für den wäßrig kontinuierlichen Betrieb umgekehrt wieder eingebaut. Auch hier konnten die gleichen hohen Durchsätze erreicht werden bei vergleichbaren Flutungs- und Hold-up-Kurven.

Die maschinelle Fertigung dieser Düsenböden ist heute kein Problem. Mit einer geringfügigen Anpassung des Stanzwerkzeuges konnten die gleichen Düsenböden auch aus 1,5 mm dickem Hafnium gestanzt werden. Eine vollständige Cartridge mit 60 Düsenböden aus Hafnium wurde gefertigt und in der CAT getestet. Die Ergebnisse sind im wesentlichen die gleichen wie an den Edelstahldüsenböden.

Zum Vergleich wurden Edelstahlsiebböden mit 4,5 mm Lochdurchmesser eingesetzt. Die Böden wurden genau wie die Düsenböden gereinigt. Bereits beim ersten Versuch zeigte sich eine geschlossene wäßrige Benetzung, die eine organisch kontinuierliche Fahrweise verhinderte. Die Kolonne flutete sofort selbst bei kleinsten Flüssen.

4. Diskussion

Um das Benetzungsproblem in pulsierten Siebbodenkolonnen bei der organisch-kontinuierlichen Fahrweise zu umgehen, gibt es zwei Möglichkeiten:

1. das Material der Einbauten ändern,
2. die benetzende Phase den Boden nicht berühren lassen.

Zu Punkt 1 ist zu bemerken, daß der Einsatz von Kunststoffböden wie z.B. Teflon, in einer heißen Anlage aufgrund der radiolytischen Zersetzung des Materials nicht machbar ist.

Im Punkt 2 ist eine Erklärung für das Funktionieren des Düsenbodens zu sehen. Zwar haben die Versuche gezeigt, daß die wäßrige Phase auf allen metallischen Düsen- und Siebböden weiterhin eine dünne Benetzungsschicht bildet. Es scheint aber so zu sein, daß die organische-kontinuierliche Phase den Boden nicht benetzt, ihrerseits aber einen Film über die wäßrige Benetzungsschicht bildet. Diese Schicht verhindert, daß die dispergierte wäßrige Phase den Boden berühren kann. Sind die Düsenöffnungen groß genug, so kann sich der organische Film auch in diese Öffnungen hineinziehen, dadurch wird dann eine gute Dispergierung der Wasser-Phase bewirkt, der Boden erscheint letztendlich organisch benetzend. Für diese Theorie spricht auch, daß bei der für Pulskolonnen üblichen optimalen Belastung von 60 - 70 % der Flutungskapazität die gebildeten Tropfen deutlich kleiner als der Lochdurchmesser sind und außerdem durch Variation der Pulsenergie in ihrer Größe einflußbar sind. Die Düsengröße ist dabei von primärem Einfluß, die Düsenform hat anscheinend sekundäre Bedeutung.

Zur Erhärtung dieser Aussagen sollten weitere Grundsatzuntersuchungen dahingehen, an einer Einzeldüse das Benetzungsverhalten in Abhängigkeit vom Düsen-Durchmesser zu untersuchen.

Die guten hydraulischen Ergebnisse des 4,5 mm Düsenbodens für den organisch-kontinuierlichen Betrieb lassen jedoch noch keine Aussage über die damit zu erzielende Trennwirksamkeit zu. Für Stoffübergangsversuche an Düsenböden wurden in den letzten Monaten die Kolonnen des Pulskolonnenteststandes UTE des IHCh umgerüstet und der Teststand für höhere Durchsätze ausgerüstet. Stoffübergangsversuche werden Anfang November beginnen.

Zum Abschluß einige Bemerkungen zur Extraktion und Rückextraktion in den wäßrig kontinuierlich betriebenen Kolonnen. Dafür sind die bisher üblichen Siebböden mit 3 mm Lochdurchmesser durchaus geeignet. Betriebserfahrungen haben aber gezeigt, daß eine Belegung der Böden mit degradierten Organika (zumindest bei niedriger Säurebelastung, wie z.B. in der C-Kolonne) im Laufe der Zeit zu erwarten ist, was zu einer erheblichen Verminderung der Belastungsgrenzen und der Trennwirksamkeit führen kann. Umständliche Reinigungs- bzw. Spülvorgänge sind daher zur Wiederherstellung der guten hydraulischen Eigenschaften notwendig, für den Betrieb allerdings nicht wünschenswert. Auch hier könnte der 4,5 mm Düsenboden mit seinen die Tropfenbildung nicht beeinflussenden Benetzungseigenschaften selbst bei extremer Belegung und Verschmutzung weiterhin wirksam sein. (Die C-Kolonne des UTE-Teststandes wurde aus diesem Grunde ebenfalls mit Düsenböden ausgerüstet). Dies wird Ziel weiterer Langzeituntersuchungen sein.

Der Einsatz eines Düsenbodens in allen Kolonnen einer WA
würde desweiteren erhebliche Konsequenzen hinsichtlich

der Kritikalität (kleinere Kolonnendurchmesser)

der Gleichgewichtseinstellung (geringeres Volumen,
kleinere Fehlchargen
beim An- und Abfahren)

der Konstruktion (höhere Steifigkeiten der Düsenböden)

nachsichziehen.

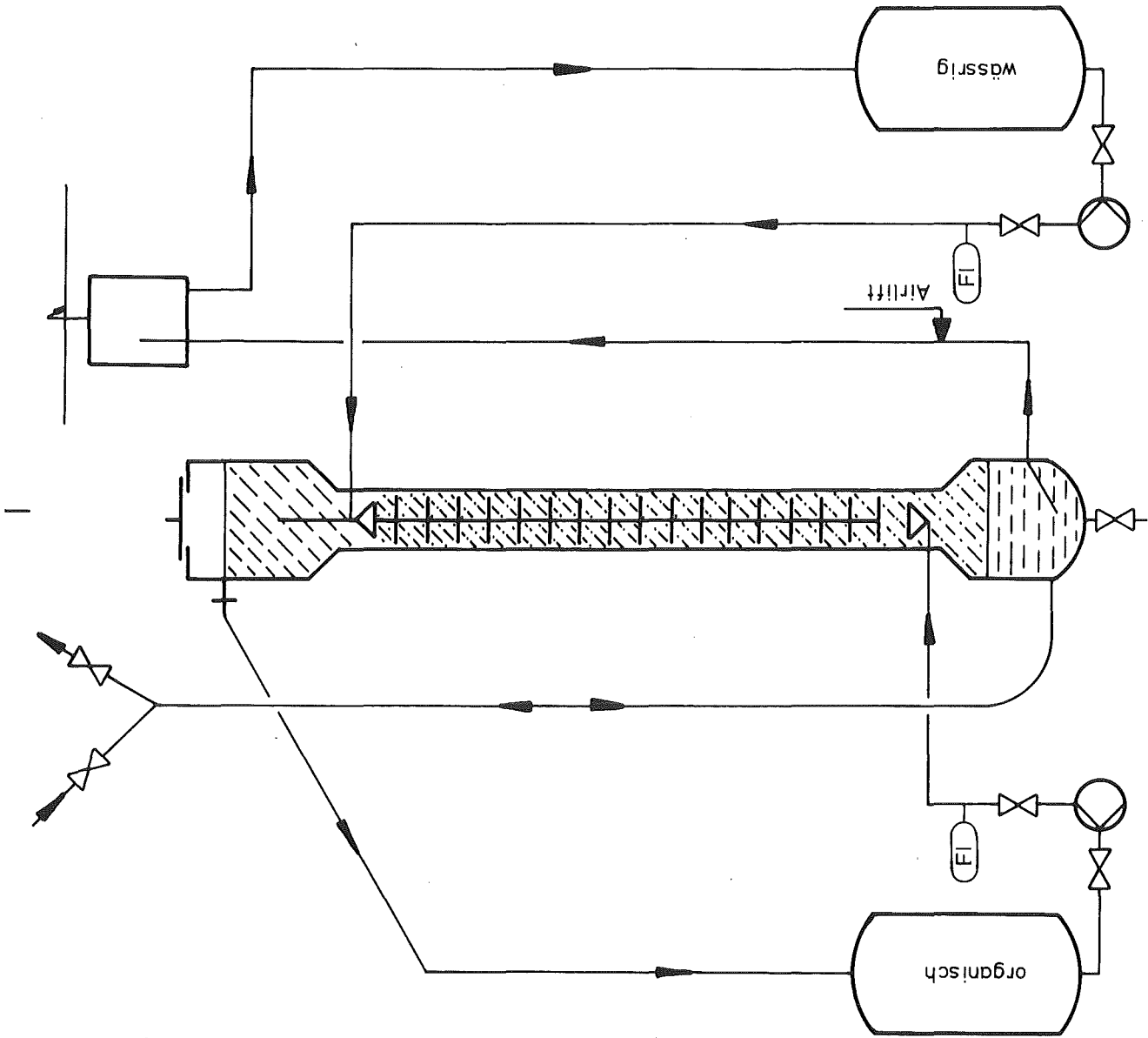
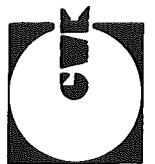
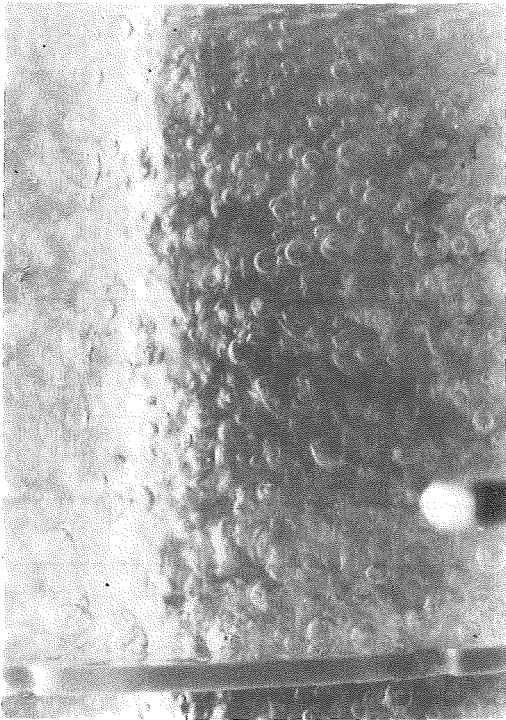


Abb.1 : CARTRIDGE-TEST-KOLONNE (CAT)





◀ Teflon
Siebboden ▶



▲
organisch kontinuierlich
▼

▲
wässrig kontinuierlich
▼



◀ Edelstahl
Siebboden ▶



Abb. 2 Tropfenbilder am Teflon- und Edelstahl-Siebboden
3 mm ϕ , 23 % freie Lochquerschnittsfläche.

Legende:
 - nicht geeignet
 + geeignet
 NG nicht getestet

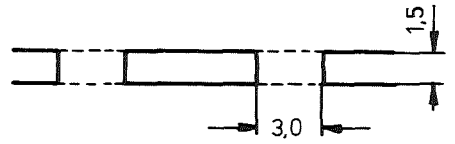
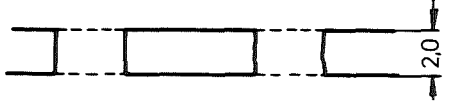
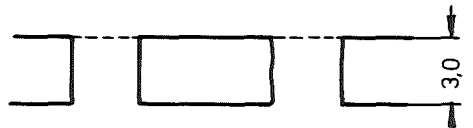
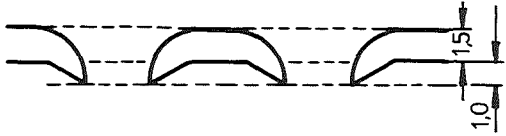


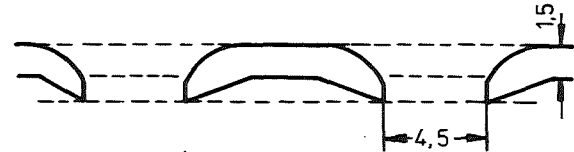
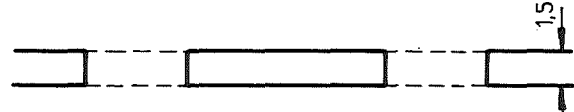
	Bezeichnung	Werkstoff					Plexiglas
		Edelstahl	Titan	Hafnium	Teflon	Edelstahl und Teflon beschichtet	
	Siebboden	-	-		+		
	Siebboden	-			+		
	Siebboden	-			+		
	Düsenboden	-				+	
	mod. Düsenboden	-					
	Doppelkonusboden	-					+
	Düsenboden	+		+			
	Siebboden	-					

Abb.3: Zusammenstellung der getesteten Sieb- u. Düsenboden



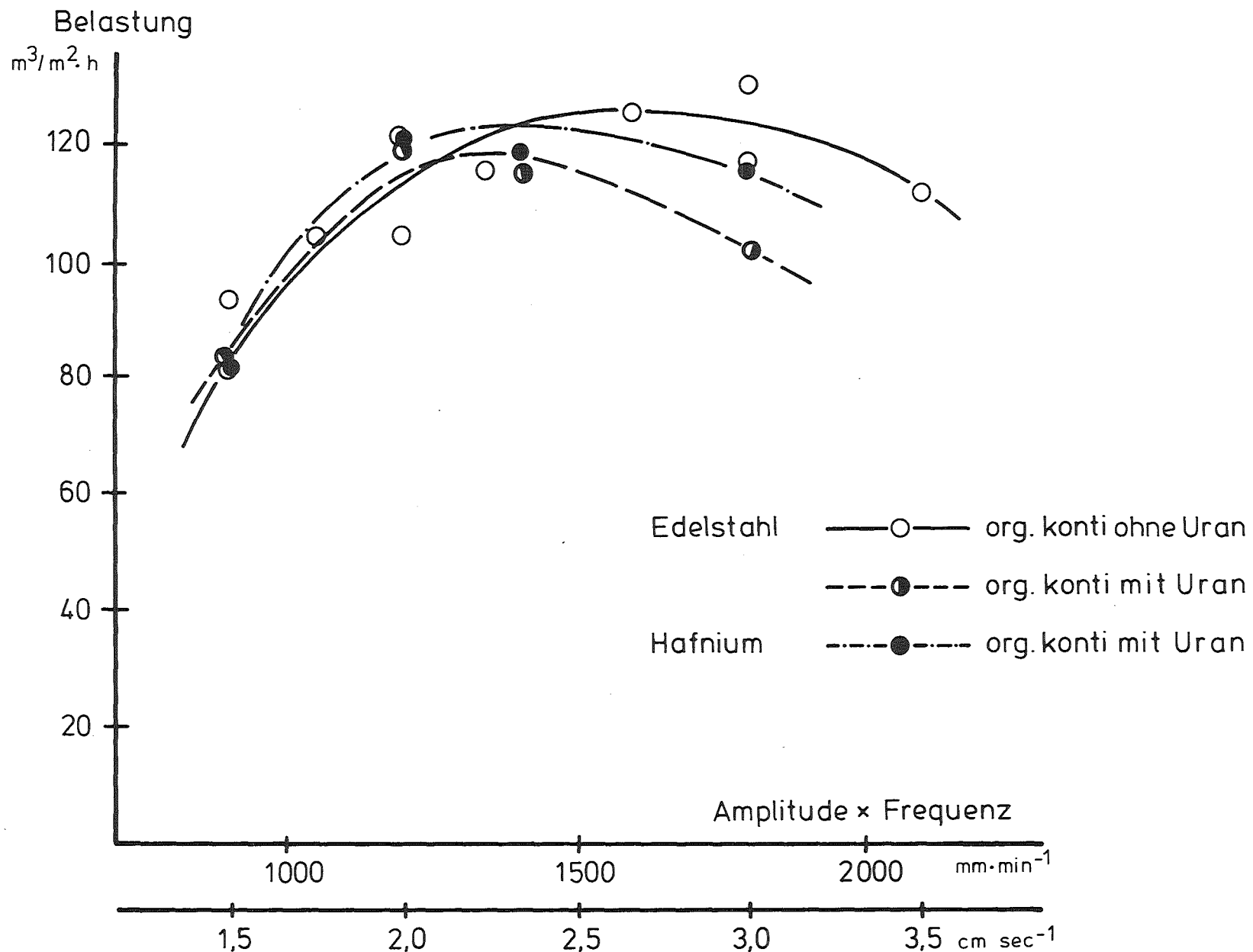


Abb.4: Flutungskurven

Düsenböden 4,5mm Lochdurchmesser , 23% freier Querschnitt

Nr.	Belastung $\frac{m^3}{m^2 \cdot h}$	FlußjePhase l/h
1	127	500
2	115	450
3	102	400
4	89	350
5	76	300
6	51	200
7	25	100

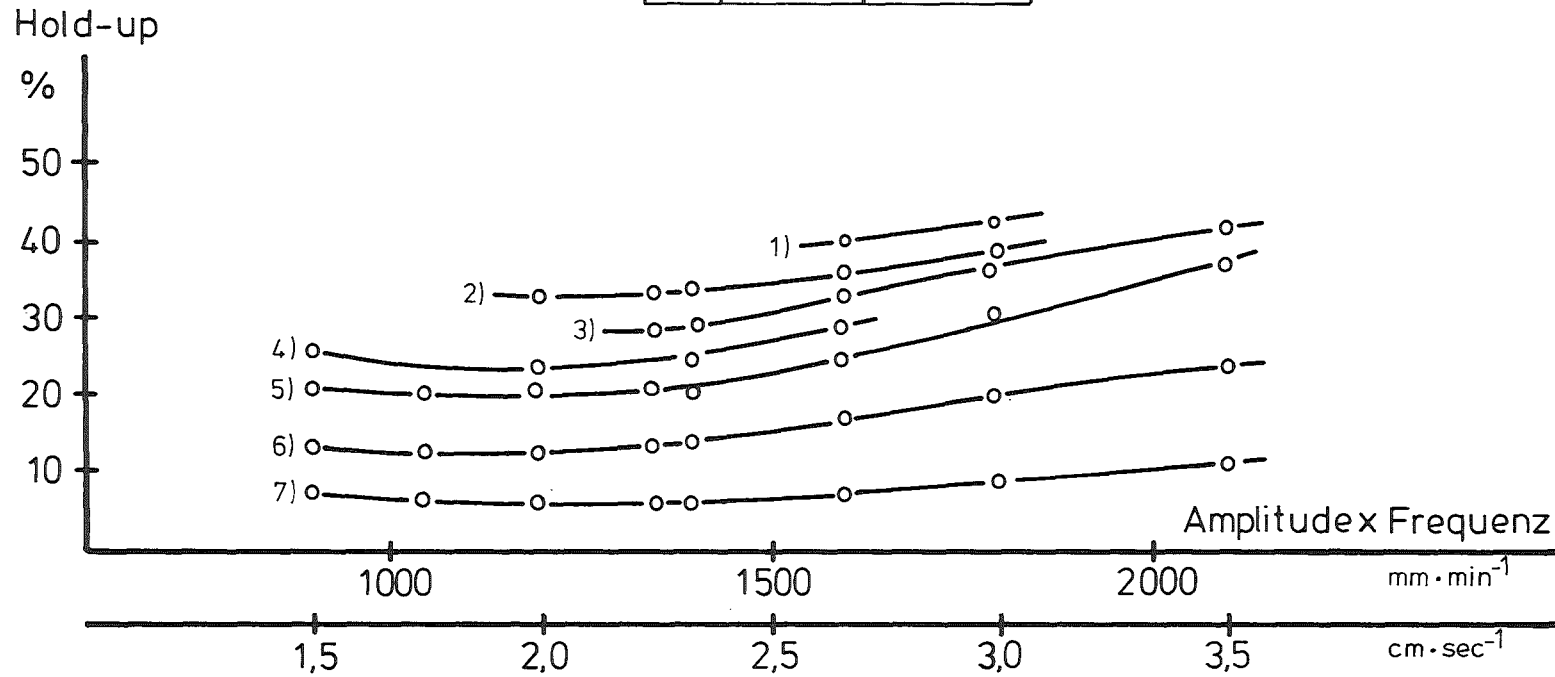


Abb.5: Hold-up Kurven organisch kontinuierlicher Betrieb ohne Uran, o:w=1

Düsenböden 4,5mm Lochdurchmesser , 23% freier Querschnitt



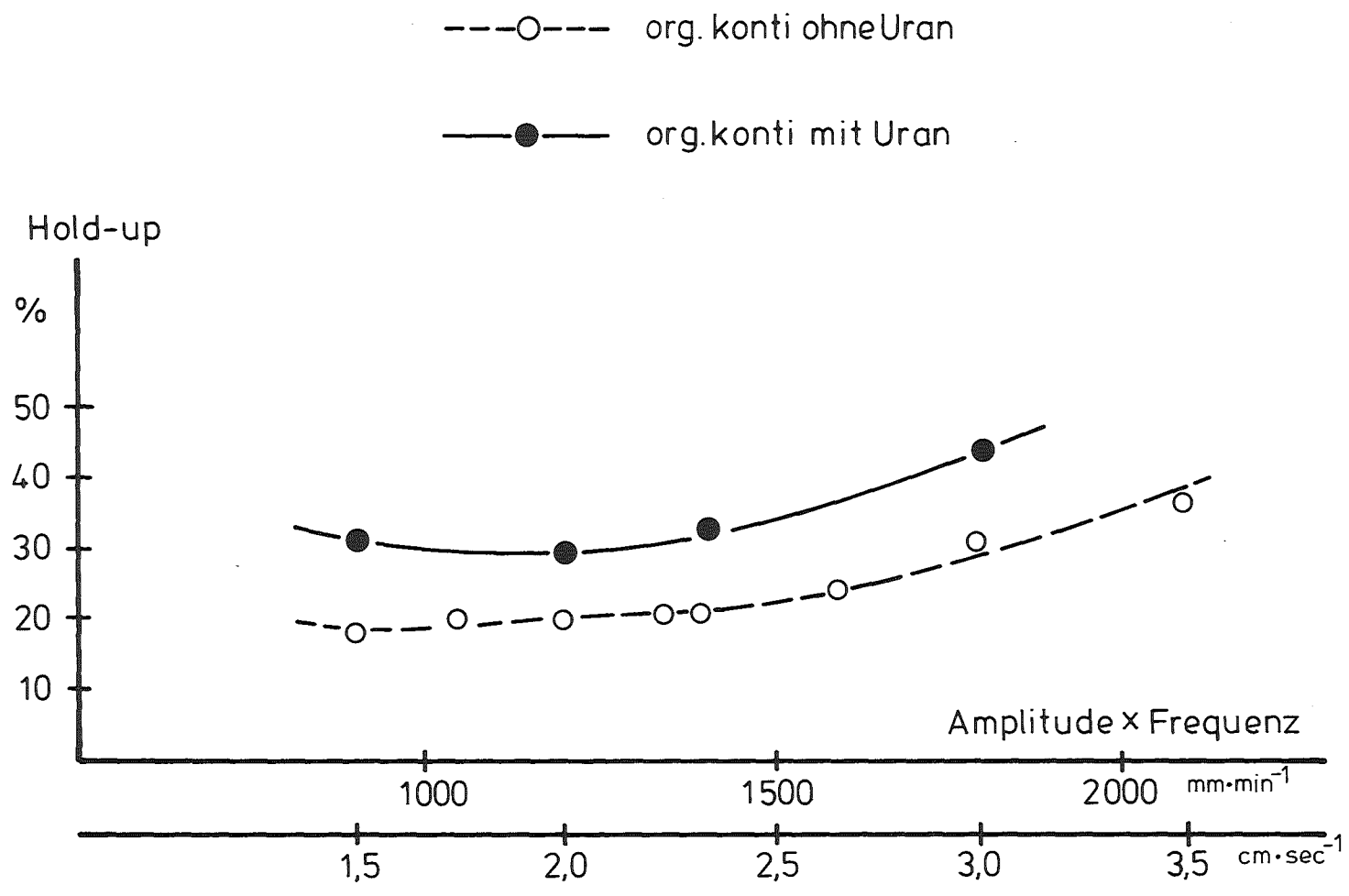


Abb.6: Hold-up Kurven für eine Belastung von $77 \text{ m}^3/\text{m}^2 \cdot \text{h}$, $\sigma:w=1$
($\cong 300 \text{ l/h}$ je Phase)



Modellbildung der Elektro-Reduktion im Purex-Prozess

G.Petrich, H.Schmieder
Institut für Heiße Chemie

1. Einleitung

Die einzelnen Extraktionsschritte des Purex-Prozesses benötigen in einer Wiederaufarbeitungsanlage etwa 20 Extraktoren. Allen Extraktoren ist gemeinsam, daß eine wässrige salpetersaure Phase im Gegenstrom mit einer organischen Tributylphosphat(TBP)/Kerosin-Phase kontaktiert wird. Der Stofftransfer erfolgt abhängig von den Prozeßbedingungen über die Phasengrenzfläche durch Extraktion oder Rückextraktion. Die Austauschraten- und Gleichgewichte sind wegen der Wechselwirkungen der beteiligten Stoffe in komplizierter Weise von Temperatur und momentanen Konzentrationen abhängig.

Schon um lediglich die Trenneffizienz eines Extraktors abschätzen zu können ist es wegen der Wechselwirkungen notwendig, die Konzentrationsprofile aller beteiligten Spezies gleichzeitig zu berechnen. Aufbauend auf die frühen Arbeiten von Ochsenfeld et al. [1] führte uns dies zur Entwicklung eines Computer-Codes für die Simulation der transienten Mehrkomponenten-Extraktion des Purex-Prozesses [2,3], der heute für folgende Routinearbeiten eingesetzt wird:

- o Demonstration der Wechselwirkungen bei der Mehrkomponenten-Extraktion.
- o Vorbereitung und Auswertung von Experimenten in Laborextraktoren;
- o Flowsheet- und Auslegungsberechnungen;
- o Abschätzung des Einflusses unvermeidlicher Prozeßschwankungen und hypothetischer Störfälle (Sicherheits- und

Inventaranalysen);

o Untersuchungen zur Prozeß-Dynamik;

Mit dem bisherigen Code war es jedoch nicht möglich, die Extraktoren zur Trennung von U und Pu zu berechnen. Die Trennextraktoren stellten eine Lücke bei der angestrebten vollständigen Simulation des Purex-Prozesses dar. Der Grund hierfür liegt in der Tatsache, daß sich in den Trennextraktoren neben den Extraktionsreaktionen simultan Reduktions- und Oxidationsreaktionen abspielen, deren Mechanismus nicht vollständig geklärt ist.

Grundlage der Trennung des Plutoniums vom Uran ist die unterschiedliche Extrahierbarkeit des 3- und des 4-wertigen Pu. Für die Verteilungskoeffizienten D gilt:

$$D_{U(VI)} \cong D_{Pu(IV)} \cong D_{HNO_2} > D_{U(IV)} > D_{HNO_3} \gg D_{Pu(III)} \cong D_{S.P.}$$

Durch Reduktion von Pu(IV) zu Pu(III) wird im ersten Extraktionszyklus Plutonium von Uran getrennt. Im zweiten und dritten Pu-Zyklus wird Plutonium jeweils extraktiv nach Reoxidation von den restlichen Spaltprodukten S.P. und nach erneuter Reduktion vom Resturan getrennt.

Die vorliegende Arbeit beschreibt den Versuch, durch ein Modell der Reaktionen den Prozeßablauf der Trennmischabsetzer zu quantifizieren.

2. Das Modell

Im folgenden sollen schrittweise die Modellgleichungen zur Beschreibung einer einzelnen Stufe eines Trennmischabsetzers aufgebaut werden. Um das entstehende Gleichungssystem übersichtlich zu halten, werden die Differentialgleichungen exemplarisch nur für Pu(IV) angegeben.

2.1 Mischabsetzerstufe ohne chemische Reaktion

Es wird angenommen, daß nur in der Mischkammer Stoffaustausch zwischen den Phasen stattfindet, nicht jedoch in der Absetzkammer. Ebenso wie das gesamte Mischkammervolumen werden die beiden

Phasenvolumina der Absetzkammer in sich als ideal gemischt angenommen. Versuche, die Absetzkammer mit einer Strömungsrichtung zu beschreiben, ergaben keine systematische Verbesserung zwischen Experiment und Theorie.

Mischkammer M:

$$D_{xy} = D_{xy} \{x_M, [U(VI)]_{aM}, [HNO_3]_{aM}, [TBP], T\}$$

$$\beta_{xy} = \beta_{xy} \{x_M, D_{xy}\}$$

$$dx_M/dt = \tau_{aM} \cdot (x_{s+1} - x_M) - \sigma_a \cdot \beta_{xy} \cdot (D_{xy} \cdot x_M - y_M)$$

$$dy_M/dt = \tau_{oM} \cdot (y_{s-1} - y_M) - \sigma_o \cdot \beta_{xy} \cdot (D_{xy} \cdot x_M - y_M)$$

Absetzkammer S:

$$dx_S/dt = \tau_{aS} \cdot (x_M - x_S)$$

$$dy_S/dt = \tau_{oS} \cdot (y_M - y_S)$$

Verwendete Symbole:

x = wässrige Pu(IV)-Konzentration

y = organische Pu(IV)-Konzentration

x_{s+1} = wässrige Pu(IV)-Feedkonzentration der Mischkammer

y_{s-1} = organische Pu(IV)-Feedkonzentration der Mischkammer

T = Temperatur

TBP = Anfangskonzentration von TBP

$D_{xy} \{ \dots \}$ = Verteilungskoeffizient von Pu(IV) als Funktion von ...

$\beta_{xy} \{ \dots \}$ = Transferkoeffizient von Pu(IV) als Funktion von ...

[...] = Konzentration von ...

t = Zeit

τ = Verweilzeit = Phasenfluß/Phasenvolumen

σ = Phasengrenzfläche/Phasenvolumen

Indizes a und o stehen für wässrig und organisch, M und S für Misch- und Absetzkammer.

Entsprechende Gleichungen ergeben sich für die zeitlichen Änderungen von U(VI) und HNO_3 .

Zur Beschreibung einer Stufe eines Mischabsetzers sind demnach für jede die Extraktion beeinflussende und selbst extrahierende Spezies 4 Differentialgleichungen und 2 algebraische Gleichungen erforderlich. Die Kopplung zwischen Misch- und Absetzkammer erfolgt über die Strömungsterme $\tau(\dots)$, die Kopplung zwischen wässriger und organischer Phase über die Stoffaustauschterme $\sigma \cdot \beta(\dots)$. Wegen der Kopplungen müssen sämtliche Gleichungen simultan gelöst werden. Im Fall der U(VI)-Pu(IV)-HNO₃ Extraktion bedeutet das 12 Differentialgleichungen und 6 algebraische Gleichungen pro Stufe.

In den nächsten Abschnitten soll auf die Berechnung der in den Modellgleichungen enthaltenen Größen D , β und σ eingegangen werden.

2.1.1 Die Verteilungskoeffizienten D

Voraussetzung für jede realistische Simulation der Gegenstromextraktion im Purex-Prozeß ist eine genaue quantitative Beziehung für die Abhängigkeit der statischen Verteilungskoeffizienten D von U(VI), Pu(IV) und HNO₃ von den jeweiligen Konzentrationen dieser 3 Spezies, vom Anteil des TBP im Verdünnungsmittel und von der Temperatur.

Es war daher vordringlich, eine Sammlung aller verfügbaren Verteilungsdaten zusammenzustellen und die Daten durch Gruppierungs- und Modellierungstechniken auf "Ausreißer" zu prüfen. Das Ergebnis ist in dem mehr als 4000 Verteilungskoeffizienten umfassenden "1981 Purex Distribution Data Index" [4] enthalten.

Auf der Basis von [4] wurden zwei auf verschiedenen Annahmen beruhende Modellgleichungen [5,6] aufgestellt, die den gesamten Datenbestand im gesamten Konzentrations- und Temperaturbereich mit guter Genauigkeit beschreiben. Durch den Einsatz zweier verschiedener Modellgleichungen kann der durch das Verteilungsmodell entstandene Fehler bei der Simulation von Konzentrationsprofilen abgeschätzt werden.

2.1.2 Die Transfergeschwindigkeit β

Die Kenntnis der Stofftransferkinetik ist Grundvoraussetzung für die Berechnung von differentiellen Gegenstromextraktoren (Pulskolonnen). Aber auch für Mischabsetzer ist die Berücksichtigung der Transferkinetik erforderlich, wenn die Verweilzeiten der Phasen in den Mischkammern zu kurz für die Einstellung des chemischen Gleichgewichts sind. Die Versuche zur quantitativen Interpretation der Messungen von Transferraten [7] zielten nicht auf die für Simulationszwecke benötigte algorithmische Darstellung ab und erwiesen sich daher als ungeeignet für diese Anwendung. Eine Neuauswertung der Daten von [7] erbrachte hier eine entscheidende Verbesserung [8]:

Als einfachster Ansatz wurden aus den Messungen von [7] die "overall"-Transferkoeffizienten β für U(VI), Pu(IV) und HNO_3 berechnet. β ist definiert durch den Ansatz für die zeitliche Änderung der Tropfenkonzentration c_{drop} :

$$dc_{\text{drop}} = \sigma \cdot \beta \cdot \{ c_{\text{drop}}(t = \infty) - c_{\text{drop}}(t) \}$$

σ ist das Verhältnis von Tropfenoberfläche zu Tropfenvolumen.

Abb.1 zeigt die Abhängigkeit der beobachteten Transferkoeffizienten β als Funktion der Steigung $\partial c_{\text{cont}} / \partial c_{\text{drop}}$ der Gleichgewichtskurve, wobei c_{cont} und c_{drop} die Konzentrationen von U, Pu und HNO_3 in der kontinuierlichen bzw. in der Tropfenphase sind. Die Steigung $\partial c_{\text{cont}} / \partial c_{\text{drop}}$ läßt sich unmittelbar aus dem Verteilungsmodell des Abschnitts 2.1.1 berechnen.

Das überraschende Ergebnis ist, daß alle Meßpunkte für U, Pu und HNO_3 um eine gemeinsame Gerade in der log-log Darstellung der Abb.1A streuen. Die Variation der Steigung beträgt nahezu 5 Dekaden, die Variation der β -Werte mehr als 2 Dekaden. Die Bedingungen der Messungen variieren stark und sind in den Abb.1B bis 1F dargestellt.

Die ursprünglichen Daten von [7] wurden bei TBP-Konzentrationen zwischen 5 und 20 Gew% gewonnen. Neue Messungen bei 36 Gew% (30 Vol%) bestätigten die allgemeine Beziehung

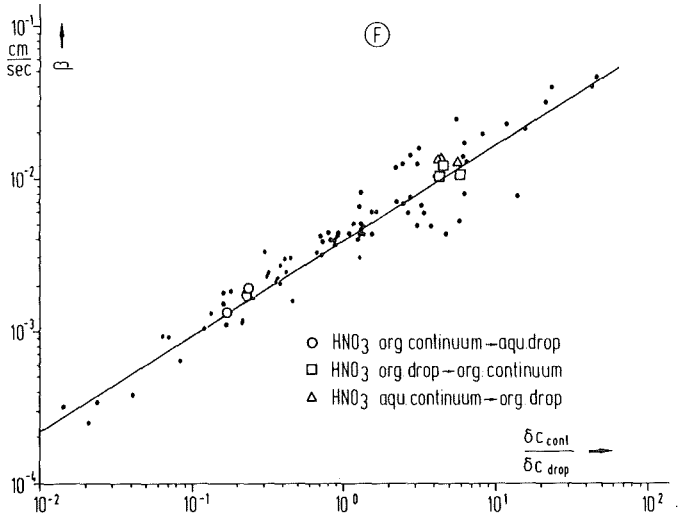
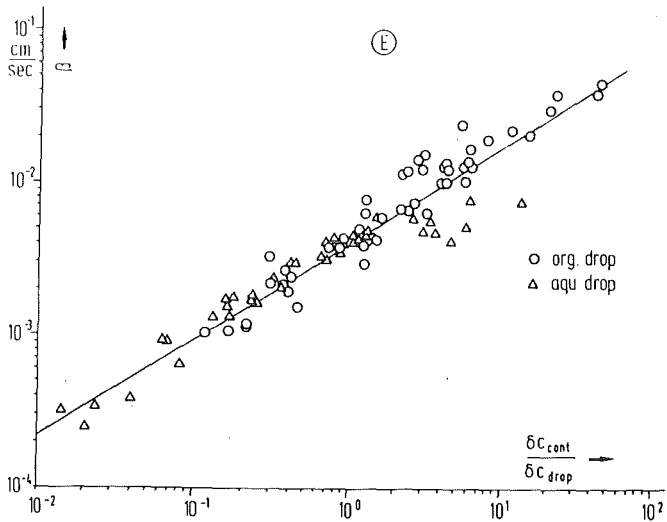
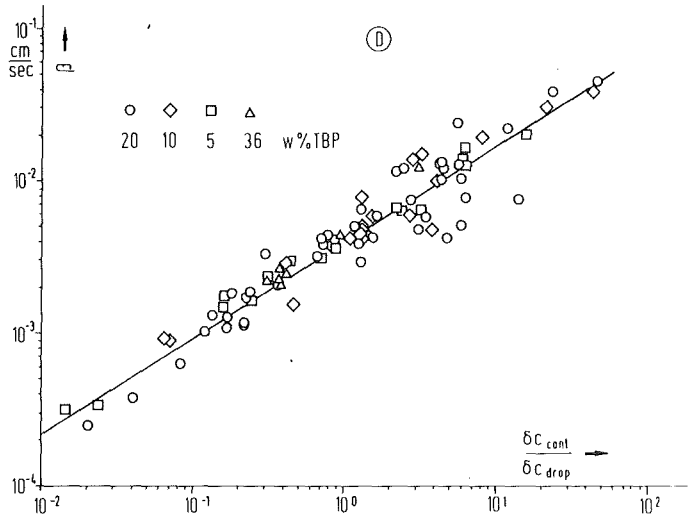
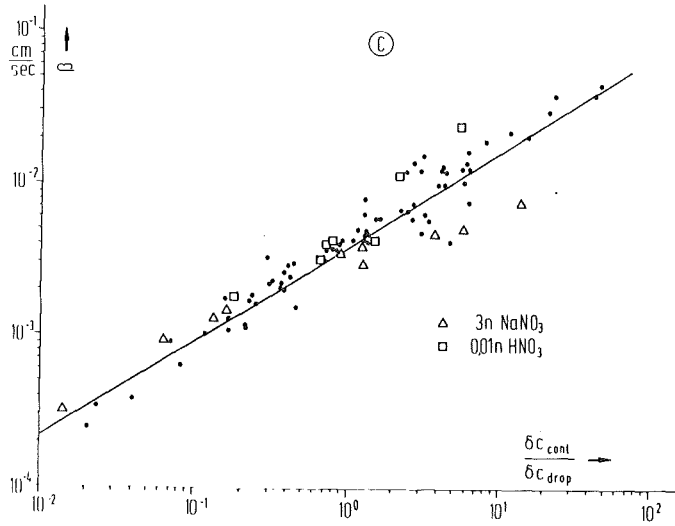
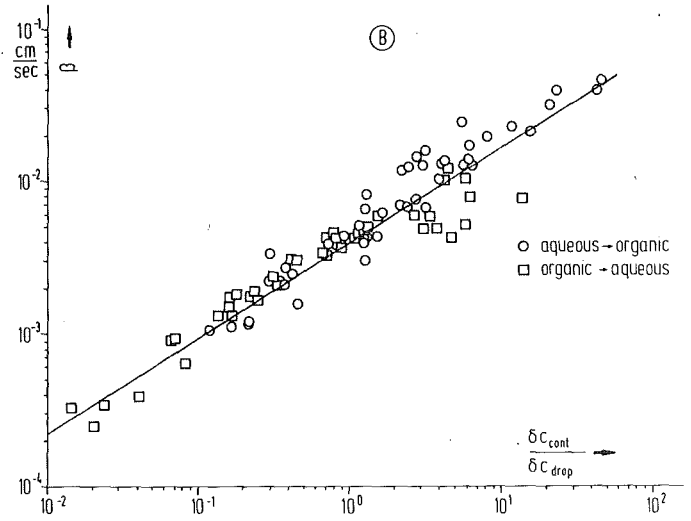
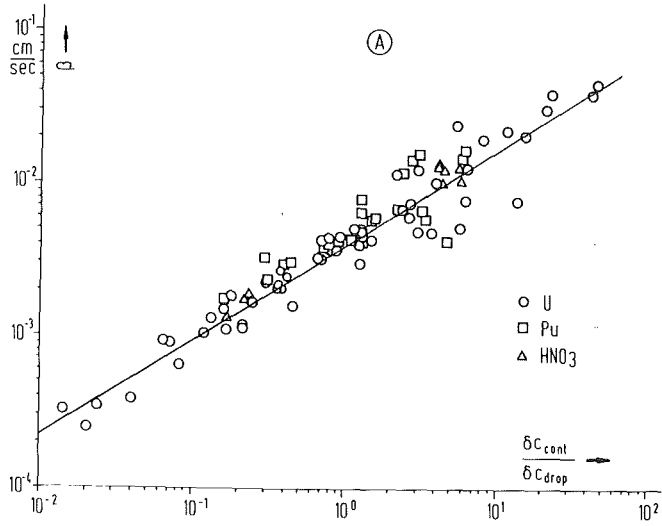


Abb.1: Die Variation der beobachteten "overall" Massentransferkoeffizienten von U(VI), Pu(IV) und HNO₃ als Funktion der Steigung der Gleichgewichtskurve.

$$\beta = \alpha \cdot \left\{ \frac{\partial c_{\text{cont}}}{\partial c_{\text{drop}}} \right\}^\gamma$$

($\alpha = 0.0038 \pm 0.0009$ cm/sec und $\gamma = 0.63 \pm 0.16$)

ohne jede Änderung der Parameter α und γ [9], wie aus Abb.1D entnommen werden kann. Diese Tatsache unterstützt die Wahl der Steigung der Gleichgewichtskurve als einzige unabhängige Variable zur Berechnung der Transfergeschwindigkeiten und verleiht dem Extrapolationsverhalten des Modells größeres Vertrauen.

2.1.3 Die spezifische Oberfläche σ

Eine allgemeine Berechnung des Tropfenspektrums und damit der spezifischen Oberfläche σ ist heute weder für Pulskolonnen noch für Mischabsetzer möglich. Für den Fall der in 3.1 besprochenen Simulation der 2B-EMMA existieren jedoch Messungen [10], die die Abschätzung ermöglichen. $\sigma \cdot \beta$ erscheint ein physikalisch sinnvollerer Modellparameter zur Beschreibung der Effektivität eines Mischabsetzers zu sein, als die von uns früher verwendeten Murphree-Stufeneffektivitäten [2,3]. Letztere wurden stets willkürlich als gleich für alle extrahierenden Spezies angenommen. Die Größe $\sigma \cdot \beta$ enthält über β die aus 2.1.2 bekannte speziesabhängige Transferkinetik, während σ das für alle Spezies gleiche Tropfenspektrum beschreibt.

Im Grenzfall 100% Effektivität wird während einer Verweilzeit 100% chemisches Gleichgewicht in der Mischkammer erreicht. Voraussetzung hierfür ist $\sigma \cdot \beta \gg 1/\tau_{aM}$ und $\sigma \cdot \beta \gg 1/\tau_{oM}$. Dann lassen sich die Gleichungen des Abschnitts 2.1 vereinfachen zu:

Mischkammer M:

$$D_{xy} = D_{xy} \{x_M, [U(VI)]_{aM}, [HNO_3]_{aM}, [TBP], T\}$$

$$dx_M/dt = \{F_a \cdot (x_{s+1} - x_M) + F_o \cdot (y_{s-1} - D_{xy} \cdot x_M)\} / (V_{aM} + D_{xy} \cdot V_{oM})$$

Absetzkammer S:

$$dx_S/dt = \tau_{aS} \cdot (x_M - x_S)$$

$$dy_S/dt = \tau_{oS} \cdot (y_M - y_S)$$

F = Phasenfluß

V = Phasenvolumen

Pro Stufe und pro Spezies sind daher nur noch 3 Differentialgleichungen und 1 algebraische Gleichung zu lösen.

2.2 Mischabsetzerstufe mit chemischen Reaktionen

Sobald in dem in 2.1 beschriebenen System U(IV) anwesend ist, wird Pu(IV) zu Pu(III) reduziert. Die Geschwindigkeitsgleichung für die wässrige Phase ist [11]:

$$d[\text{Pu(IV)}]/dt = -k \cdot [\text{Pu(IV)}] \cdot [\text{U(IV)}] / [\text{HNO}_3]^2$$

Für die organische Phase ist nur bekannt, daß die Reaktion U(IV)-Pu(IV) langsamer verläuft, eine entsprechende Gleichung ist nicht verfügbar. Für die Simulation wird daher vorläufig organisch und wässrig dieselbe Geschwindigkeitsgleichung verwendet.

Durch den nur in der wässrigen Phase vorliegenden Stabilisator N_2H_4 wird Pu(IV) ebenfalls reduziert [12]:

$$d[\text{Pu(IV)}]/dt = -\kappa \cdot [\text{Pu(IV)}] \cdot [\text{N}_2\text{H}_4] / (K + [\text{HNO}_3])$$

Das so gebildete Pu(III) wird durch unvermeidliche Spuren von HNO_2 , insbesondere in der organischen Phase, reoxidiert:

$$d[\text{Pu(IV)}]/dt = +f\{[\text{Pu(III)}], [\text{HNO}_3], [\text{HNO}_2], \dots\}$$

Die Funktion f ist nicht bekannt. Man weiß jedoch, daß brutto HNO_2 "erbrütet" wird. Der Stabilisator N_2H_4 hat die Aufgabe, diese autokatalytische Reduktion von HNO_2 zu unterbinden.

Eine Diskussion obiger Reaktionen findet sich im "2B-EMMA Betriebsbericht" [13].

Damit lauten die Gleichungen des Abschnitts 2.1 für die zeitliche Änderung der wässrigen und organischen Pu(IV)-Konzentrationen (x und y)

Mischkammer M:

$$D_{xy} = D_{xy} \{x_M, [\text{U(VI)}]_{aM}, [\text{HNO}_3]_{aM}, [\text{TBP}], T, [\text{U(IV)}]_{aM}, [\text{Pu(III)}]_{aM}, [\text{N}_2\text{H}_4]_M\}$$

$$\beta_{xy} = \beta_{xy} \{x_M, D_{xy}\}$$

$$\begin{aligned} dx_M/dt = & \tau_{aM} \cdot (x_{s+1} - x_M) - \sigma_a \cdot \beta_{xy} \cdot (D_{xy} \cdot x_M - y_M) \\ & - k_a \cdot x_M \cdot [U(IV)]_{aM} / [HNO_3]_{aM}^2 - \kappa \cdot x_M \cdot [N_2H_4]_{aM} / (K + [HNO_3]_{aM}) \\ & + f_a \{ [Pu(III)]_{aM}, [HNO_3]_{aM}, [HNO_2]_{aM}, \dots \} \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} dy_M/dt = & \tau_{oM} \cdot (y_{s-1} - y_M) - \sigma_o \cdot \beta_{xy} \cdot (D_{xy} \cdot x_M - y_M) \\ & - k_o \cdot y_M \cdot [U(IV)]_{oM} / [HNO_3]_{oM}^2 \\ & + f_o \{ [Pu(III)]_{oM}, [HNO_3]_{oM}, [HNO_2]_{oM}, \dots \} \end{aligned}$$

Absetzkammer S:

$$\begin{aligned} dx_S/dt = & \tau_{aS} \cdot (x_M - x_S) \\ & - k_a \cdot x_S \cdot [U(IV)]_{aS} / [HNO_3]_{aS}^2 - \kappa \cdot x_S \cdot [N_2H_4]_{aS} / (K + [HNO_3]_{aS}) \\ & + f_a \{ [Pu(III)]_{aS}, [HNO_3]_{aS}, [HNO_2]_{aS}, \dots \} \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} dy_S/dt = & \tau_{oS} \cdot (y_M - y_S) \\ & - k_o \cdot y_S \cdot [U(IV)]_{oS} / [HNO_3]_{oS}^2 \\ & + f_o \{ [Pu(III)]_{oS}, [HNO_3]_{oS}, [HNO_2]_{oS}, \dots \} \end{aligned}$$

Zu den angegebenen 4 Differentialgleichungen für Pu(IV) kommen jeweils 4 Gleichungen für die extrahierbaren Spezies U(VI), U(IV), HNO₃, Pu(III) und HNO₂. Das nicht extrahierbare N₂H₄ wird durch 2 Gleichungen für d[N₂H₄]_{aM}/dt und d[N₂H₄]_{aS}/dt beschrieben. Pro Stufe sind damit 26 Differentialgleichungen und 12 algebraische Gleichungen simultan zu lösen.

2.2.1 Die Aussalzeffekte von Pu(III) und Hydrazin

Wegen der neu hinzugekommenen Spezies U(IV), Pu(III) und N₂H₄ muß das ursprüngliche Verteilungsmodell

$$D_{xy} = D_{xy} \{ x, [U(VI)]_a, [HNO_3]_a, [TBP], T \}$$

auf den Funktionalzusammenhang

$$D_{xy} = D_{xy} \{ x, [U(VI)]_a, [HNO_3]_a, [TBP], T, [U(IV)]_a, [Pu(III)]_a, [N_2H_4] \}$$

erweitert werden. Die erheblichen Probleme der gleichzeitigen Bestimmung von Verteilungskoeffizienten für U(VI), Pu(IV), Pu(III) und HNO₃ in Anwesenheit von Hydrazin konnten erst kürzlich gelöst

werden [14,4].

Um einen graphischen Eindruck der Aussalzwirkung von Pu(III) und N_2H_4 auf U(VI), Pu(IV), Pu(III) und HNO_3 zu geben, zeigt Abb.2 die berechneten Verteilungskoeffizienten für einen speziellen Fall. Es zeigt sich, daß Pu(III) ähnlich wie $Al(NO_3)_3$ ein starkes nicht vernachlässigbares Aussalzmittel ist. Die Wirkung von N_2H_4 ist ähnlich der von HNO_3 .

Der Einfluß von U(IV) kann vorläufig nur aus Daten ohne Pu und N_2H_4 [4,14] extrapoliert werden. Gegenwärtig werden Messungen zum Auffüllen dieser Lücke durchgeführt [15].

In einem funktionsfähigen Trennextraktor sind die HNO_2 -Konzentrationen zu klein, um einen Einfluß auf die Verteilungskoeffizienten der anderen Spezies zu haben.

2.3 Mischabsetzerstufe mit elektrochemischen Reaktionen

Eine Diskussion der elektrochemischen Reaktionen in einem Trennextraktor findet sich in [13]. Als Beispiel seien wiederum die Reaktionen für Pu(IV) für eine Stromdichte größer als die Grenzstromdichte angegeben:

$$d[Pu(IV)]/dt = -\beta_r \cdot \Omega_c \cdot [Pu(IV)] + \beta_o \cdot \Omega_A \cdot [Pu(III)]$$

Der erste Term beschreibt die kathodische Reduktion, der zweite die anodische Reoxidation. Ω sind die spezifischen Elektrodenflächen.

Da die elektrochemischen Prozesse sich ausschließlich in der wässrigen Phase der Absetzkammer abspielen, lauten damit die vollständigen Gleichungen für die Beschreibung von Pu(IV) in einer Stufe eines Elektro-Trennextraktors:

Mischkammer M:

$$D_{xy} = D_{xy} \{x_M, [U(VI)]_{aM}, [HNO_3]_{aM}, [TBP], T, [U(IV)]_{aM}, [Pu(III)]_{aM}, [N_2H_4]_M\}$$

$$\beta_{xy} = \beta_{xy} \{x_M, D_{xy}\}$$

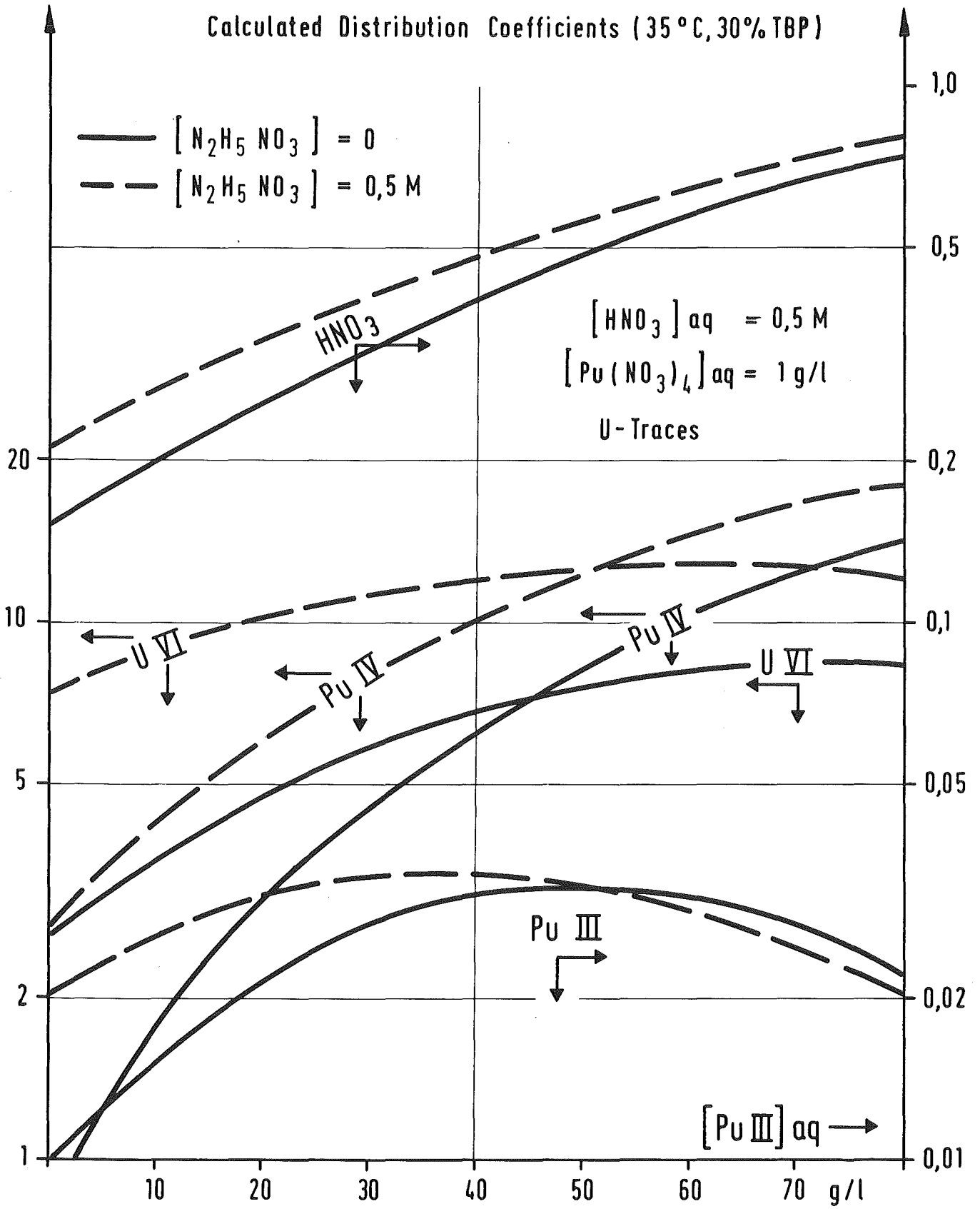


Abb.2: Berechnete Aussalzeffekte von $Pu(III)$ und N_2H_4 auf die Verteilungsgleichgewichte von $U(VI)$, $Pu(IV)$, $Pu(III)$ und HNO_3 .

$$\begin{aligned} dx_M/dt = & \tau_{aM} \cdot (x_{s+1} - x_M) - \sigma_a \cdot \beta_{xy} \cdot (D_{xy} \cdot x_M - y_M) \\ & - k_a \cdot x_M \cdot [U(IV)]_{aM} / [HNO_3]_{aM}^2 - \kappa \cdot x_M \cdot [N_2H_4]_{aM} / (K + [HNO_3]_{aM}) \\ & + f_a \{ [Pu(III)]_{aM}, [HNO_3]_{aM}, [HNO_2]_{aM}, \dots \} \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} dy_M/dt = & \tau_{oM} \cdot (y_{s-1} - y_M) - \sigma_o \cdot \beta_{xy} \cdot (D_{xy} \cdot x_M - y_M) \\ & - k_o \cdot y_M \cdot [U(IV)]_{oM} / [HNO_3]_{oM}^2 \\ & + f_o \{ [Pu(III)]_{oM}, [HNO_3]_{oM}, [HNO_2]_{oM}, \dots \} \end{aligned}$$

Absetzkammer S:

$$\begin{aligned} dx_S/dt = & \tau_{aS} \cdot (x_M - x_S) \\ & - k_a \cdot x_S \cdot [U(IV)]_{aS} / [HNO_3]_{aS}^2 - \kappa \cdot x_S \cdot [N_2H_4]_{aS} / (K + [HNO_3]_{aS}) \\ & + f_a \{ [Pu(III)]_{aS}, [HNO_3]_{aS}, [HNO_2]_{aS}, \dots \} \\ & - \beta_r \cdot \Omega_C \cdot x_S + \beta_o \cdot \Omega_A \cdot [Pu(III)] \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} dy_S/dt = & \tau_{oS} \cdot (y_M - y_S) \\ & - k_o \cdot y_S \cdot [U(IV)]_{oS} / [HNO_3]_{oS}^2 \\ & + f_o \{ [Pu(III)]_{oS}, [HNO_3]_{oS}, [HNO_2]_{oS}, \dots \} \end{aligned}$$

Der große Vorteil des Elektro-Trennextraktors gegenüber allen anderen Trennverfahren für U und Pu ist die kontinuierliche in-situ Nachbildung von U(IV) durch Elektroreduktion von U(VI). Gleichzeitig ist jedoch auch eine partielle elektrolytische Zerstörung von N_2H_4 zu berücksichtigen. Da ferner bei allen chemischen und elektrochemischen Prozessen die HNO_3 -Bilanz beeinflusst wird, müssen auch die Differentialgleichungen für alle übrigen Spezies entsprechend den oben angegebenen Gleichungen für Pu(IV) modifiziert werden.

3. Erste Simulationsergebnisse für Elektro-Mischabsetzer

Die in 2.3 teilweise angegebenen Modellgleichungen wurden in dem Computer-Programm VISCO realisiert (vgl. 3.3). Als besonders interessante Testfälle boten sich die Elektroreduktion der 2B-WAK-EMMA [13] und der 1B-MILLI-EMMA [16] an.

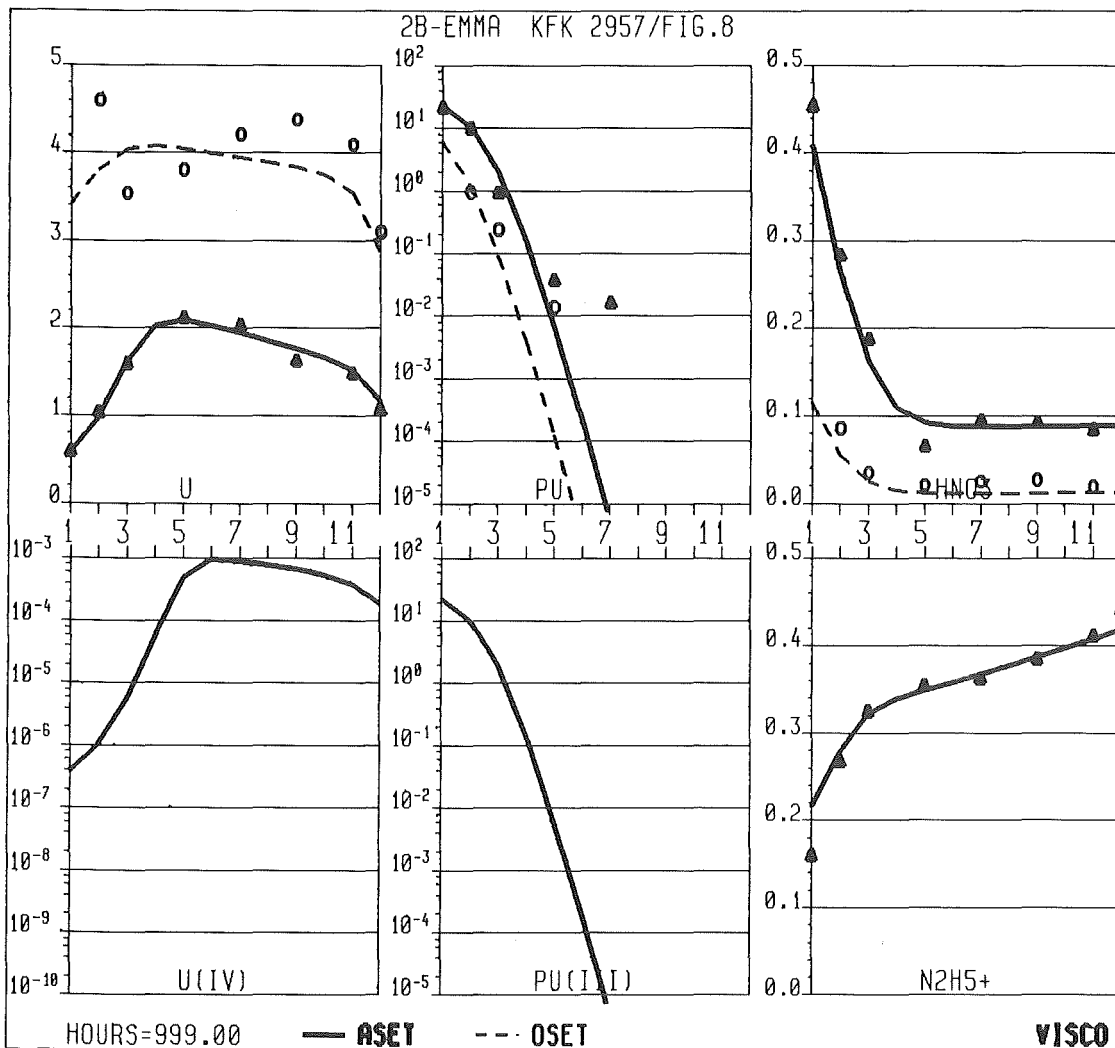


Abb.3: Gemessene (o=organisch, Δ=wässrig) und gerechnete (gestrichelt: organisch, durchgezogen: wässrig) Konzentrationen in den Absetzkammern gegen die Stufennummer der 2B-EMMA [13]. Metalle in g/l, sonst M/l. Organische und wässrige Feeds in Stufe 1 bzw. 12.

3.1 Simulation der 2B-EMMA

Im 2. Pu-Zyklus ist Pu die dominante Schwermetallspezies. Das Verhältnis von Resturan zu Pu in der Feedlösung ist im allgemeinen kleiner als 1. Wie in 2.2 gesagt, ist die Funktion f für die autokatalytische Reoxidation von Pu(III) nicht bekannt. Während in der wässrigen Phase bei ungestörtem Betrieb stets ein Überschuß von N_2H_4 vorhanden ist und damit die Autokatalyse unterbunden wird, fehlt

in der organischen Phase der Stabilisator. In der Mischphase dürfte die Reoxidation wegen des N_2H_4 an der (sehr großen) Phasengrenzfläche praktisch nicht stattfinden. Jedoch muß erfahrungsgemäß in der organischen Phase der Absetzkammer während einer Verweilzeit τ_{OS} mit einer vollständigen Oxidation von U(IV) durch das ständig durch Reoxidation erzeugte Pu(IV) gerechnet werden. In der Simulation der 2B-EMMA wird daher vollständige Reoxidation sowohl von U(IV) als auch von Pu(III) angenommen.

Abb.3 zeigt die gerechneten und gemessenen Absetzkammer-Profile (Abb.8 in [13]) im stationären Zustand. U(IV) wird in-situ durch Elektroreduktion von U(VI) erzeugt. Wegen der beschriebenen Reoxidation gibt es organische Profile in den Absetzkammern nur für Gesamt-U und -Pu, nicht jedoch für U(IV) und Pu(III).

3.2 Simulation der 1B-MILLI-EMMA

Im Gegensatz zum 2B-Extraktor ist hier das U/Pu-Verhältnis sehr groß. Die Annahme vollständiger Reoxidation in der organischen Phase der Absetzkammer kann hier vermutlich nicht gemacht werden. Solange uns die Funktion f (Abschnitt 2.2) nicht bekannt ist, wurde daher die sicher nicht richtige Annahme einer partiellen Reoxidation von Pu(III) nach einem Gesetz 1. Ordnung gemacht. Die Reoxidationsgeschwindigkeit diente dabei als "Spielparameter" (vgl. 3.3) des in Abb.4 gezeigten Simulationsergebnisses für die kombinierte 1BX/1BS-MILLI-EMMA [16].

3.3 Das Programmsystem VISCO

Der international gebräuchlichste Computer-Code zur Simulation von Purex-Konzentrationsprofilen ist SEPHIS, das während der vergangenen 13 Jahre von Savannah River, Oak Ridge und Hanford gemeinsam entwickelt wurde. Im folgenden soll ein kurzer Vergleich zwischen der jüngsten SEPHIS-Version SEPHIS-MOD4 [17] und unserem Code VISCO gemacht werden¹.

Modellgrundlage -S: stufenweise Massenbilanz

- V: wässrige und organische Misch- und Absetzkammer. Reaktion und Extraktion gleichzeitig. Reoxidation.
- Reduktionsmittel -S: U(IV), NH_3OH^+ .
-V: U(IV), N_2H_4 , Elektro-Reduktion.
- Verteilungs-Modell -S: erhebliche Abweichungen von den Daten in [4].
-V: Modell basiert auf least-square Fit der Daten in [4].
- Effektivität -S: 100%.
-V: Transfer Kinetik [8] oder Murphree Stufen Effektivität.
- Numerik -S: stufenweise Runge-Kutta Integration der Mischkammerkonzentrationen in kleinen Zeitschritten. Binäre Suche zur Lösung der integrierten Reaktionsgleichungen. Mischkammerkonzentrationen laufen unverändert durch 3 Absetzkammerzonen gleichen Volumens.
-V: simultane Integration aller Differentialgleichungen von Misch- und Absetzkammern aller Stufen.
- Stationäres Profil -S: wenn nur stationäre Lösung verlangt ist, wird die Numerik durch Trapez-Integration mit größeren Zeitschritten beschleunigt.
-V: schnelle Lösung durch Newton-Raphson Iteration.
- Implementierung -S: Batchbetrieb.
-V: Dialog mit Graphik oder Batch.
- Parameterschätzung -S: trial and error.
-V: Least-square Fit der stationären Profile möglich.

4. Zusammenfassung und weitere Arbeiten

Die numerische Simulation der Koextraktion von U(VI), Pu(IV) und HNO_3 in Purex-Mischabsetzern ist zuverlässig und gut validiert [18], sie wird für Routine-Rechnungen eingesetzt. Die in diesem Bericht

beschriebene Simulation der reduktiven Trennung befindet sich noch in der Entwicklungsphase. Erste Ergebnisse sind vielversprechend, wie die relativ gute Übereinstimmung von Messung und Rechnung der Abb.3 und 4 zeigt. Durch die numerischen Möglichkeiten unseres Programms VISCO können die kinetischen Konstanten der Redox-Reaktionen an die Meßergebnisse angepaßt werden. In den gezeigten Beispielen wurden jedoch nie die durch Experimente vorgegebenen Grenzen der Parameter überschritten.

Große Unsicherheit herrscht jedoch bei Reaktionsmechanismus und -kinetik der Redox-Prozesse in der organischen Phase. Hier müssen beträchtliche experimentelle Anstrengungen unternommen werden, bevor insbesondere der Störfall "Umkippen der B-Extraktoren" quantitativ untersucht werden kann.

Mangels experimenteller Grundlagen kann VISCO den Einfluß von HDBP nicht berücksichtigen, der beim Pu-Strip aus der organischen Phase bei Pu-Konzentrationen im mg/l-Bereich eine entscheidende Rolle spielt. Auch hier muß ein Versuchsprogramm durchgeführt werden.

Geplant ist ferner eine Erweiterung von VISCO um die Reduktionsmittel Eisen(II)sulfamat und Hydroxylammoniumnitrat. Damit kann sollen die verschiedenen Trennprozesse quantitativ verglichen und bewertet werden.

5. Literatur

- [1] W.Ochsenfeld, G.Baumgärtel, H.Schmieder in "Solvent Extraction Research", edited by A.S.Kertes and Y.Marcus, Wiley, N.Y. 1969
- [2] G.Petrich, Proc. Simulation 75, Zurich, June 1975
- [3] G.Petrich, A.Berliner, KfK-Nachrichten 3/1979, p.64
- [4] G.Petrich, Z.Kolarik, KfK-3080 (1981)
- [5] Z.Kolarik, G.Petrich, Ber.d.Bunsenges.f.Phys.Chemie, 83, 1110 (1979)
- [6] G.Petrich, in Vorbereitung
- [7] F.Baumgärtner, L.Finsterwalder, J.Phys.Chem. 74, 108 (1970)
- [8] G.Petrich, Proc.Int.Solvent Extraction Conf., Liege, Sept. 1980
- [9] G.Petrich, Springer Series in Chemical Physics, 18 (Oct.1981)
- [10] H.Willers, M.Heilgeist, G.Petrich, KfK-2763 (1979)
- [11] L.Salomon, E.Lopez-Menchero, Ind. Eng. Chem. Process Des. Develop. 9 345 (1970)
- [12] W.S.Koltunov, Reaktionskinetik der Aktiniden, Atomizdat, Moskau 1974 (russ.)
- [13] H.Schmieder, H.Goldacker, M.Heilgeist, M.Kluth, H.Hausberger, L.Finsterwalder, KfK-2957 (1980)
- [14] H.Schmieder, G.Petrich, A.Hollmann, J.Inorg.Nucl.Chem. (in print)
- [15] Z.Kolarik, persönliche Mitteilung
- [16] H.Schmieder, F.Baumgärtner, H.Goldacker, H.Hausberger, KfK-2082 (1974)
- [17] W.S.Groenier, A.D.Mitchell, R.T.Jubin, Proc. Fast Reactor Fuel Reprocessing Conf., Dounreay 15-18 May 1979
- [18] W.Ochsenfeld, H.J.Bleyl, D.Ertel, F.Heil, G.Petrich, Proc. Fast Reactor Fuel Reprocessing Conf., Dounreay 15-18 May 1979

PUREX-Prozeßanalytik - Status und Trend

D. Ertel, IHCH

1. Grundlagen

Für die Prozeßsteuerung einer Wiederaufarbeitungsanlage sind aktuelle Informationen über das Betriebsverhalten der einzelnen Extraktionsapparate unerläßlich.

Sie stammen aus

- kontinuierlichen Messungen verfahrenstechnischer Regelgrößen wie z.B. Fluß, Füllstand, Lage der Phasengrenzschicht usw.
- analytischen Bestimmungen von Stoff- und Aktivitätskonzentrationen, Wertigkeiten, Isotopenzusammensetzungen usw.

PUREX-Prozeßanalytik befaßt sich hauptsächlich mit dem zuletzt genannten Problemkreis /1/. Dabei handelt es sich überwiegend um Analysen von U, Pu, Spaltprodukten und Salpetersäure innerhalb weiter Konzentrationsgrenzen, und zwar sowohl in wäßrigen wie organischen Prozeßlösungen bei teilweise hoher Radioaktivität (Fig. 1 und 2).

Die Analyseergebnisse sollen schnell verfügbar und genau sein. Schnelligkeit garantiert die Aktualität der Information (z.B. das rechtzeitige Erkennen von Betriebsstörungen) und Genauigkeit ermöglicht zuverlässige Mengenkontrollen.

Während für die Prozeßkontrolle Schnelligkeit bei hinreichender Genauigkeit im Vordergrund steht, verlangt die Charakterisierung und Bilanzierung von Kernbrennstoffen höchste analytische Präzision. Man unterscheidet deshalb zweckmäßig folgende Kategorien

von WA-Analytik:

Prozeßanalytik Betreut den laufenden Betrieb. Typisch sind personalintensive Schichtarbeit, hohe Analysenzahlen, Schnelligkeit.

Bilanzanalytik Befaßt sich mit der Qualität und Quantität der bearbeiteten Kernbrennstoffe und mit Fragen der Spaltstoffflußkontrolle.

Charakteristisch sind höchstmögliche analytische Präzision und hohe Analysenkosten.

Sicherheitsanalytik Beschäftigt sich mit den sicherheitsrelevanten Aspekten des Anlagenbetriebs:

Untersuchung von Störfällen, Korrosionsprobleme, Analyse von Emissionen und Abfällen.

2. Arbeitstechnik und -aufwand

Alle analytischen Arbeiten unterliegen denselben Rahmenbedingungen wie der Anlagenbetrieb: Strahlungsabschirmung und Kontaminationschutz sind hier wie dort unerläßlich. Daraus ergeben sich weitreichende Konsequenzen für die Arbeitstechnik und die Struktur der Analytiklabors.

Kennzeichnend ist fernbedientes Arbeiten in Heißen Zellen und direktes Hantieren von Lösungsproben in Handschuhboxen. Kennzeichnend ist ferner die häufig schwierige Anpassung analytischer Instrumente an die Zellen/Boxen-Technik und auch das aus analytischer Sicht besonders heikle Problem der Crosskontamination.

Der analytische Aufwand bei kerntechnischen Anlagen ist deshalb etwa dreimal so groß wie in konventionellen Labors.

Die Anzahl der erforderlichen Analysen ist abhängig vom Anlagenkonzept (Kapazität, Fließschema, Behälterzahl), von anlagenbedingten Forderungen und - last not least - auch vom (subjektiven) Informationsbedürfnis der Betriebsmannschaft.

Die personelle analytische Arbeitsleistung andererseits ist sowohl eine Funktion der Laborinstrumentierung und Arbeitstechnik als auch der Arbeitsorganisation.

Man kann z.Zt. mit folgenden Orientierungsdaten rechnen:

- Personelle Arbeitsleistung 1500 Analysen/Mannjahr
- Laborgröße 15 m²/Mann

3. Rationalisierungsmaßnahmen

Die 1500 jato-Anlage in Barnwell/USA ist mit 800 Analysen/Tag projektiert. Das würde mehr als 100 Mann Analytikpersonal und etwa 2000 m² Laborfläche bedeuten. Angesichts solcher Zahlen ist der Ruf nach Rationalisierung verständlich.

Am besten eignet sich dafür die Kategorie Prozeßanalytik. Denn deren hoher Personalbedarf und die allgemeine Forderung nach Verminderung personeller Strahlungsbelastung (ALARA-Prinzip) bieten günstige Ansatzpunkte. Daneben werden aber auch von der Bilanzanalytik zeitnähere Informationen verlangt, um aktuelle Materialkontrollen durchführen zu können ("near-real time accountancy").

Es gibt zwei prinzipielle Rationalisierungsmöglichkeiten:

- Automatisierung häufig wiederkehrender Arbeitsgänge im Labor
- direkte Analyse im/am Prozeßstrom.

Bei der Laborautomatisierung bieten sich gute Möglichkeiten überall dort, wo einfache Routinetätigkeiten substituierbar sind; also etwa bei der Ausführung chemischer Trennungen, bei der Herstellung von Meßproben usw. Die Entwicklung entsprechender Geräte läuft seit Jahren und zwar überwiegend in Eigeninitiative. Denn die einschlägige Industrie engagiert sich kaum wegen des marktwirtschaftlich unergiebigsten, kleinen Interessentenkreises, der obendrein exotische Ansprüche stellt.

Für die analytischen Messungen selbst und deren Auswertung bieten die handelsüblichen Analyseninstrumente einen so hohen Automatisierungsgrad, daß weiterführende Entwicklungen kaum notwendig sind.

Auf organisatorischem Gebiet schließlich gibt es seit einiger Zeit erfreuliche Ansätze zur Verbesserung des Informationsaustausches zwischen Labor und Betrieb. Angefangen von der automatischen Probenidentifizierung und -verteilung über die Organisation des Arbeitsablaufs bis hin zur Registrierung, Darstellung und Dokumentierung von Labordaten gibt es bereits praxisnahe Konzepte /2,3/.

Die Alternative sind Inline-Instrumente /4/. Sie basieren auf der bestechenden Idee, durch den Vor-Ort-Betrieb spezifischer analytischer Sensoren Informationen praktisch verzögerungsfrei zu gewinnen und möglichst unmittelbar zur Prozeßsteuerung einzusetzen; man unterscheidet den eigentlichen Inline-Betrieb vom Online-Betrieb im Nebenstrom (Fig. 3). Obwohl es in der konventionellen chemischen Technik für solche Lösungen Beispiele gibt,

stehen einer kerntechnischen Realisierung dieses Konzepts hohe Barrieren im Wege, allen voran die Randbedingungen, die der WA-Prozeß setzt. Das ist natürlich eine Herausforderung an Ingenieure, Meßtechniker und Analytiker. Sie hat zur Folge, daß Inline-Instrumente aller Art konzipiert und entwickelt werden. Allerdings ist deren praktische Anwendung keineswegs unproblematisch. Meist sind nämlich die Konstrukteure und Entwickler von automatisierten Analysengeräten nicht identisch mit den potentiellen Anwendern, und aus dieser Tatsache resultieren Schwierigkeiten:

- Mangelnde praktische Betriebserfahrungen können dazu führen, daß manche Geräte den harten Anforderungen des Anlagenbetriebs nicht gewachsen sind; ihr Ausfall könnte zu empfindlichen Betriebsstörungen führen.
- Brauchbare Instrumente entstehen meistens nicht durch einen genialen Schöpfungsakt, sondern als Produkt eines Entwicklungsprozesses, der sich iterationsartig den Realitäten anpaßt. Beide Interessengruppen müssen deshalb Kooperationsbereitschaft und Stehvermögen zeigen.
- Es gibt einen verständlichen Interessenskonflikt zwischen Entwicklern und Anwendern: Die einen wollen kein Risiko eingehen und nur Erprobtes anwenden, den anderen fehlen aber die realistischen Testbetten für ihre Entwicklungen.

Aus dieser Situation sind Schlußfolgerungen zu ziehen: Die Entwicklung von Laborautomaten und Inline-Instrumenten verlangt eine rechtzeitige Absprache und später eine permanente Zusammenarbeit zwischen Entwicklern und Anwendern. Die Vorschläge sollten dabei in der Regel von den praxiserfahrenen Betriebsleuten kommen.

4. Kontrollmaßnahmen

Neben dem Rationalisierungsdruck prägen auch Kontrollmaßnahmen die analytische Arbeit, nämlich die gegen eine kriminelle Entwendung von Kernmaterial gerichteten administrativen und technischen Sicherungsmaßnahmen und die Direktiven der internationalen Spaltstoffflußkontrolle.

Es wird verlangt, daß alle Kernmaterialien, die in eine WA-Anlage hineingehen, sich darin befinden und sie wieder verlassen jederzeit qualitativ und quantitativ bekannt und nachweisbar sein müssen.

Das ist eine höchst anspruchsvolle analytische Aufgabe, denn sie erfordert Präzision und Schnelligkeit.

Zur Realisierung dieses Konzepts unterteilt man WA-Anlagen in Materialbilanzonen, deren Spaltstoffinhalte durch Inventaranalysen und Kontrollmessungen an den Transferstellen (Schlüsselmeßpunkte) bestimmt werden (Fig. 4). Das sind auf der Eingangsseite Brennelementlager und Accountability-Tank, auf der Ausgangsseite die U- und Pu-Produkte sowie die Waste-Behälter. Der eigentliche Extraktionsteil ist als MBA II deklariert.

Der Entwicklungstrend ist durch zwei Aspekte gekennzeichnet:

- Aktualisierung der Materialbilanzen,
- Verfälschungssicherheit analytischer Daten.

Mit wachsender Anlagengröße und immer engeren Mengentoleranzen gewinnt der Faktor Zeit erhebliche Bedeutung. Man fordert dynamische Materialbilanzierungen /5/ und meint damit quasi verzögerungsfreie Messungen (0-30 Minuten) von U, Pu-Konzentrationen

und -Flüssen mittels Inline-Instrumenten. Für die "kalte Seite" von WA-Anlagen (U, Pu-Produkte), die wegen der Dichte und Reinheit der Kernmaterialien besonders diversifikationsrelevant ist, wurden bereits leistungsfähige neue Entwicklungen vorgestellt /6/, deren realistische Erprobung unmittelbar bevorsteht. Es handelt sich dabei um gamma- bzw. röntgenspektrometrische Methoden zur Element- und Isotopenanalyse und um genaue Durchflußmessungen mittels akustischer und kalorischer Methoden. Auf der "heißen Seite" ist wegen der viel härteren Randbedingungen vorerst nicht mit der Verfügbarkeit leistungsfähiger Inline-Instrumente zu rechnen; man wird auf absehbare Zeit die bewährten Labormethoden (IDMS, Coulometrie, Potentiometrie, RFA) kaum entbehren können.

Im Hinblick auf die geforderte analytische Genauigkeit ist anzumerken, daß der bisweilen ausgezeichneten Reproduzierbarkeit von Analyseergebnissen eine adäquate Richtigkeit der Resultate entsprechen sollte. Die Erfahrung zeigt aber, daß dies nicht immer zutrifft und Anlaß von Mengendifferenzen sein kann, die den Kontrollmaßnahmen abträglich sind. Da es sich hierbei stets um Fragen der Standardisierung und Eichung der Analysemethoden handelt, sollten diese Schwierigkeiten durch koordinierte Maßnahmen der Kontrollinstanzen überwindbar sein.

Das andere Hauptthema ist die Verfälschungssicherheit von Brennstoffchargen. Deren Kennzeichnung aufgrund typischer, mit ihrer Vorgeschichte verbundener Merkmale ist ebenfalls eine analytische Aufgabe. Meist benutzt man die Konzentrationen von U und Pu und deren Isotopenzusammensetzungen und ermittelt, ob bestimmte Isotopenverhältnisse und Konzentrationen miteinander korrelieren /7/. So wurde z.B. empirisch gefunden, daß das U/Pu-Verhältnis von LWR-Brennstoffen mit der ^{235}U -Anreicherung korreliert, daß das ^{242}Pu -Gehalt von LWR-Brennstoffen eine Konzentrationsfunktion der anderen Pu-Isotope ist, und daß

auch das Isotopenverhältnis ausgewählter Spaltprodukte (z.B. Xe-132/131, Ce-134/137) funktional mit der Konzentration bestimmter Spaltstoffnuklide zusammenhängt. Diese sog. Isotopenkorrelationen lassen sich durch äußere Eingriffe praktisch nicht verändern. Sie sind in der Art eines Fingerabdrucks unverwechselbar typisch für ganze Brennstoffchargen und stellen somit ein wertvolles Hilfsmittel im Sinne der Kontrollmaßnahmen dar.

5. Ausblick

Der Betrieb älterer WA-Anlagen wird ganz überwiegend durch Laboranalytik betreut; es gibt nur wenige - aber bewährte - Inline-Instrumente, die hauptsächlich auf Messungen der Kernstrahlung (γ, α, n) beruhen. Solche Anlagen sind im Hinblick auf die Einführung neuer Meßtechniken oder Kontrollmaßnahmen **nur wenig geeignet**.

Moderne Anlagen bieten dafür weitaus bessere Möglichkeiten. Die Barnwell-Anlage beispielsweise ist so konzipiert, daß die meisten Probenahmekreisläufe auch Inline-Instrumente aufnehmen können. Das Risiko nicht funktionierender Geräte ist gering, denn sie sind zugänglich und können repariert bzw. ausgetauscht werden. Und man kann jederzeit auf die konventionelle Methode mit anschließender Laboranalytik zurückgreifen, Auch in puncto Labordatenverarbeitung sind in Barnwell umfangreiche Möglichkeiten vorhanden /10/.

Zum Thema "dynamische Materialbilanzierung" wird die Tokaimura-Anlage eine Pilotfunktion übernehmen. Dort sollen neue amerikanische Präzisionsinstrumente zur Inline-Bestimmung von U, Pu-Konzentrationen und -Isotopenzusammensetzungen eingesetzt werden, um zu prüfen, ob Modellvorstellungen und realistische Bedingungen in Einklang zu bringen sind /6/.

Unter dem Stichwort "Analytik in zukünftigen Anlagen" muß man zwischen den rein analytischen Problemen und den durch Sicherungsmaßnahmen auferlegten meßtechnischen Komplikationen unterscheiden.

Vordringliche analytische Aufgaben sind z.B. die Sofortkontrolle der Pu- und U-Wertigkeit in hochaktiven Prozeßlösungen und die kontinuierliche Messung von Spaltstoffverlusten in den Abfallströmen (HAW, CW), ferner die kontinuierliche Prüfung der Qualität des Extraktionsmittels. Aber auch die Methoden zur Fluß- und Volumenmessungen sind verbesserungsbedürftig.

Die aus neuen Sicherungskonzeptionen resultierenden analytischen Aufgaben möchte ich anhand von zwei Beispielen nur andeuten. Beim CIVEX-Prozeß /8/ - einer sogenannten proliferationsfesten WA-Konzeption - wird eine vollautomatisierte PUREX-Variante propagiert: Die in besonders kleinen Heißen Zellen installierte Anlage soll nach einem festgelegten Fließschema und ohne Eingriffsmöglichkeiten von außen funktionieren; ihre Steuerung soll nur aufgrund von Fluß-, Aktivitäts- und Leitfähigkeitsmessungen erfolgen, und die Zellen dürfen bestimmungsgemäß frühestens nach 10-jährigem Betrieb für Reparaturarbeiten und dergleichen geöffnet werden. Die Praktikabilität derartiger Vorstellungen ist - nicht nur aus analytischer Sicht - zweifelhaft.

Die in neuerer Zeit bekannt gewordenen amerikanischen Pläne zum Bau einer Demonstrationsanlage (HEF) für die WA verschiedener fortgeschrittener Kernbrennstoffe sehen eine Canyon-Bauweise mit fernbedient austauschbaren Komponenten vor /9/. Ein Novum ist, daß die Zellenwände aus Sicherheitsgründen ohne bzw. mit nur einem Minimum von Rohrleitungsdurchführungen ausgestattet werden sollen. Die Prozeßkontrolle muß sich demnach weitgehend auf fernbediente Inline-Instrumentierungen stützen. Dafür sind aber weder umfassende Erfahrungen vorhanden, noch gibt es für alle prozeßanalytischen Aufgaben entsprechend

leistungsfähige Inline-Instrumente. Es bedarf deshalb außergewöhnlicher Anstrengungen, dieses Konzept zum Erfolg zu führen.

Zusammenfassend läßt sich folgendes feststellen:

- Es gibt grundsätzlich Mittel und Wege zur Lösung der rein analytischen Aufgaben beim PUREX-Prozeß.
- Es gilt, den dafür erforderlichen Aufwand zu reduzieren und die Informationsqualität zu verbessern.
- Den analytischen Aufgaben überlagern sich administrative Forderungen, die weitere technische und meßtechnische Probleme zur Folge haben.
- Die Lösung aller dieser Aufgaben erfordert eine effektive Zusammenarbeit von Spezialisten verschiedener Fachrichtungen.

Literaturhinweise

- / 1/ F. Baumgärtner, D. Ertel; J. Radioanalyt.Chemie 58 (1980)11
- / 2/ R. Friehmelt, A. Jaeschke, K. Landmark;
KfK-Nachrichten 11 (1979), Heft 3
- / 3/ B.G. Brodda et al.; Jül-Conf-30 (1978) 141
- / 4/ W.S. Lyon (ed.); Proc. 21st Conf. on Analyt.Chemie in
Energy Technology, Gatlinburg/Tenn., Oct. 1977
- / 5/ E.A. Hakkila et al.; Proc. ANS Topical Meeting on
Analyt.Methods for Safeguarding and Accountability
Measurements of Special Nuclear Materials,
Williamsburg/Va. 1978
NBS Spec.Publ. 528 (1978) 208
- / 6/ R. Gunnink (ed.); UCRL - 52879 (1980)
- / 7/ E.H. Ottewitte; NBS Spec.Publ. 528 (1978) 170
- / 8/ P. Zühlke; KTG - Aktuelle Themen, KAT - 5 - 78
- / 9/ Workshop on Instrumentation and Analyses for a
Nuclear Fuel Reprocessing Hot Pilot Plant,
CONF - 8005121 (1980)
- /10/ J.P. Clark, G.A. Huff; NBS Spec.Publ. 528 (1978) 98

CONCENTRATION RANGES

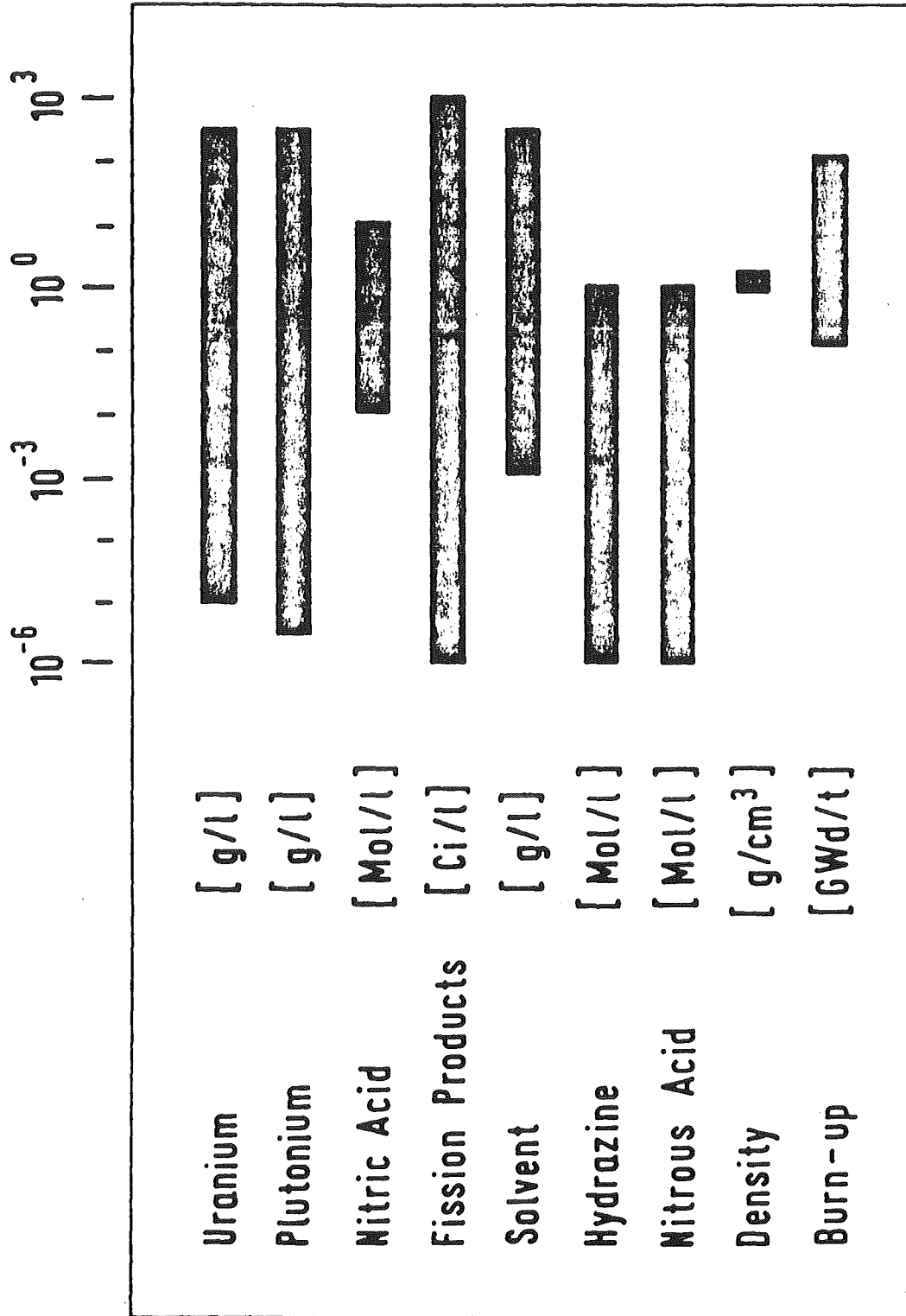
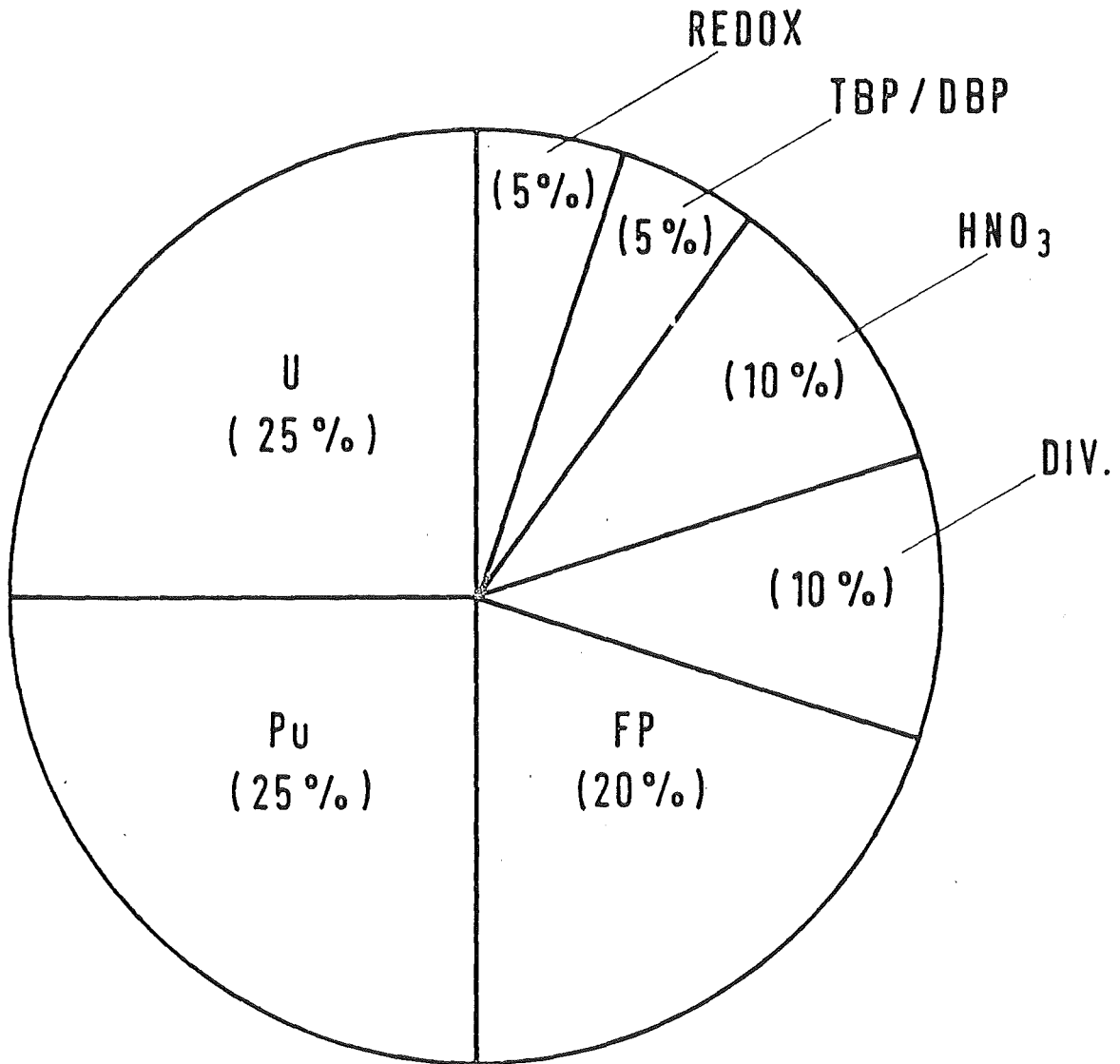


Fig. 1



MOST FREQUENT PROCESS ANALYSES

Fig. 2

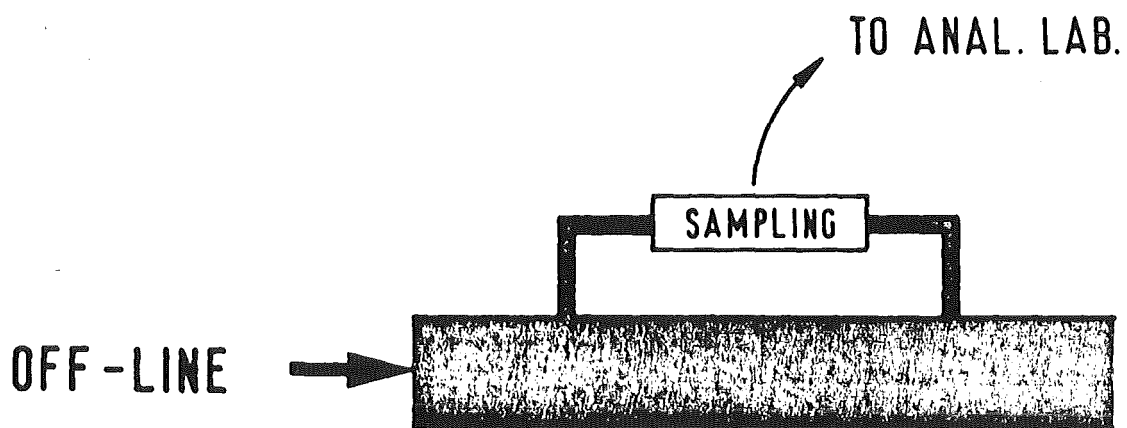
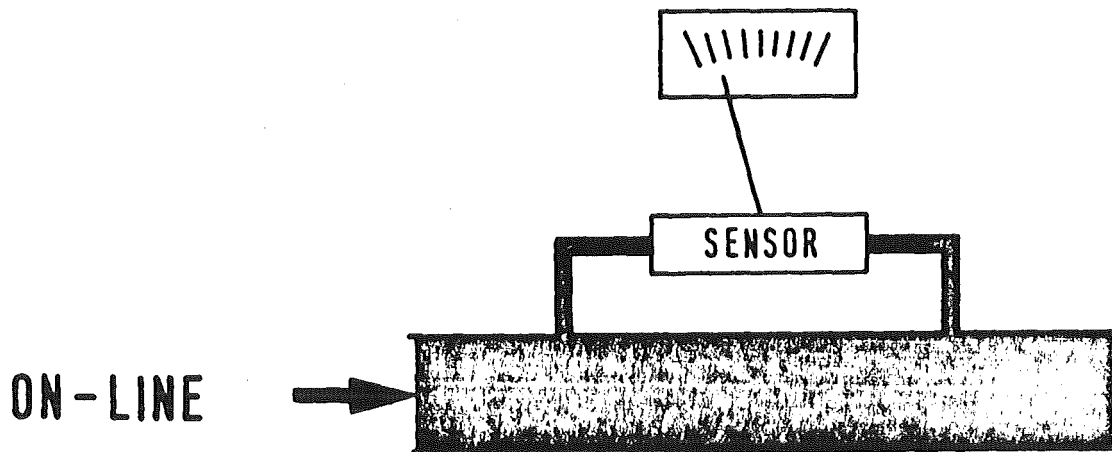
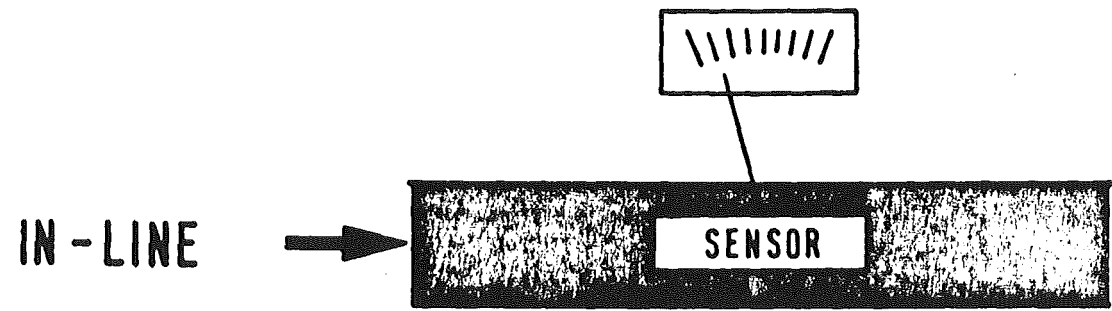
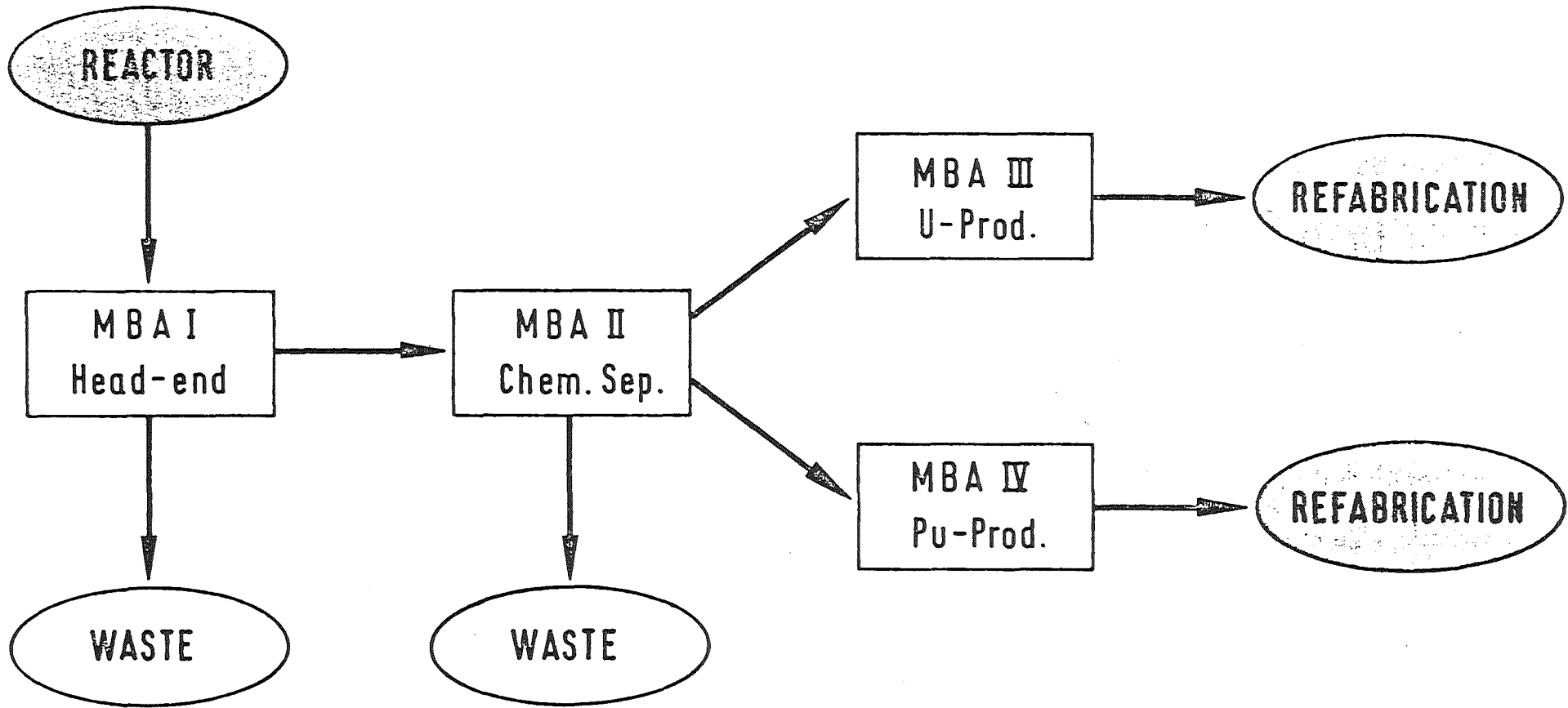


Fig.3: Different Modes of Process Analysis

MATERIAL BALANCE AREAS FOR PUREX PLANT



Bewertung und Vorstellung von Analyseverfahren für die Eingangsanalyse in der Wiederaufarbeitung

E. Mainka

Kernforschungszentrum Karlsruhe

Institut für Radiochemie

I. Einführung

Dem Kernbrennstoffgehalt im Auflöser- bzw. Bilanzierungstank in einer Wiederaufarbeitungsanlage kommt im Zusammenhang mit der Spaltstoffbilanzierung besondere Bedeutung zu. Es ist die erste Möglichkeit, nach dem Abbrand der Brennelemente im Reaktor den Spaltstoffgehalt des Materials destruktiv zu analysieren. Nach dem heutigen Stand der Technik basieren alle Bilanzierungen direkt oder indirekt auf Daten, die durch chemische Analysen erzeugt wurden.

II. Problemstellung

Bei den heute überwiegend eingesetzten Leichtwasserreaktoren mit einem Abbrand von $\sim 3\%$ ist an dieser Stelle mit einem Uran zu Plutoniumverhältnis von $\sim 100:1$ zu rechnen. Die β - γ -Aktivität eines solchen Materials liegt für 1 g Brennstoff nach ~ 2 jähriger Kühlzeit bei ~ 1 Ci Spaltprodukten. Diese Angaben bedeuten, daß Plutonium neben einem ~ 100 fachen Überschuß an Uran in hochaktiven Lösungen analysiert werden muß. Die sehr komplexe Plutonium-Chemie, Plutonium kann in einer Lösung in mehreren Wertigkeitsstufen nebeneinander vorliegen - muß außerdem in Rechnung gestellt werden.

Für die Urananalyse stehen, nicht zuletzt wegen des günstigeren Konzentrationsverhältnisses, mehrere Analysetechniken mit guter Genauigkeit zur Verfügung. Unter den gegebenen Bedingungen werden Anstrengungen unternommen, vor allem die Plutoniumanalyse weiterzuentwickeln.

Die bestmögliche Analyse ist gefragt.

Es wird auch daran gedacht, durch die Steigerung der Genauigkeit der Urananalyse, Verbesserungen in der Bilanzierung zu erzielen. Die Plutoniumkonzentration könnte dann eventuell aus U/Pu-Verhältnismessungen ermittelt werden, was leichter zu bewerkstelligen ist.

Im Zusammenhang mit Überwachungsmaßnahmen ist neben der geforderten Genauigkeit aber auch der Zeitfaktor - wann die Meßergebnisse zur Verfügung stehen - eine wichtige Größe. Hohe Genauigkeit und schnelle Verfügbarkeit sind für die Mehrzahl der Meßtechniken zwei gegenläufige Forderungen, die bei der Auswahl der Meßmethoden in Rechnung gestellt werden müssen.

Ein weiterer Bewertungspunkt ist die Verifizierbarkeit der Arbeitstechnik. Denn nur wenn einfach verifizierte werden kann, gestalten sich Kontrollmaßnahmen problemlos.

Auch die Kostenfrage darf bei einer Methodenbewertung nicht unberücksichtigt bleiben.

Die nachfolgenden Meßmethoden sind auf Grund der einzelnen Bewertungskriterien ausgewählt worden.

III. Analysenmethoden, die zur Spaltstoffbestimmung im Auflösertank eingesetzt werden können

- A. die massenspektroskopische Isotopenverdünnungsanalyse
- B. die Röntgenfluoreszenzspektroskopie
- C. die Isotopenkorrelationstechnik
- D. die Gammaabsorptiometrie
- E. die Redox-Titration
- F. die Emissionsspektroskopie nach Plasmaanregung
- G. die α -Spektroskopie
- H. die Laser-Raman-Spektroskopie

Im folgenden Abschnitt soll auf die angeführten Verfahren näher eingegangen werden:

A. Die Massenspektroskopische Isotopenverdünnungsanalyse /1-3/

1. Meßprinzip

Die Spaltstoffanalyse erfolgt durch die massenspektroskopische Isotopenverhältnisanalyse, nachdem die Probe mit einer definierten Menge eines Leit-isotops versetzt worden ist. Die Abtrennung der Spaltprodukte ist erforderlich. Es müssen gemessen werden:

- a) die Isotopenzusammensetzung bzw. die Isotopenverhältnisse in der Probe.
- b) die Isotopenzusammensetzung bzw. die Isotopenverhältnisse im Spike mit dem Leitisotop.
- c) das Verhältnis aus zugesetztem Leitisotop zu einem geeigneten Referenzisotop im Gemisch aus Probe und Spike. Die Isotopenverdünnungsanalyse wird heute bevorzugt an dieser Stelle eingesetzt.

Leistungsdaten:

Genauigkeit:	0.5 - 1.7 %
Schnelligkeit:	~1 Woche
Gerätekosten:	~800 TDM
Analysenkosten:	~1000 DM/Probe
Verifizierbarkeit:	aufwendiges Inspektionslabor notwendig

Mögliche Methodenverbesserungen:

Durch den Einsatz von fortgeschrittenen Spike-Techniken kann die Analysenzeit um ca. 40% verringert werden, was auch zur Kostenreduktion beitragen würde.

Z.B. Insitu-spike-technik mit U^{233} und Pu^{244} /4/ oder nach der Tripelspike-Technik /5/

B. Röntgenfluoreszenzspektroskopie /6-8/

Meßprinzip

Die Analyse beruht auf der Röntgenfluoreszenzstrahlenmessung von Spaltstoff-Linien der L-Röntgenserie. Die beste Auflösung wellenlängendispersiver Systeme liegt bei Röntgenenergien unter 20 KeV. Zur Steigerung der Meßgenauigkeit wird mit internem Standard gemessen.

Leistungsdaten:

Genauigkeit:	0.5 - 2 %
Schnelligkeit:	~10 min / Analyse
Gerätekosten:	300 TDM
Probenautomat:	1000 TDM
Analysenkosten:	20 DM / Probe
Verifizierbarkeit:	einfach - über Standardproben möglich

Das Verfahren ist im Labor mit realistischem Analysenmaterial erprobt

worden.

C. Isotopenkorrelationstechnik /9-14/

1. Meßprinzip

Unterschiedliche Meßtechniken je nach verwendeten Isotopen. (U-Pu-Messungen = Festkörpermassenspektroskopie; He 131/132 Massenspektroskopie für Gase; Cs 134/137 = γ -Spektrometrie, Cm = Neutronenkoinzidenzspektroskopie.

Außerdem müssen für die Berechnung die historischen Daten der Analysenprobe bekannt sein.

Leistungsdaten:

Meßgenauigkeit: ca. 1 %

Schnelligkeit: U, Pu und He 1 Woche
Cs und Cm kann am Ort gemessen werden ~ 30 min/Probe benötigt.

Gerätekosten: U, Pu- Messungen mit Festkörpermassenspektrometer ~ 800 TDM
He-Gasmassenspektrometer ~ 500 TDM
Cs - γ -Spektrometer ~ 100 TDM
Cm - Neutronenkoinzidenzmeßstand ~ 100 TDM

Analysenkosten: U, Pu ~ 1000 DM/Analyse
He-Isotope ~ 500 DM/Analyse
Cs und Cm ~ 50 DM/Analyse

Verifizierbarkeit: U, Pu und He aufwendig mit spez. Labor
Cs und Cm über Standardproben einfach

D. Die Gammaabsorptiometrie /15-19/

Meßprinzip

Die Analyse beruht auf einer Differenzmessung der Photonentransmission direkt unterhalb und oberhalb der L bzw. K-Röntgenabsorptionskante der Analyselemente.

Leistungsdaten:

Meßgenauigkeit: 0.2 - 0.3 %
Schnelligkeit: 15-30 min/Analyse
Gerätekosten: 250 TDM
Analysekosten: ~ 50 DM/Probe
Verifizierbarkeit: einfach über Standardproben

Bemerkung: Die direkte Pu-Bestimmung ist wegen der geringen Konzentration in Feedlösungen von LWR-Brennstoff nicht möglich.

E. Redox-Titration /20-23/

Meßprinzip

Prinzipiell kann Uran nach Abtrennen der Spaltprodukte mit Hilfe einer Redox-Titration; wie z.B. Reduktion mit Fe II in H_3PO_4 und Oxidation mit $K_2Cr_2O_7$, bestimmt werden.

Leistungsdaten: speziell an Feedlösungen liegen z.Zt. keine Erfahrungen vor, in Produktlösungen wird die Methode eingesetzt.

Genauigkeit: <0.5 %
Schnelligkeit: Schätzwert 2 Std.
Gerätekosten: 30 TDM
Analysekosten: ~ 250 DM/Analyse
Verifizierbarkeit: Inspektionslabor notwendig

Bemerkung: wie bei der Gammaabsorptiometrie ist auch eine direkte Pu-Redox-Titration wegen der niedrigen Konzentration nicht sehr genau durchführbar. Die Pu-Analyse sollte über eine U/Pu-Verhältnismessung durchgeführt werden.

F. Die Emissionsspektroskopie nach Plasmaanregung /24-25)

Meßprinzip:

Die Brennstofflösung wird mit Hilfe eines Trägergases in ein Argonplasma eingebracht. Die Spaltstoffe werden so zur Emission angeregt. Der Nachweis erfolgt über ausgewählte empfindliche Spektrallinien. Die Analysetechnik ist gegen Störungen von Begleitelementen weitgehend unempfindlich.

Leistungsdaten: z.Zt. liegen noch keine praktischen Erfahrungen an Feedlösungen vor.
Auf Grund simulierter Uran-Analysen erscheint folgendes Entwicklungspotential möglich:

Meßgenauigkeit: $\sim 1 \%$
Schnelligkeit: $\sim 15 \text{ min/Probe}$
Gerätekosten: 200 TDM
Analysekosten: $\sim 25 \text{ DM/Probe}$
Verifizierbarkeit: einfach über Eichstandard möglich

G. Die α -Spektroskopie /26/

Meßprinzip:

Die α -Spektroskopie des Plutoniums erfolgt nach Abtrennen des Plutoniums sowohl von den Spaltprodukten als auch vom Uran. Um gute Ergebnisse zu erzielen, ist eine sorgfältige Präparateherstellung notwendig.

Leistungsdaten:

Meßgenauigkeit: $\sim 2-3 \%$
Schnelligkeit: $\sim 4 \text{ Std.}$
Gerätekosten: $\sim 100 \text{ TDM}$
Analysekosten: 100 DM/Analyse
Verifizierbarkeit: relativ aufwendig, da ein Labor notwendig und die Technik arbeitsintensiv ist.

H. Die Laser-Raman-Spektroskopie /27/

Meßprinzip:

Die Nitratkomplexe von Uran und Plutonium haben starke Absorptionsbanden im sichtbaren Bereich des Spektrums. Durch die Strahlung eines Lasers können in diesen Molekülen Schwingungen hervorgerufen werden, die ein für das jeweilige Molekül charakteristisches Ramanspektrum ergeben.

Leistungsdaten: z.Zt. liegen keine praktischen Erfahrungen vor
Meßgenauigkeit: nach /27/ 5-20 %
Schnelligkeit: ---
Gerätekosten: ~ 200 TDM.
Analysenkosten: ---
Verifizierbarkeit: ---

Bemerkung: In /27/ wird vorgeschlagen, diese Arbeitstechnik als In-line Monitor im Eingangstank zu benutzen.

IV. Diskussion der Ergebnisse

Der Entwicklungsstand der angeführten Meßtechniken ist, wie aus der Tabelle 1 hervorgeht, sehr unterschiedlich. Z. Zt. ist z.B. von der Internationalen Atomenergie-Behörde nur die Isotopenverdünnungsanalyse akzeptiert.

Die Komplexität dieser Methode und auch die relativ späte Verfügbarkeit der Meßwerte lassen es notwendig erscheinen, an alternativen Analysentechniken weiterzuarbeiten.

Die Röntgenfluoreszenzspektroskopie und auch die Isotopenkorrelationstechnik sind in Interlaboratoriumtests mit realem Analysenmaterial schon erprobt worden. Optimierungsmöglichkeiten sollen in weiteren Tests ermittelt werden.

Urananalysen mit realistischen Eingangstankproben sind auch mit der Gammaabsorptiometrie durchgeführt worden. In einem weiteren Experiment ist geplant, die Urananalysen dieser Arbeitstechnik mit U/Pu-Verhältnismessungen zu kombinieren, um das Entwicklungspotential des Verfahrens voll auszutesten.

Redox-Titrationen von Uran und auch die Emissionsspektroskopie nach Plasmaanregung sind bisher nun an simuliertem Material geprüft worden. Hier sind jetzt zunächst Experimente an realistischen Proben geplant.

Die α -Spektroskopie gehört zu den Techniken, die bereits erprobt sind. Hier ist es die relativ große Fehlerbreite und die Komplexität des Verfahrens, die

der Akzeptanz dieser Technik z.Zt. noch entgegensteht.

Die Daten für die Laser-Raman-Spektroskopie sind aus der Literatur entnommen. Eine On-line Technik wäre sicher an dieser Stelle zu begrüßen.

Die Tabelle zeigt außerdem, daß jedes Verfahren Stärken und Schwächen hat, es ist von daher sicher sinnvoll, an der Optimierung der einzelnen Arbeitstechniken weiterzuarbeiten.

Abschließend soll darauf hingewiesen werden, daß zur Bilanzierung neben der Konzentrationsbestimmung auch noch eine Mengenbestimmung notwendig ist. Z.Zt. laufen Interlaboratoriumstests mit deren Hilfe verschiedene Verfahren getestet werden sollen. Darüber soll zu gegebener Zeit berichtet werden.

Tabelle 1 faßt die angeführten Leistungsdaten zusammen:

Meßverfahren	Genauigkeit	Schnelligkeit	voraussichtl. (DM) Analysekosten	Verifizierbarkeit	Entwicklungsstand	Bemerkungen
A. Isotopenverdünnungsanalyse	0.5-1.7 %	~1 Woche	1000	aufwendig	Methode wird z.Zt. eingesetzt	----
B. Röntgenfluoreszenzanalyse	0.5-2 %	10 min	20	einfach	Laborerprobt	----
C. Isotopenkorrelation	~ 1-3 %	U, Pu, He-1 Woche ---- Cs, Cm - 30 min	U, Pu 1000 He 500 Cs, Cm 50	aufwendig aufwendig einfach	Methode ist erprobt Laborerprobt Laborerprobt	----
D. Gammaabsorptiometrie	0.2-0.3 %	15 - 30 min	50	einfach	Laborerprobt	nur U-Analyse möglich
E. Redox-Titration	0.2-0.5 %	2 Std.	250	aufwendig	noch nicht erprobt aber hohes Entwicklungspotential	nur U-Analyse möglich
F. Emissionsspek. mit Plasmaanrg.	~ 1 %	15 min	25	einfach	nur mit simuliertem Material erprobt	
G. α -Spektrometrie	2-3 %	4 Std.	100	rel. aufw.	Methode ist erprobt	nur Pu-Analyse möglich
H. Laserspektroskopie	5-20 %	---	---	---	Daten einer Literaturstudie entnommen	als on-line Methode möglich

Literatur

1. Webster et.al.: Anal. Chim. Acta 24 371 (1961)
2. Bokelund: ETR-217 (1967)
3. ASTM E 266
4. W. Beyrich und. E. Drosselmayer: KfK 1905/1 und 1905/2
5. W. Lyck, M. Gallet, F. Peetermans, Rl Damen, E. Bouwmeester, P. De Bièvre und U. van Andenvove, CBNM/MS/76/79
6. Ertel: KfK 77, KfK 1121,
7. V. Baeckamann: IAEA STI/Pub/337 (1972) 33
8. R. Kramer und W. Beyrich ed.: KfK 1100 Chapt. 7
9. L. Koch, The Isotope Correlation Experiment, 2nd Annual Symp. on Safeguards and Nuclear Material Management, Edinburgh, Scotland, March 1980, p. 392.
10. H.J. Arenz, G. Hough and L. Koch, Experience for Safeguards Gained in the Isotope Correlation Experiment, 2nd Annual Symp. on Safeguards and Nuclear Material Management, Edinburgh, Scotland, March 1980, p.339
11. S.M. Schoof and W.L. Zijp, How good are Isotope Correlations Compared to Conventional Statistical Techniques, 2nd Annual Symp. on Safeguards and Nuclear Material Management, Edinburgh, Scotland, March 1980, p. 342
12. D.E. Christensen, R.A. Schneider and K.B. Stewart, Summary of Experience with the Use of Isotopic Correlation Safeguards Techniques, BNWL-SA-4274 (March 20, 1972) presented at the IAEA Working Group Meeting on the Use of Isotopic Composition Data in Safeguards, Vienna, Austria, April 10-14, 1972
13. French Contribution to the Research Coordination Meeting on Application of Isotopic Correlation Techniques to International Safeguards, IAEA, Vienna 12-14 Nov. 1979
14. C. Beets, Editor "Contributions to the Joint Safeguards Experiment Mol IV at the Eurochemic Reprocessing Plant Mol-Belgium", BLG. 486
15. H. Eberle, P. Matussek, I. Michel-Piper, H. Ottmar, Proceedings of the 2nd ESARDA Symp. on Safeguards and Nuclear Material Management, Edinburgh, Scotland, March 26-28, 1980, Report ESARDA 11 (1980) edited by Joint Research Centre, Ispra, Italy.
16. H. Eberle, P. Matussek, H. Ottmar, I. Michel-Piper, M.R. Iyer, P.P. Chakraborty, Nuclear Safeguards Technology, 1978, Vol. II, International Atomic Energy Agency, Vienna, 1979, 27-50
17. W.M.J. Veigele, Atomic Data Tables 5 (1973) 51-111.

18. T.R. Canada, R.C. Bearse, J. Tape, Report, LA-6675-PR (1977) 22-24
19. H. Eberle, P. Matussek, I. Michel-Piper, H. Ottmar, Proceedings of the 3rd Annual Symp. on Safeguards and Nuclear Material Management, Karlsruhe, 6-8 Mai 1981
20. W. Davis and W. Gray: Talanta 11 1203 (1964)
21. A.R. Eberle, M.W. Lerner, C.G. Goldbeck and C.J. rodten NBL 252 (1970)
22. Lindner und A.V. Baeckmann: KfK 701 (1967)
23. J. Slanina, F. Bakker, A.J.P. Groen and W.A. Lingerak: Z. Anal. Chem. 289 102 (1978)
24. W. Coerdts, S. Flach, W. König, E. Mainka, K. Matern, J. Neuber und H.G. Müller: EUR - 6629 EN 89 (1979)
25. M. Edelson un V.A. Fassel: ESARDA 13 97 (1981)
26. R. Berg: EUR 6629 EN 119 (1979)
27. J.P. Hohimer: SAND 78-1522

Brennelement-Monitor - Ein Gerät zur Kritikalitätskontrolle des Auflösers einer Wiederaufarbeitungsanlage

W. Eyrich, G. Schulze, H. Würz, KfK

H.J. Becker, WAK

Einleitung

Ausgangspunkt der Arbeiten ist die bisherige Auslegungspraxis für die Kritikalitätssicherheit eines Auflösers einer Wiederaufarbeitungsanlage. Man geht von frischem Brennstoff aus und legt zudem noch eine hohe Anfangsanreicherung zu Grunde. In einer Wiederaufarbeitungsanlage wird normalerweise aber abgebrannter Brennstoff aufgearbeitet.

Fortschreitender Abbrand im LWR - Brennstoff führt zu einer Reduktion des Spaltstoffgehalts und zu einem Aufbau von Spaltprodukten. Beides bewirkt eine Reduktion der Kritikalität des abgebrannten Brennstoffs relativ zum frischen Brennstoff. Dies ist in Abb.1 dargestellt. Die Kritikalitätsabnahme beträgt ca. 1% pro 1 GWd/tU Abbranderhöhung. Für das Kritikalitätskonzept einer Wiederaufarbeitungsanlage hat das folgende Konsequenzen

- es kann ein größerer Auflöserkorb verwendet werden und/oder
- der Zusatz von Neutronengiften zum Lösungsmittel kann entfallen.

Für die Gewährleistung der Kritikalitätssicherheit im fortschrittlichen Konzept gibt es 2 unabhängige Maßnahmen:

- a) Lebenslaufkarte des Brennelements: enthält die Betreiberangaben
BE-Nummer, BE Abbrand, Anfangsanreicherung
- b) Bestimmung der Kritikalität der dem Brennelement zugeordneten Auflösercharge bei optimaler Moderation. Diese wird dem BE-Monitor über eine zerstörungsfreie Messung am Brennelement vor der Zerlegung bestimmt.

Damit wird die Meßapparatur Bestandteil des Kritikalitätskonzepts. Die Kritikalitätsbestimmung muß ohne jegliche Kenntnis der BE-Daten

Bestrahlungsgeschichte, Anfangsanreicherung, Abbrand, Kühlzeit und Art des Brennstoffs (Uran-,MOX-BE) erfolgen. Für diese Nachweise wurde ein umfangreiches Meßprogramm an abgebrannten LWR-Brennelementen durchgeführt.

Im Verlauf der Methodenerprobung an abgebrannten Brennelementen wurde demonstriert, daß der BE-Monitor auch zur Bestimmung von Anfangsanreicherung und Abbrand zumindest von DWR-Uran Brennelementen verwendet werden kann /1-3/.

Prinzip der Meßmethode

Der BEM basiert auf einer aktiven und passiven Neutronenmessung am Brennelement. Das Brennelement wird unter Wasser zwischen eine bewegliche Cf-252 Neutronenquelle und Neutronendetektoren gebracht. Gemessen wird ohne und mit Neutronenquelle (passiv/aktiv). Da im Wasser gemessen wird, werden thermische Neutronen registriert. Abb.2 zeigt das Prinzip, der Meßmethode. Bei der aktiven Messung stellen die durch induzierte Spaltungen im BE erzeugten thermischen Spaltneutronen die eigentliche Meßinformation dar. Zur Detektorzählrate tragen neben diesem Anteil ZR_{ind} die direkt durch das BE hindurchgetretenen Quellneutronen ZR_{dir} und die vom abgebrannten Brennstoff emittierten Neutronen ZR_{ne} bei. Die Gesamtzählrate der thermischen Neutronen ist gegeben durch:

$$ZR_{tot} = ZR_{ind} + ZR_{dir} + ZR_{ne}$$

Die Zählrate ZR_{ne} der passiven Messung ist durch die Neutronenemission des abgebrannten Brennstoffs gegeben. Die Neutronenemission wird durch Spontanspaltungen und durch (α, n) Prozesse in den geradzahligen Pu-isotopen und im Cm 244 erzeugt.

Eine Kombination beider Messungen ermöglicht die Bestimmung der Intensitätserhöhung am Detektorort durch induzierte Spaltung. Diese thermische Neutronenflußmultiplikation M_{th} ist gegeben gemäß;

$$M_{th} = \frac{ZR_{tot} - ZR_{ne}}{ZR_{dir}} = 1 + \frac{ZR_{ind}}{ZR_{dir}} = f(k_{\infty}^{max})$$

M_{th} ist eine Funktion der zu bestimmenden Größe k_{∞}^{max} der Auflösercharge.

Aus ZR_{ne} wird die totale Neutronenemission ne_{tot} des abgebrannten Brennstoffs bestimmt, gemäß:

$$ne_{tot} = A ZR_{ne} = f(AB, AA, M_{ne})$$

$$M_{ne} = f(M_{th})$$

Die Kalibrierkonstante A ist gegeben durch die Detektorempfindlichkeit und die Brennelement-Daten Brennstoffdichte, Moderatorvolumenverhältnis und BE Schlüsselweite.

Die Neutronenemission ne_{tot} ist eine Funktion des Abbrands AB und der Anfangsanreicherung AA. Die vom Brennstoff emittierten Neutronen können ebenso wie die Quellneutronen der externen Quelle Spaltungen induzieren. Diese Multiplikation M_{ne} ist eine Funktion von M_{th} und ist damit bekannt. Die wahre Neutronenemission des abgebrannten Brennstoffs ne_w erhält man dann gemäß:

$$ne_w = \frac{ne_{tot}}{M_{ne}}$$

Versuchsgerät

Mechanischer Aufbau des Versuchsgeräts und Prinzip des Monitoreinsatzes sind in Abb.3 dargestellt. Ein Metallrahmen trägt die schwenkbare Quellplatte und 3 gekapselte Neutronendetektoren. Das Brennelement hängt während der Messung am Beckenkran und wird bei arretierter Platte zwischen der Quelle und dem gegenüberliegenden Detektor (Det 3) fixiert. Änderungen im Abstand Quelle-Det 3 wurden konstruktiv durch Arretierung der Quellträgerplatte in einer reproduzier-

baren Position eliminiert. Die Schlüsselweiten der auszumessenden Brennelemente wurden durch Änderung der Position der Detektorkapsel 3 eingestellt. Die Zählrohrkapseln mit den Detektoren 1 und 2 sind fest mit dem Grundrahmen verschraubt. Das BE wird in seitlicher Richtung durch Leitbleche zentriert. Für die aktive Messung wird Det.3 verwendet. Alle 3 Detektoren werden für die passive Messung verwendet.

Die Anordnung wurde bisher in Brennelement-Entlade- bzw. Lagerbecken von 2 Wiederaufarbeitungsanlagen und 2 Kernkraftwerken installiert.

Jedes Zählrohr ist über ein mehrfach abgeschirmtes Koaxialkabel mit den am Beckenrand befindlichen Vorverstärkern und der nachfolgenden Pulshöhenelektronik verbunden.

Erprobungsprogramm

Ein umfangreiches experimentelles Erprobungsprogramm wurde durchgeführt. Abgebrannte Uran Brennelemente der Reaktoren Obrigheim, Stade, Neckarwestheim, Biblis, Kahl und Würgassen wurden bisher ausgemessen. Außerdem wurde an einem KWO-MOX-Brennelement gemessen.

In Tabelle 1 sind BE-Daten zusammengestellt. Bei jedem Brennelement wurde an verschiedenen axialen Positionen entlang der BE-Achse gemessen.

Ziele des Erprobungsprogramms sind 1) die Demonstration der Anwendbarkeit der Methode zur Bestimmung der Auflöserkritikalität und des Abbrands ohne Kenntnis der BE-Daten, 2) die Bestimmung der Genauigkeit der Methode und 3) die Sammlung von Erfahrungen für die Auslegung eines Prototypgeräts.

Im einzelnen wurden bestimmt:

- Eichkurven $M_{th} = f(k_{\infty}^{max})$ für die Bestimmung des Auflöserkritikalitätswerts k_{∞}^{max}
- die abbrandabhängige totale und wahre Neutronenemission $n_e = f(AB)$ von abgebranntem LWR-Brennstoff
- der Einfluß der Bestrahlungsgeschichte auf die Bestimmung der Größen Kritikalität, Abbrand und Anfangsanreicherung

Resultate und Diskussion

In den Abb.4 und 5 sind Meßresultate für DWR-BE dargestellt. Die axialen Abhängigkeiten von M_{th} und ne_{tot} sind gegenläufig. M_{th} nimmt zum BE-Rand hin zu, ne_{tot} dagegen ab. Der Abbrand nimmt zum BE-Rand hin ab, damit steigt die Spaltstoffmenge im Brennstoff und folglich wächst M_{th} an, während die Neutronenemission mit abnehmendem Abbrand abnimmt. Für DWR-BE gibt es einen Bereich mit konstanter Multiplikation und Neutronenemission. Dieser Bereich erstreckt sich über mindestens 50 % der aktiven Länge der Brennelemente.

Bis zu Abbrandwerten von ca. 25 Gwd/tU ist bei den aktiven Messungen der Einfluß der Abstandshalter zu erkennen. Diese wirken als Senken für den induzierenden Neutronenfluß.

Die Fehlerbreiten der passiven Messung ergeben sich aus den unterschiedlichen Zählraten der 3 Detektoren als Folge von radialen Abbrandgradienten. Die Abweichungen vom Mittelwert liegen gewöhnlich unter $\pm 10\%$, für drei Stade BE wurden dagegen Abweichungen bis zu $\pm 30\%$ festgestellt. Dies entspricht einem Abbrandunterschied der beiden BE-Hälften von bis zu 4,7 Gwd/tU. Die Änderung in M_{th} bei Drehung des BE um 90° betrug trotzdem nur 1%.

Für SWR-BE bewirkt der mit der Kernhöhe ansteigende Dampfblasengehalt im Kühlmittel einen verstärkten Plutoniumaufbau. Entsprechend wächst M_{th} mit der axialen Position an siehe Abb.6. In Tabelle 2 sind für einige der vermessenen LWR-BE M_{th}^M -Werte aus dem BE Mittenbereich und BE gemittelte Werte \bar{M}_{th} angegeben. Der Umrechnungsfaktor $D = \bar{M}_{th}/M_{th}^M$ ergibt sich für DWR-Uran-BE zu $D = 1,052 \pm 0,01$. Für SWR-BE ist D eine Funktion der axialen Position. Auf halber Höhe z_0 der aktiven BE-Länge ergibt sich für KWW-BE:
 $D(z_0) = 1,016 \pm 0,01$.

Abbrand und Anfangsanreicherung

Aus der Neutronenemission des abgebrannten Brennstoffs, kann bei bekannter Anfangsanreicherung der Abbrand bestimmt werden. Abb.7 zeigt die gemessene BE-gemittelte wahre Neutronenemission ne_w von DWR-BE über dem Betreiberabbrand und zum Vergleich aus Aktinidenanalysenwerten für KWO Brennstoff berechnete ne_w -Werte. Im Rahmen der Meßgenauigkeit stimmen beide überein. Die Neutronenemission ist prop. zu (Abbrand)^{4.27}. Sie ist außerdem von der Anfangsanreicherung abhängig.

Eine Möglichkeit zur Bestimmung der Anfangsanreicherung von DWR-Uran-Brennelementen ergibt sich aus der Kombination der aktiven und passiven Messung. In Abb.8 sind Meßwerte für Stade und Neckarwestheim Brennelemente aus dem BE-Mittelnbereich und BE-Mittelwerte für 2 verschiedene Anfangsanreicherungen dargestellt. Die Anfangsanreicherung kann mit einer Genauigkeit besser $\pm 5\%$ bestimmt werden, z.B. sind die Anreicherungen 2,16% und 2,388% U-235 gut unterscheidbar wie an Biblis BE verifiziert wurde. Abb.9 zeigt Meßwerte für KWO-Brennelemente.

Aus den Abb.8 und 9 wird außerdem ersichtlich, daß die Meßgrößen ne_{tot} und M_{th} von der Bestrahlungsgeschichte beeinflußt werden. Aus der Schwankungsbreite ergibt sich eine erreichbare Genauigkeit in ne_{tot} von besser $\pm 20\%$, dies entspricht einem Fehler im Abbrand von maximal 1 GWd/tU. Bei unbekanntem BE-Daten ist eine Abbrandbestimmung mit einer Genauigkeit besser $\pm 1,2$ GWd/tU möglich. Wenn Abbrand und Anfangsanreicherung bekannt sind, kann über Isotopenkorrelationen der Plutoniumgehalt und der Restbrennstoff des Brennelements bestimmt werden.

Kritikalitätsbestimmung

Der Kritikalitätswert k_{∞}^{max} der Auflösercharge wird mittels Eichkurve aus dem gemessenen Multiplikationswert M_{th} bestimmt. Die Erstellung der Eichkurve erfordert eine Kenntnis der Aktinidenanalysenwerte der ausgemessenen Brennelemente. Bisher wurden nur ausgemessene VAK-Brennelemente aufgearbeitet. Zur Berechnung der Kritikalitätswerte k_{∞}^{max} für DWR-Brennstoff wurden deshalb bekannte abbrandabhängige Aktinidendaten für KWO Brennstoff verwendet /4/. Abbrandabhängige Spaltproduktkonzentrationswerte wurden mit dem Programm KORIGEN /5/ berechnet. Die Kritikalitätswerte wurden mit dem Programm

WIMS /6/ berechnet. Der Abbrand wurde aus der passiven Neutronenmessung bestimmt, die Genauigkeit ist $\pm 1,0$ GWd/tU. Dies bewirkt eine Unsicherheit im k_{∞}^{\max} von $\pm 1,0\%$. Die Eichkurve für KWO-BE ist in Abb.10 dargestellt. M_{th} kann bei reproduzierbarer BE-Positionierung mit einer Genauigkeit besser $\pm 1\%$ bestimmt werden. Damit ergibt sich gegenwärtig eine maximale Unsicherheit im k_{∞}^{\max} der Eichkurve von ca. 1,5%. Wenn Aktinidenanalysenresultate verfügbar sind, wird diese Unsicherheit auf Werte kleiner 1% reduziert. Die in Abb.10 angegebene Kennzeichnung bedeutet: 1. Ziffer Anfangsanreicherung 2. Ziffer Abbrand in GWd/tU.

Die Eichkurve enthält auch die Resultate für ein Pu-rezyklier-Be, sowie berechnete Werte für Brennelemente mit anderer Anfangsanreicherung. Der abbrandabhängige Aktiniden- und Spaltproduktaufbau wurde hierfür mit KORIGEN berechnet. Es gilt stets dieselbe Eichkurve. Damit ist demonstriert, daß zur Bestimmung der Kritikalität k_{∞}^{\max} außer der BE-Schlüsselweite keine weiteren BE-Daten erforderlich sind.

Fehlerquellen

Die verschiedenen Fehlerquellen für die Kritikalitätsbestimmung sind in Tabelle 3 angegeben. Es wird angenommen, daß die Eichkurven unter Verwendung von Aktinidenanalysenwerten der ausgemessenen und aufgearbeiteten Brennelemente erstellt sind. Die Bestrahlungsgeschichte bewirkt hauptsächlich über radiale Abbrandgradienten und über spektrale Effekte durch unbekannte Steuerabstellungen und mögliche Moderator temperaturänderungen eine max. Unsicherheit im M_{th} von 2 % und entsprechend 1,0 bzw. 1,5 % im $\Delta k/k$ für DWR bzw. SWR-Brennelemente. Die anderen Fehler sind durch die Messung, durch die Auslegung des Gerätes und durch unbekannte Brennelementdaten verursacht. Die BE Positionierung zwischen Quelle und Detektor 3 und der Abstand Quelle - Detektor 3 sind innerhalb ± 1 mm reproduzierbar angenommen. Dies kann konstruktiv gewährleistet werden.

Prototypgerät

Für den Routineeinsatz im Entladebecken der Wiederaufarbeitungsanlage Karlsruhe wird ein Prototypgerät entwickelt. Spezifikationen für dieses Prototypgerät sind erarbeitet. Das Brennelement wird während der Messung nicht bewegt. Es wird gleichzeitig aktiv an einer festen Position und passiv mit 4 Detektoren an einer Position ca. 60 cm unterhalb der aktiven gemessen. Die Quelle und der gegenüberliegende Detektor sind beweglich und können auf die Schlüsselweiten der Brennelemente eingestellt werden.

Die aktive Meßposition wird in Höhe der halben aktiven Länge z_0 der SWR-BE gewählt. Für alle DWR-BE liegt man damit im Bereich $M_{th}(z)=const.$ und $n_{tot}(z)=const.$ Der Meßwert $M_{th}(z_0)$ wird über einen vom Typ DWR bzw. SWR abhängigen Umrechnungsfaktor in den BE Mittelwert \bar{M}_{th} umgerechnet. Meßzeiten von 10 Min pro BE sind ausreichend.

Mit dem Prototypgerät ist unter anderem zu demonstrieren, daß die in Tabelle 3 angegebenen Positionierungsgenauigkeiten konstruktiv realisiert und die Reproduzierbarkeit der Meßresultate im Dauerbetrieb gewährleistet werden kann.

Schlußfolgerungen

Ein umfangreiches Erprobungsprogramm hat die Anwendbarkeit der Methode zur Bestimmung der Kritikalität k_{∞}^{max} von LWR Stabschüttungen im Auflöser demonstriert. Die erreichbare Genauigkeit beträgt 5% in $\Delta k/k$ für DWR und 6% für SWR-Brennelemente bei unbekanntem BE-Daten. Es wurde außerdem demonstriert, daß Abbrand und Anfangsanreicherung von DWR Uranbrennstoff bestimmt und Uran- und MOX-BE unterschieden werden können. Bezüglich der Bestimmung von Abbrand und Anfangsanreicherung von SWR Uran und LWR Pu-rezyklierbrennstoff sind noch ergänzende Untersuchungen notwendig. Meßkampagnen an Rezyklierbrennstoff der Reaktoren Obrigheim und Gundremmingen sind bzw. werden durchgeführt.

Literatur

- /1/ G. Schulze, H. Würz
Nondestructive assay of spent fuel elements
Proc. International meeting on monitoring Pu contaminated
Waste, 25-28 Sept. 1979, Ispra
- /2/ G. Schulze, H. Würz, L. Koch, R. Wellum
Neutron assay plus isotopic correlations a method for deter-
mining Pu and burnup in spent LWR fuel assemblies
2. ESARDA Symp. 26-28. März 1980 Edinburgh
- /3/ G. Schulze, H. Würz
Zerstörungsfreie Neutronenmessung am bestrahlten LWR-Brenn-
element zur Bestimmung der Kritikalität des Auflösers, Jahres-
tagung Kerntechnik 25-27. März 1980, Berlin
- /4/ L. Koch
Private Mitteilung
- /5/ H.W. Wiese
Einfluß methodischer Verbesserungen im Abbrand- und Zerfalls-
programm KORIGEN auf charakteristische LWR Brennstoffeigenschaf-
ten. Jahrestagung Kerntechnik 80, Berlin 25-27. März 1980
- /6/ J.R. Askew et al.
A general description of the lattice code WIMS
J. British Nuclear Energy Soc. Vol.5 p.564 (1964)

Tabelle 1: Daten der vermessenen LWR-Uran-Brennelemente

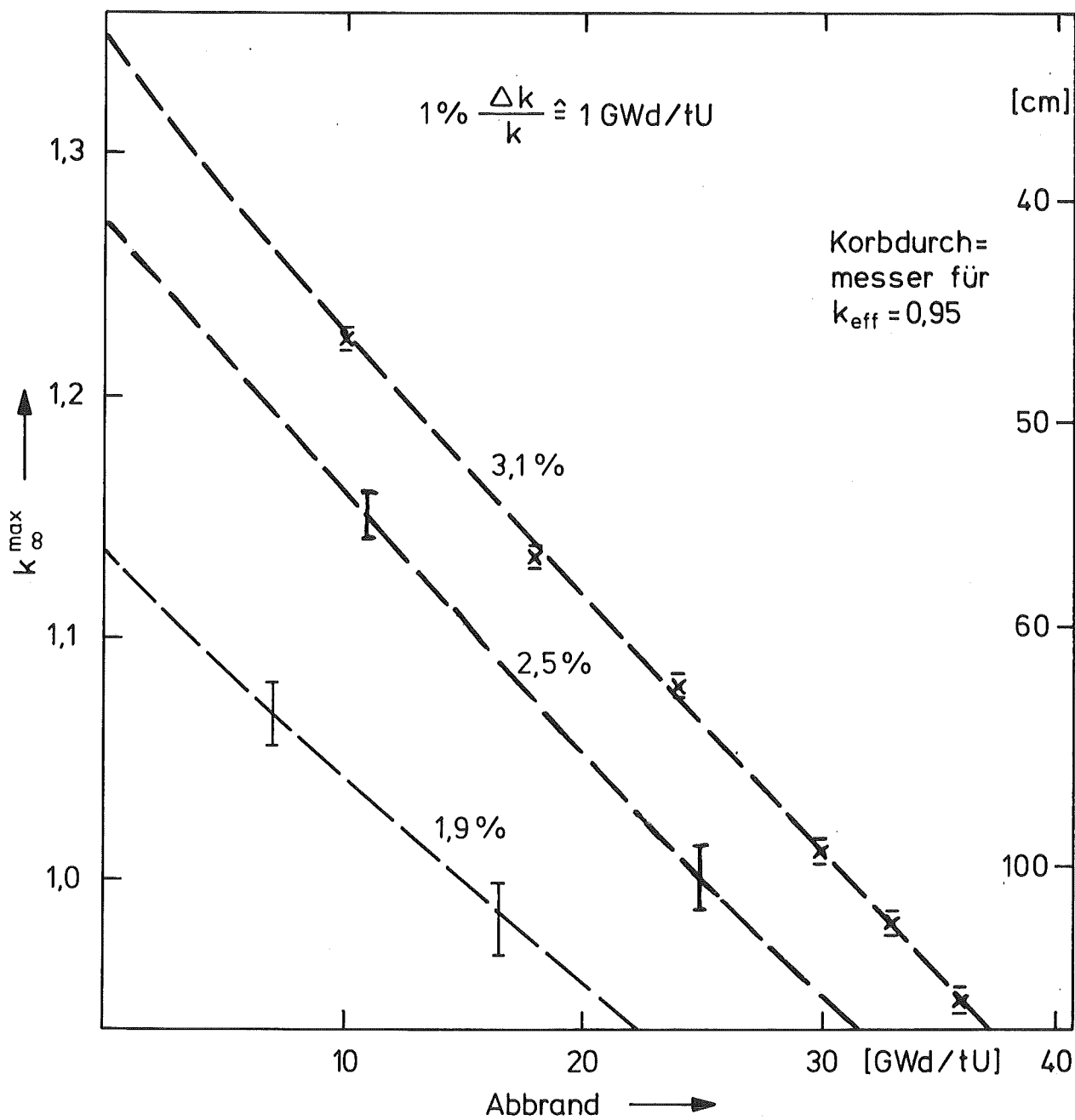
Reaktor	Ausgemessene BE	Abbrand- bereich (Gwd/tU)	Anfangs- anreicherung (%U-235)
KWO	20	21,9-31,3	3,1
Biblis	3	13-17	2,16
	2	18	2,388
Stade	5	30,4-36,3	3,18
	3	33,1-36,2	3,29
Neckarwest- heim	3	21,9	1,9
	5	33,3-34,3	3,2
Würgassen	6	frisch-23,4	2,2
Kahl	5	16,1-18,6	2,7

Tabelle 2 Brennelementmittenwerte M_{th}^M und BE Mittelwerte \bar{M}_{th} für LWR-BE

Reaktor	AB (GWd/tU)	M_{th}^M	\bar{M}_{th}	$D = \bar{M}_{th} / M_{th}^M$
KWO	30,6	4,08	4,33	1,06
	27,4	4,44	4,69	1,056
	29,6	4,34	4,57	1,053
	21,9	5,03	5,23	1,04
Stade	30,4	4,58	4,84	1,056
	33,3	4,64	4,90	1,056
	36,7	4,33	4,56	1,053
Neckarwestheim	21,9	4,16	4,33	1,041
	33,3	4,62	4,88	1,057
Biblis	13,26	6,1	6,38	1,045
	18,0	5,84	6,14	1,051
Würgassen halbe aktive Höhe z_0	11,2	3,0	2,97	1,012
	23,2	2,65	2,60	1,02

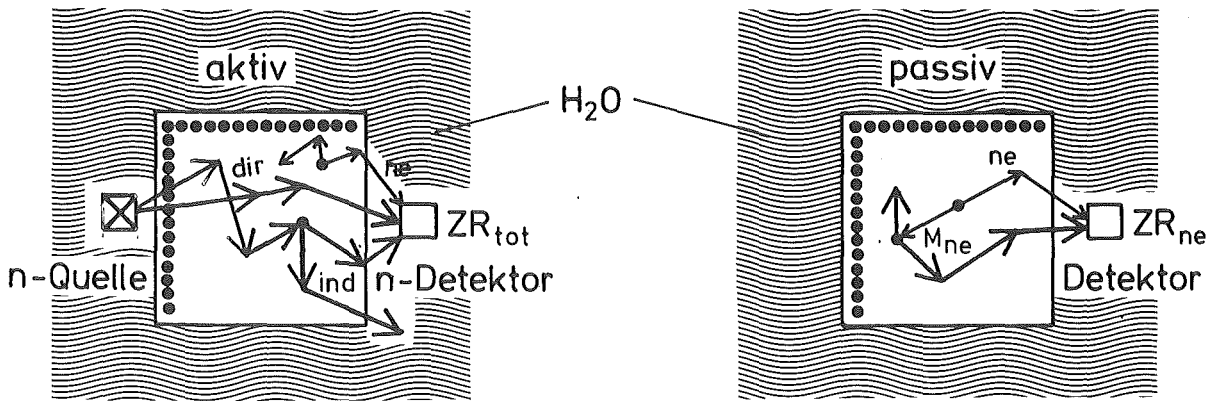
Tabelle 3 Fehlerquellen für k_{∞}^{\max} (%)

	DWR	SWR
Bestrahlungsgeschichte	1,0	1,5
unbekannte BE-Daten (Anfangsanreicherung, Abbrand)	\leq 1,0	1,5 geschätzt
Umrechnung $M_{th}(z_0)$ auf \bar{M}_{th} (AB \geq 20 GWd/tU)	$<$ 1,0	1,0
BE Positionierung \pm 1,0 mm	$<$ 1,0	1,0
Brennstoffdichte $\Delta\rho/\rho=5\%$ Kühlzeit $\Delta t_K=5a$	1,0	1,0
Summe	5,0	6,0



k_{∞}^{\max} von DWR-Stabgittern in 7m HNO₃

Abb. 1



Messung unter Wasser :

Registrierung von thermischen Neutronen

totale Zählrate ZR_{tot}

$$ZR_{tot} = ZR_{dir} + ZR_{ne} + ZR_{ind}$$

ZR_{ne}

Thermische Multiplikation M_{th} :

$$M_{th} = \frac{ZR_{tot} - ZR_{ne}}{ZR_{dir}} = 1 + \frac{ZR_{ind}}{ZR_{dir}} = f(k_{\infty}^{max})$$

Totale Neutronenemission des abgebrannten Brennst.

$$ne_{tot} = A ZR_{ne} = f(AB, AA, M_{ne}) \quad A: \text{Kalibrierkonstante}$$

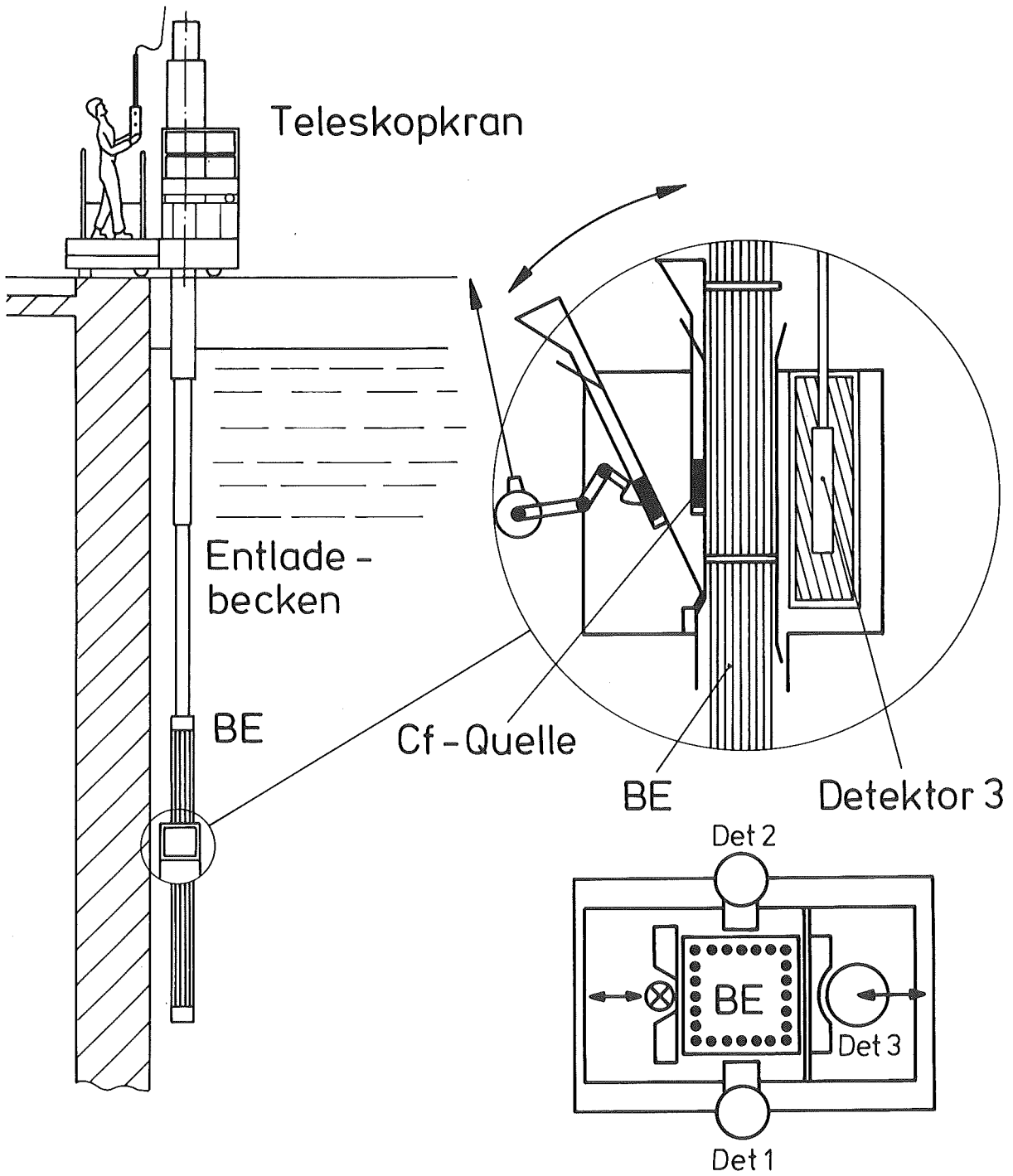
$$M_{ne} = f(M_{th})$$

$$ne_w = \frac{ne_{tot}}{M_{ne}} \quad \text{wahre Neutronenemission}$$



Prinzip der Meßmethode

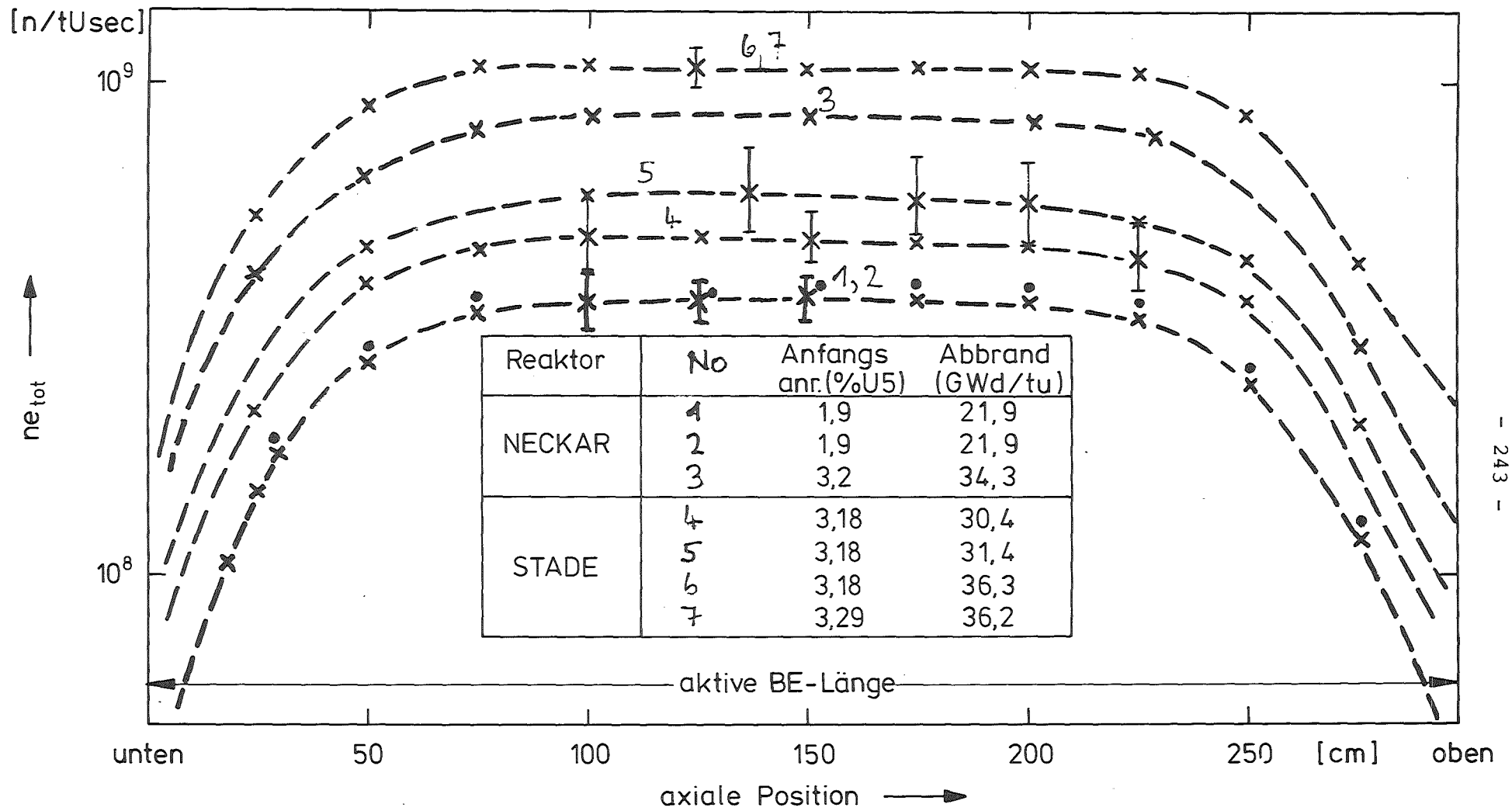
Abb. 2



KfK

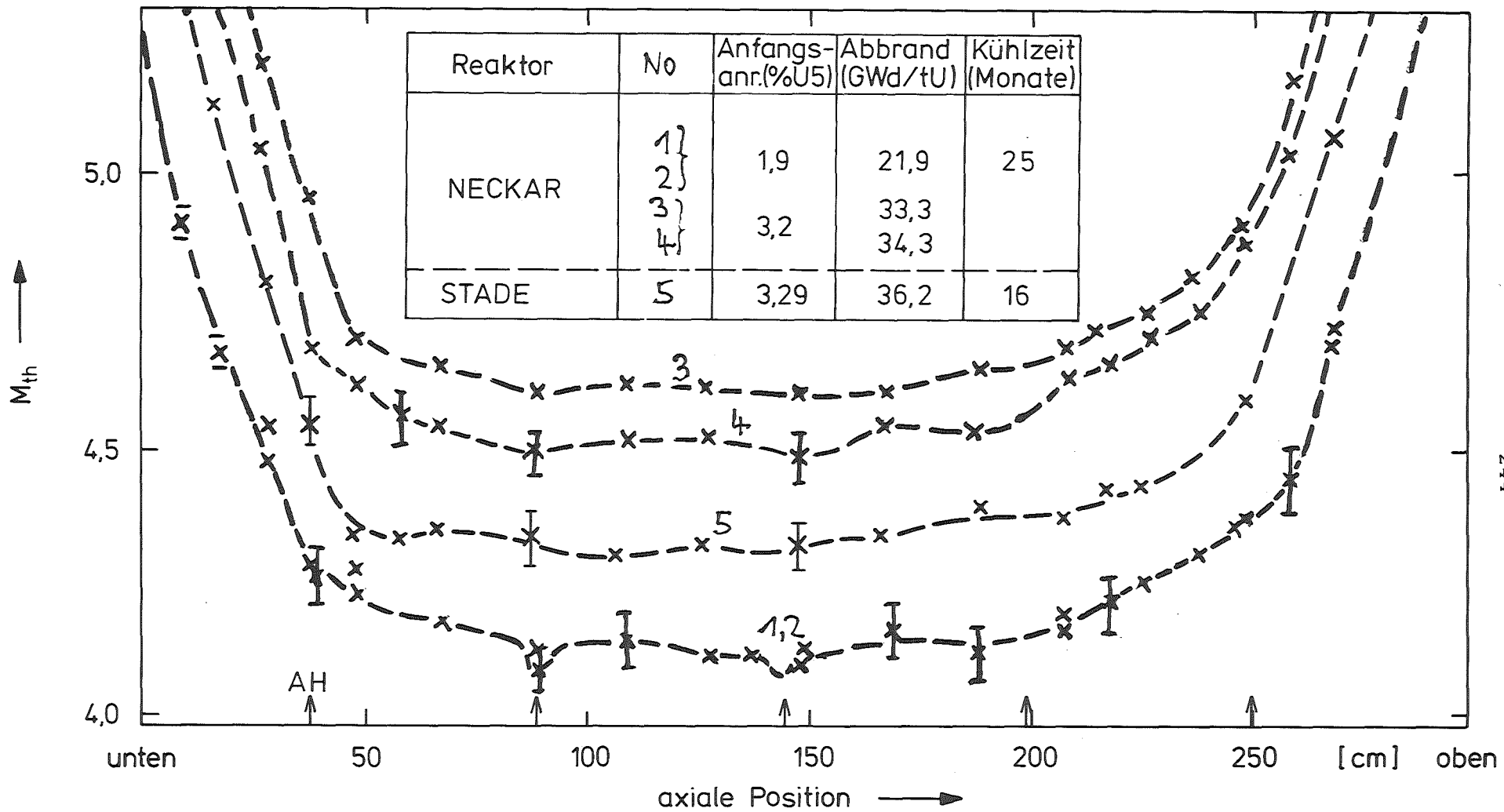
Prinzipskizze Einsatz des Brennelement - Monitors

Abb. 3



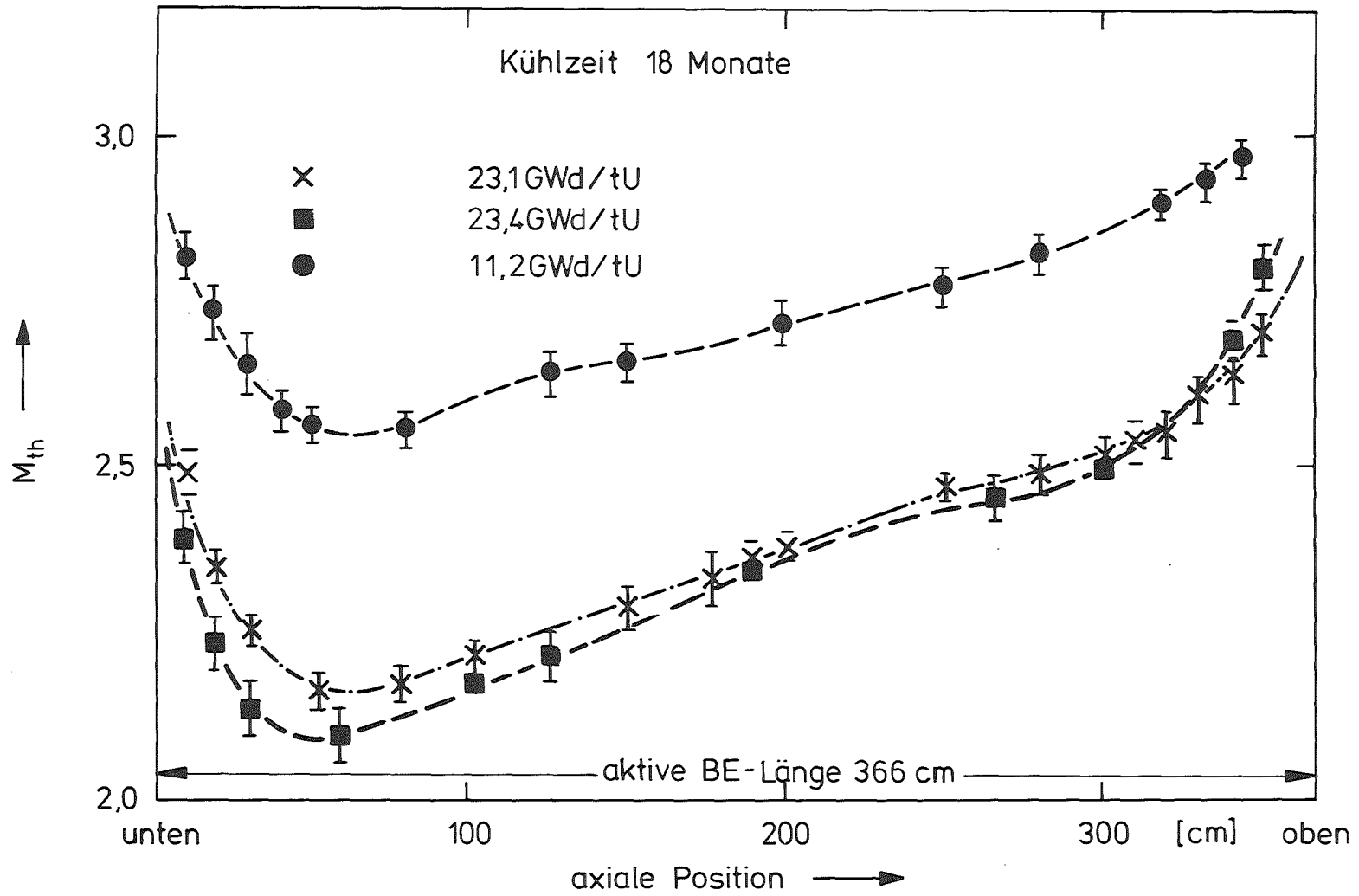
Neutronenemission für DWR-Brennelemente

Abb. 4



Neutronenmultiplikation für DWR-Brennelemente

Abb. 5



Neutronenmultiplikation für Würgassen-Brennelemente

Abb. 6

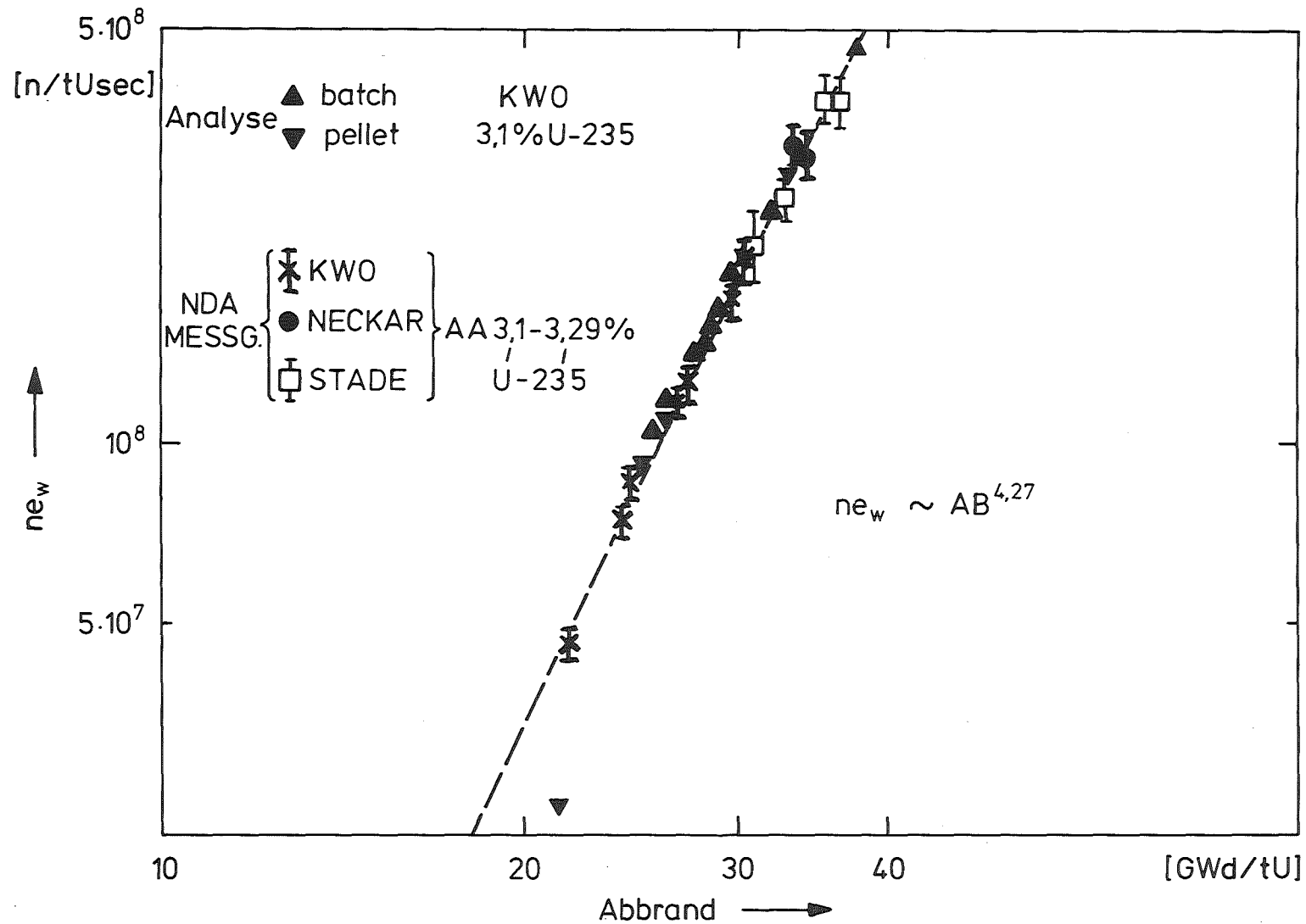
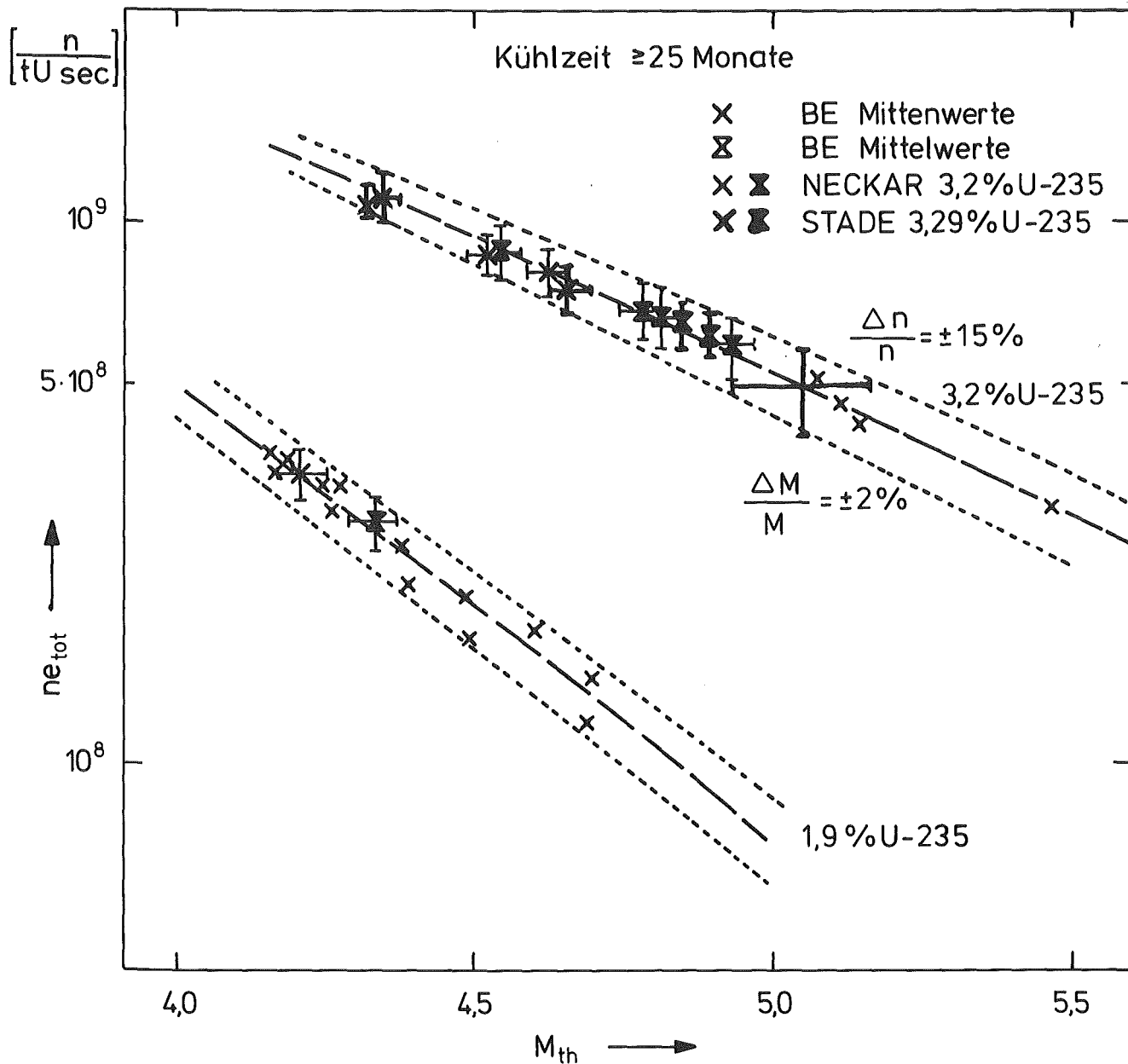


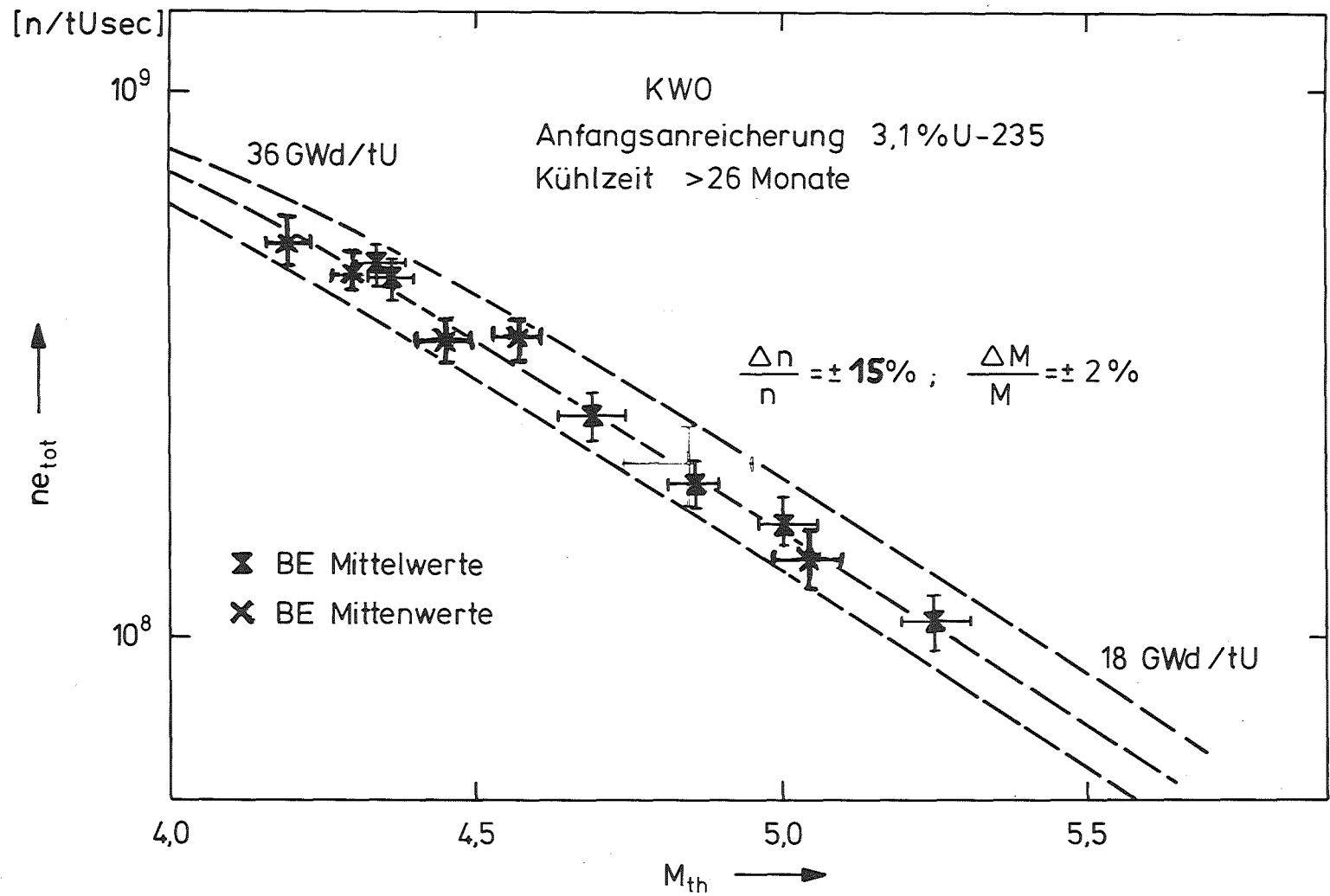
Abb. 7

Vergleich gemessene Neutronenemission für DWR-Brennstoff mit Analysen-
 resultaten für KWO



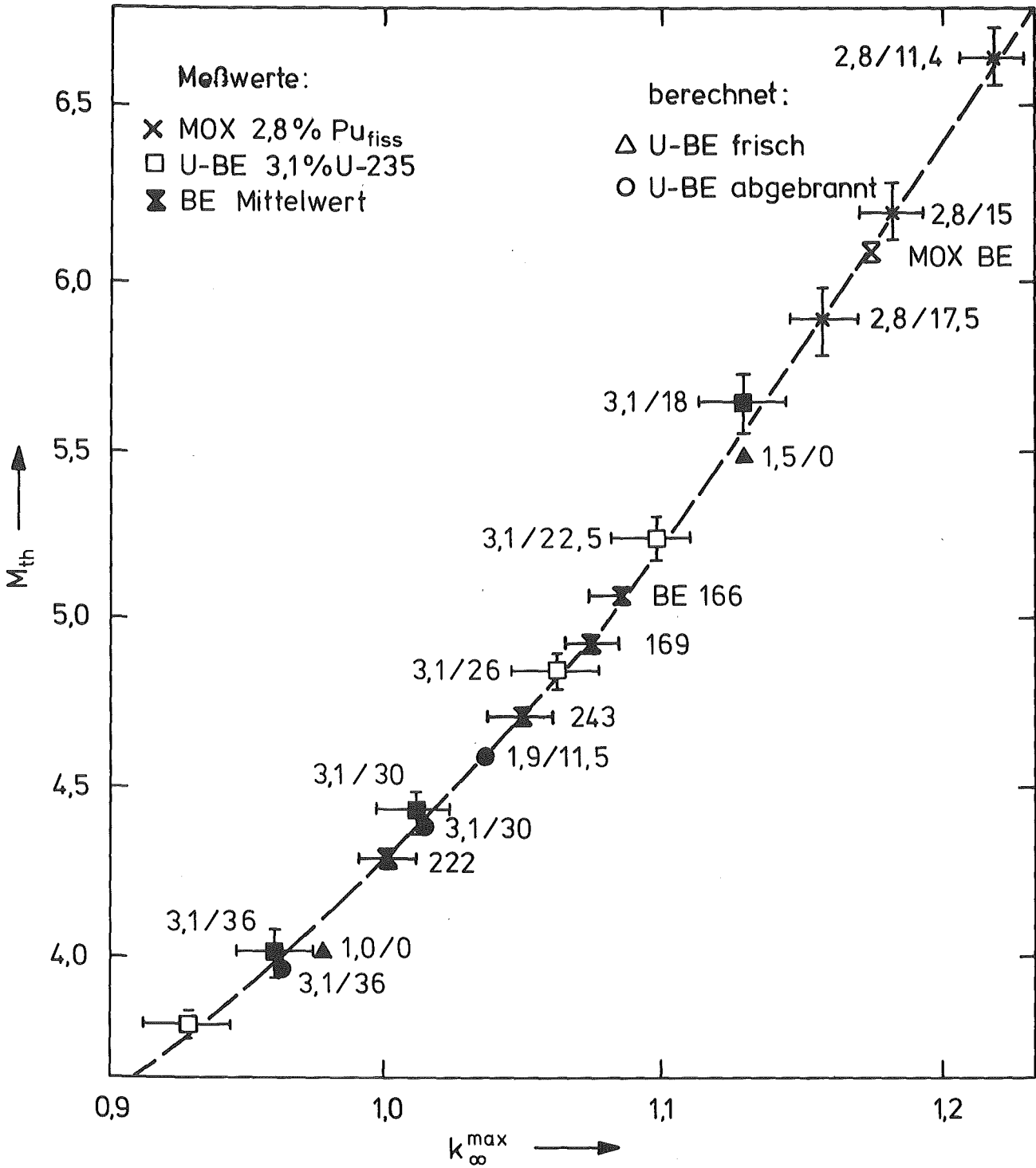
Korrelation der Meßgrößen für NECKARWESTHEIM und STADE Brennelemente

Abb. 8.



Korrelation der Meßgrößen für Obrigheim Brennelemente

Abb. 9



Eichkurve für KWO-Brennelemente

Abb. 10

ARBEITEN ZUR FERNHANTIERUNGSTECHNIK

G. Böhme, W. Köhler, M. Selig,
Hauptabteilung Ingenieurtechnik,
Kernforschungszentrum Karlsruhe

Bei allen europäischen und den meisten überseeischen Wiederaufarbeitungsanlagen sind Rohrleitungen, Behälter und Apparate in den chemischen Prozeßzellen durch sorgfältig ausgeführte Schweißungen fest miteinander verbunden. Im Gegensatz dazu sind die amerikanischen Anlagen in Savannah River und Hanford mit Rohrleitungs- und Apparateverbindungen ausgerüstet, die fernbedient mittels Kran und Schlagschrauber lös- und ffügbar sind. Dies hat den Vorteil, daß die Prozeßzellen nach Inbetriebnahme der Anlage nie mehr betreten zu werden brauchen. Alle Instandhaltungsarbeiten (Wartung, Reparatur und Komponentenaustausch) sowie konsequenterweise auch die Endbeseitigung der Zellenausrüstung können vollständig fernbedient ausgeführt werden. Es ist offensichtlich, daß sich eine solche Technik, falls sie zufriedenstellend funktioniert, vorteilhaft im Hinblick auf die Strahlenbelastung des Personals und wegen der kürzeren Instandhaltungszeiten (kurze Dekontaminationszeiten, schneller Komponentenaustausch) auch auf die Verfügbarkeit der Anlage auswirkt.

Auch die DWK erwägt, bei der Planung ihrer WA 350 mehr fernbediente Instandhaltung in den Prozeßzellen vorzusehen. Sie wird dazu ermutigt durch Konzeptuntersuchungen und Studien zur Fernbedienungstechnik im ORNL und durch Entwicklungen und experimentelle Untersuchungen zur Fernhantierungstechnik, die in der IT in den letzten Jahren durchgeführt wurden und durch die die prinzipielle Lösbarkeit des Hauptproblems, nämlich der fernhantierbaren Rohrleitungsverbindungen, demonstriert werden konnte.

Z.Z. laufen Durchführbarkeitsstudien unter dem Arbeitstitel FEMO (d.h. fernhantierte und modulare)-Technik unter Beteiligung der IT im Rahmen des PWA.

Bild 1 (Modell FEMO-Technik) zeigt einige charakteristische Merkmale eines solchen technischen Konzepts. Es sind dies die Aufteilung der Prozeßapparate in Funktionsgruppen und deren Einbau in standardisierte Gestelle (z.B. von 3 m x 3 m Grundfläche und ca. 12 bis 15 m Höhe), ferner die Aufstellung der Gestelle an den Seitenwänden einer einzigen langgestreckten Prozeßzelle und schließlich das fernbedienbare Herstellen aller Leitungsanschlüsse zu den Wanddurchführungen nach außen sowie zu den Leitungen zu Nachbargestellen. Außerdem sind alle u.U. störanfälligen Komponenten wie Pumpen, Mischer, Filter, Wärmetauscher usw. an exponierten Orten derart im jeweiligen Prozeßgestell angeordnet, daß sie ebenfalls fernbedient aus- und wieder eingebaut werden können ohne das ganze Gestell ausbauen zu müssen.

Im Rahmen unserer seit ca. 3 Jahren laufenden Entwicklungsarbeiten wurden eine Reihe fernbedient füg- und lösbarer Rohrverbindungen, z.T. nach ausländischen Vorbildern, gebaut und getestet. Einige zeigt Bild 2 (Kupplungsteststand TINA). Daraus ließen sich Empfehlungen für die Gestaltung der Rohrverbindungen in einer WA erarbeiten.

Bild 3 zeigt die ausgewählten Typen (Hochdruck-Flanschverbindung mit drei Schrauben überall dort wo möglich, Spannringverbindungen wo nötig, beide mit Grafitfolien-Flachdichtungen sowie für alle Rohre von NW10 bis NW25 Dreifachverbindungen mit Zentralschraube und Zwischendichtungslosen ORNL-TRU-Konus-Abdichtungen). Als Schraubwerkzeug bewährte sich wie in den amerikanischen Anlagen der elektrische Schlagschrauber, sowohl am freien Kranhaken als auch am starren Manipulatorarm hängend.

Vor etwa einem Jahr wurde bei uns im Rahmen eines TT-Vorhabens begonnen, die Ofenzelle der von DWK in Mol zu bauenden PAMELA-Anlage mit Apparate-Attrappen im Originalmaßstab und in Originalanordnung aufzubauen (Abb. 4). Dieser Teststand enthält ca. 100 fernbedienbare Rohrverbindungen von NW10 bis NW100 (Abb. 5, Abb. 6). Abb. 7 und Abb. 8 zeigen typische Rohrverbindungen darin.

Dieser Aufbau dient zum Nachweis und zur Demonstration des fernbedienbaren Aus- und Wiedereinbaus der Einzelkomponenten in der Zelle. Wenn die PAMELA-Anlage in einigen Jahren in Mol in aktivem Betrieb ist, wird sich diese Art der Verbindungstechnik bewähren müssen.

Ein weiterer wichtiger Aspekt bei einer WA in FEMO-Bauweise sind die Fernhantierungsgeräte selbst. Hier können wir zunächst weitgehend auf die Resultate unserer Entwicklungsarbeit in der Vergangenheit zurückgreifen. Typische Geräte, die zum Einsatz kommen können, sind der schaltergesteuerte elektrische Kraftmanipulator, Bild 9 (MF2-Manipulator mit TV-Kameras) und der elektrische Master-Slave-Manipulator, Bild 10 (EMSM). Ein geeignetes Manipulatorträger- und -positioniersystem (z.B. Teleskopkran) für diese Geräte dürfte mit konventioneller Technik realisierbar sein.

Wir haben außerdem bei allen bisherigen Fernhantierungsarbeiten gelernt, daß bei sorgfältiger und überlegter Ausbildung und Anordnung der Komponenten alle wichtigen Handhabungsaufgaben in der Zelle sich prinzipiell auch mittels freiem Kranhaken und angepaßten handelsüblichen Werkzeugen (bei entsprechend größerem Aufwand) ausführen lassen. Diese Option sollte durchweg erhalten bleiben. Die Manipulatoren dienen dann in erster Linie zur Erhöhung der Hantierungsgeschwindigkeit und damit der Anlagenverfügbarkeit.

Ein besonderes Problem ist das der Beobachtung und visuellen Kontrolle der Fernhantierungsarbeiten in einer großen Prozeßzelle. Strahlenschutzfenster, Periskope oder fest eingebaute Fernsehkameras sind wohl nur für die Raumbesichtigung bei Transportvorgängen in der Zelle von Bedeutung. Für die Nahbeobachtung und Inspektion an den vielen Hantierungs-orten kommen nur Fernsehsysteme infrage. Wir haben dazu im vergangenen Jahr eine Reihe von Versuchen mit zwei handelsüblichen und drei speziell zusammengestellten Systemen unterschiedlicher Art und Qualität gemacht, die sehr interessante Detailergebnisse erbrachten. Einige wichtige Resultate waren z.B., daß zwar die Qualität von Direktsicht durch Strahlenschutzfenster aus vergleichbarer Distanz nicht erreicht werden kann (weniger Umfeldinformationen, je nach Zoomstellung verzerrte Perspektiven, geringere Bewegungsgeschwindigkeit des "Beobachterauges"), daß jedoch nicht handelsübliche, hochauflösende Fernsehsysteme prinzipiell geeignet sind und auch bei Feinhantierungen zufriedenstellen; daß Farbsysteme auch bei etwas geringerer Auflösung mehr Informationen bieten als schwarz-weiße Systeme und daß die mögliche Hantierungsgeschwindigkeit bei Stereo-Fernsehen ca. doppelt so groß werden kann wie bei "orthogonalem" Fernsehen. Es ließen sich bisher nur wenige Fernhantierungsvorgänge identifizieren, die unter Fernsehbeobachtung garnicht oder nur mit großen Schwierigkeiten ausführbar sind.

Versuchen wir jetzt schon ein frühes Fazit aus unseren Entwicklungen, Versuchen und Überlegungen zu ziehen, von denen nur einige hier vorgestellt worden sind, so kommen wir zu der Überzeugung, daß wir im Prinzip über die Elemente verfügen, die für die Instandhaltung der Komponenten in einer nach FEMO-technischen Gesichtspunkten ausgelegten Prozeßzelle einer WA nötig sind. Es sind noch viele Fertigungsentwicklungen, Detailverbesserungen, Systemoptimierung und Harmonisierungen durchzuführen.

Wir erwarten jedoch, daß keine grundsätzlichen Änderungen eines solchen Konzepts bei seiner Realisierung nötig werden.

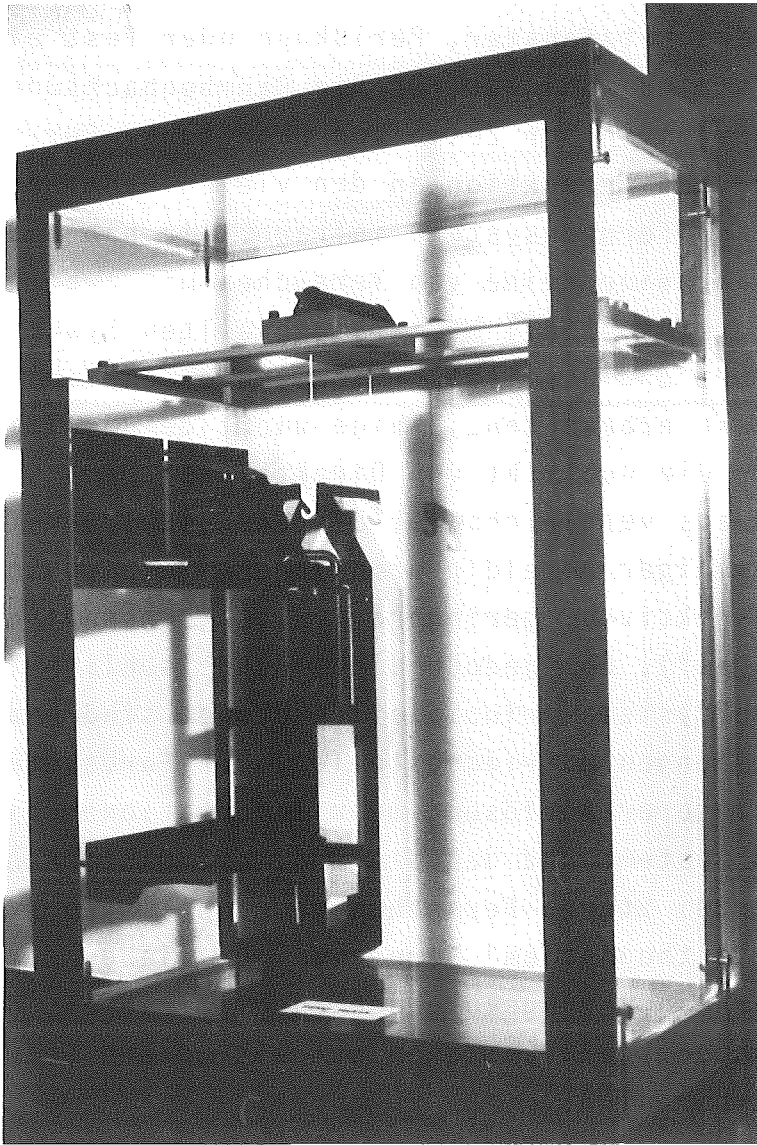


Bild 1 Modell FEMO-Zelle

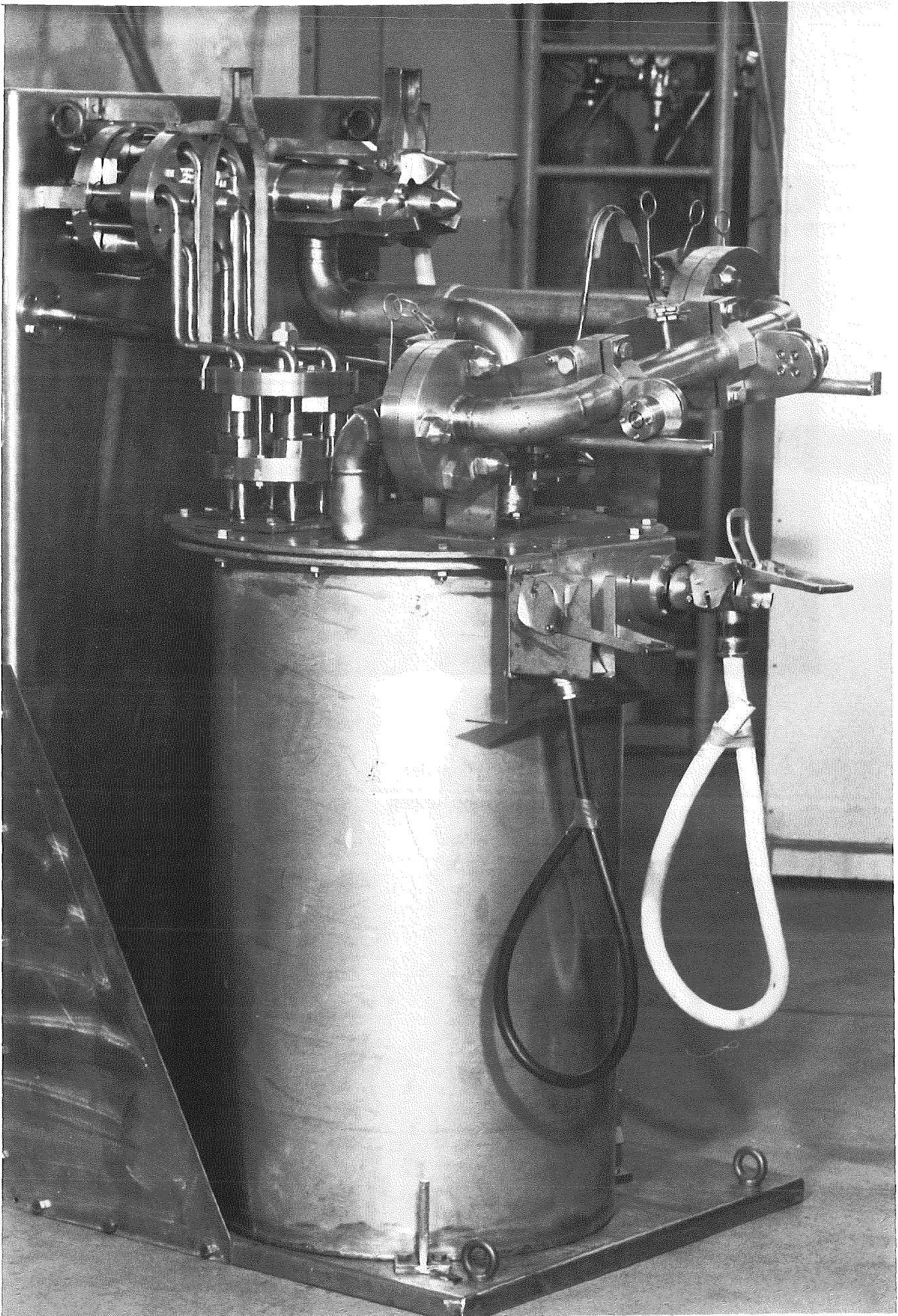


Bild 2 TINA-Teststand für Rohrleitungsverbindungen

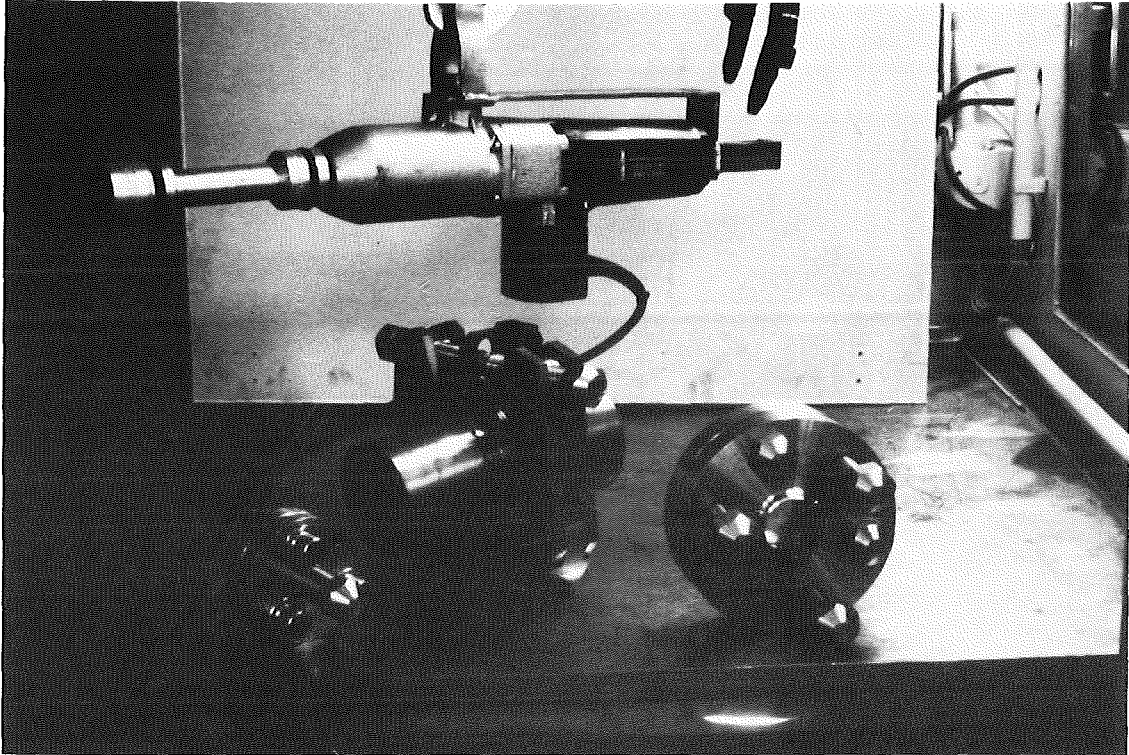


Bild 3 Ausgewählte Typen der
Rohrleitungskupplungen

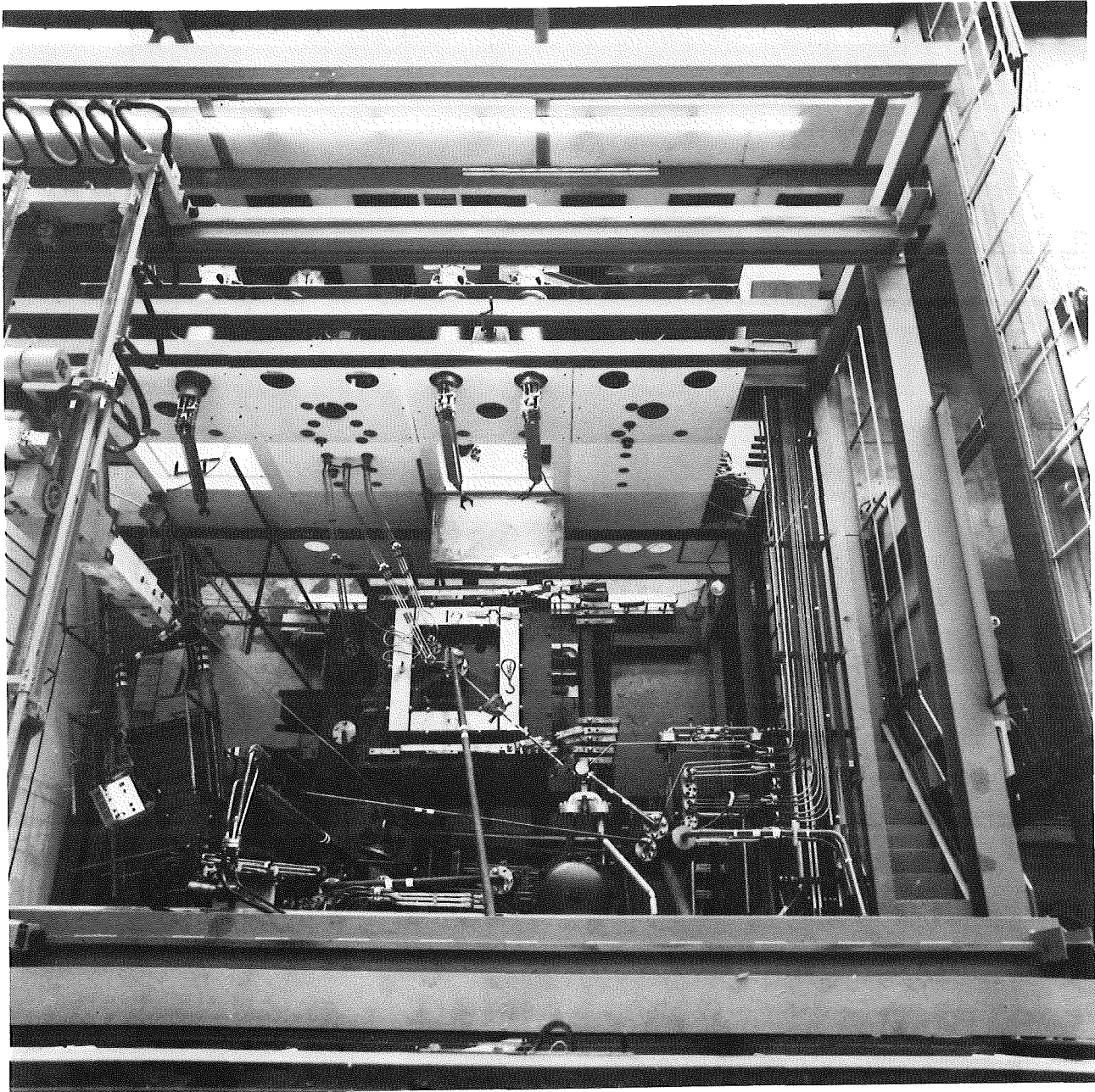


Abb. 4 Versuchsaufbau zur PAMELA-Ofenzelle

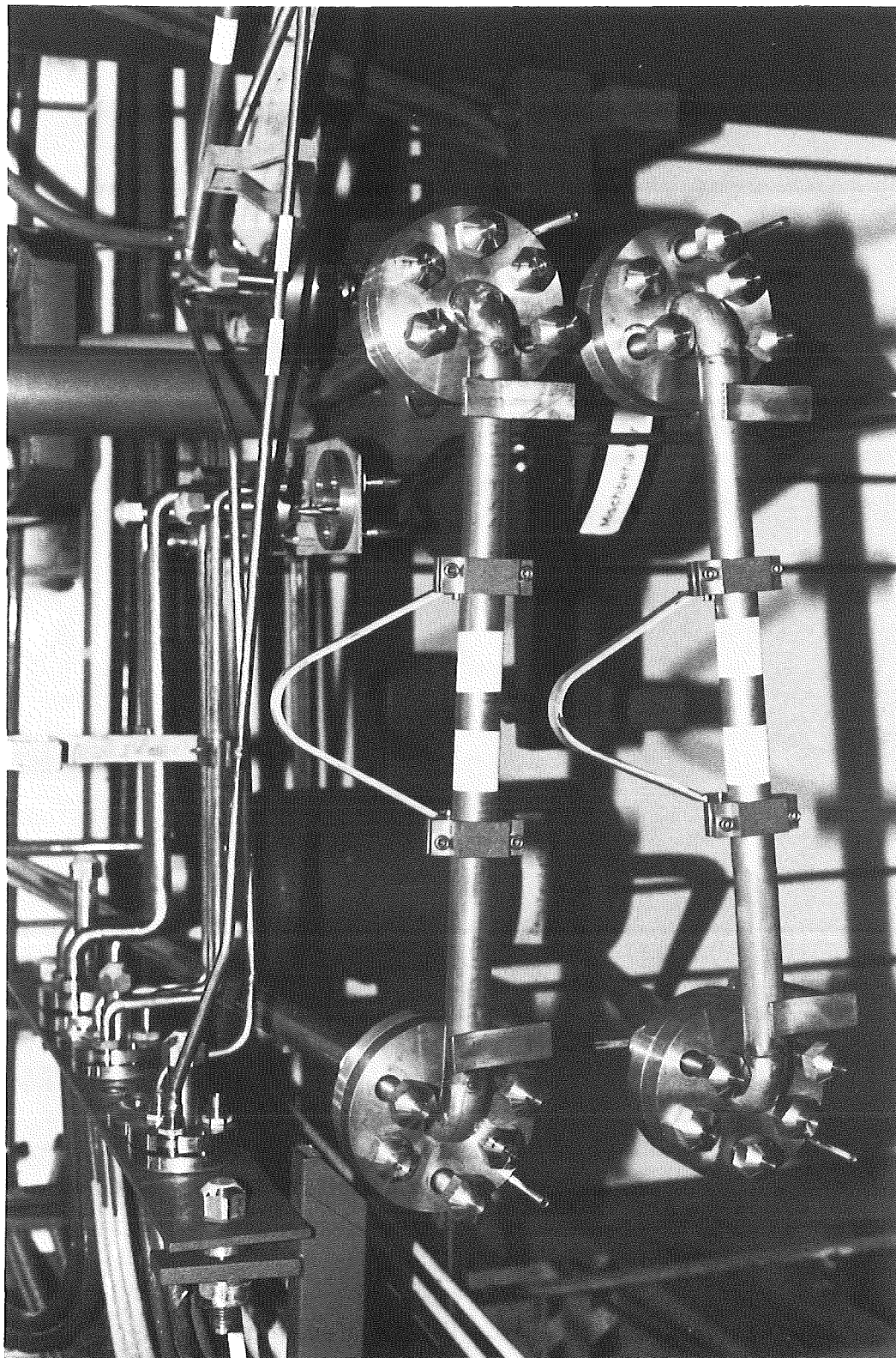


Abb. 5 Rohrleitungsverbindungen in PAMELA-Ofenzelle

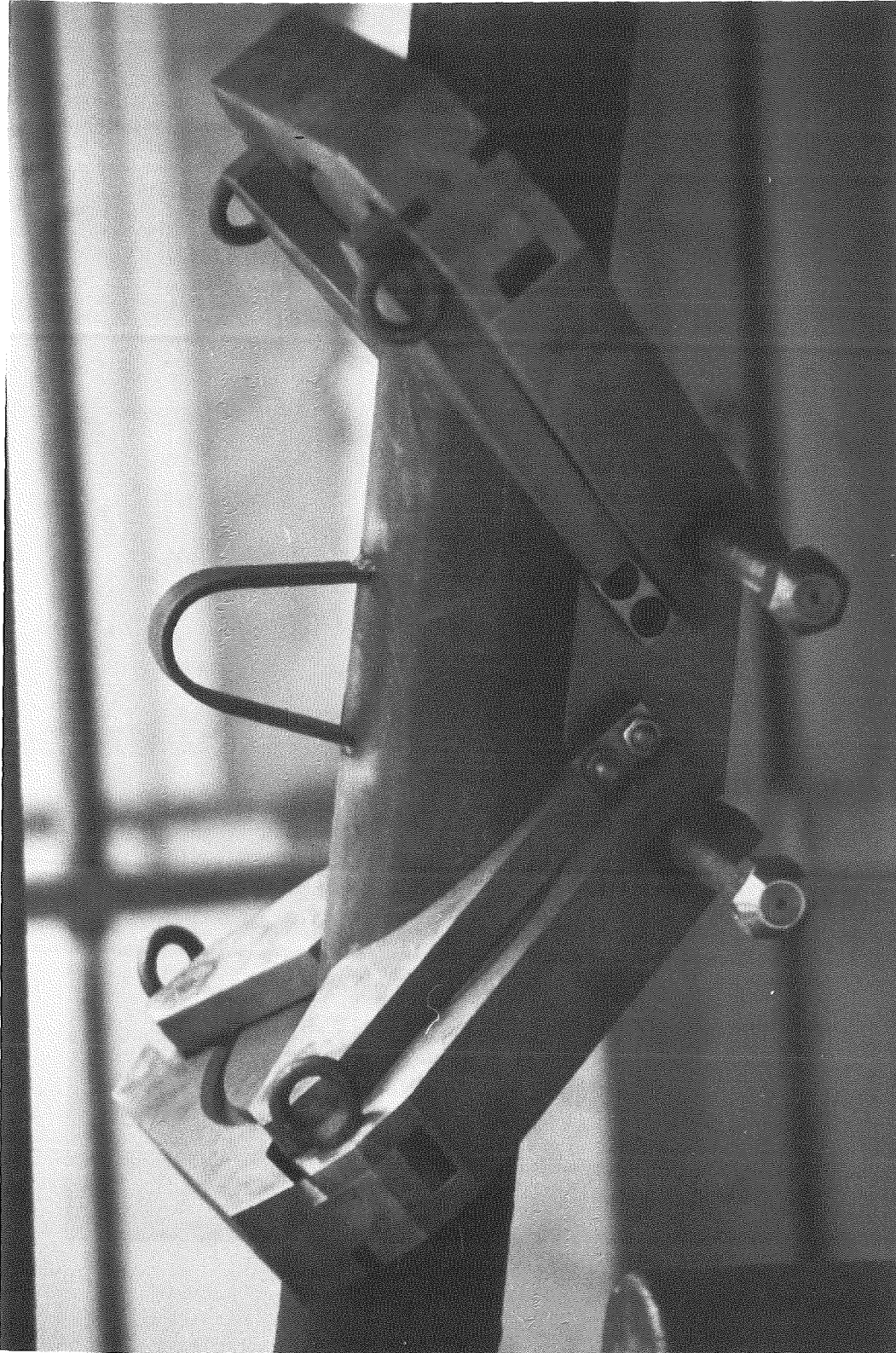


Abb. 6 Abgasrohr in PAMELA-Ofenzelle

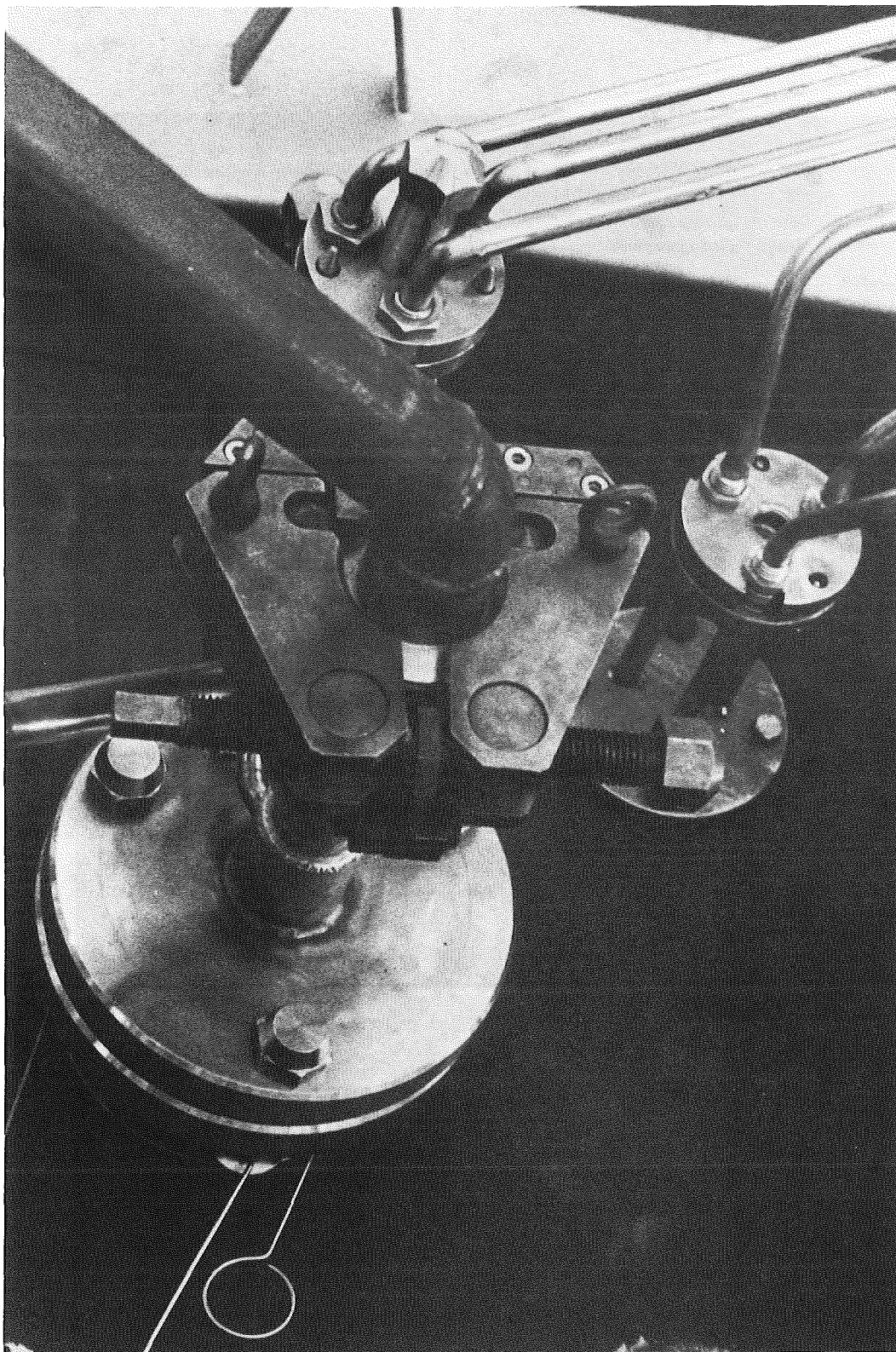


Abb. 7 Glasfrittenzufuhr in PAMELA-Ofenzelle

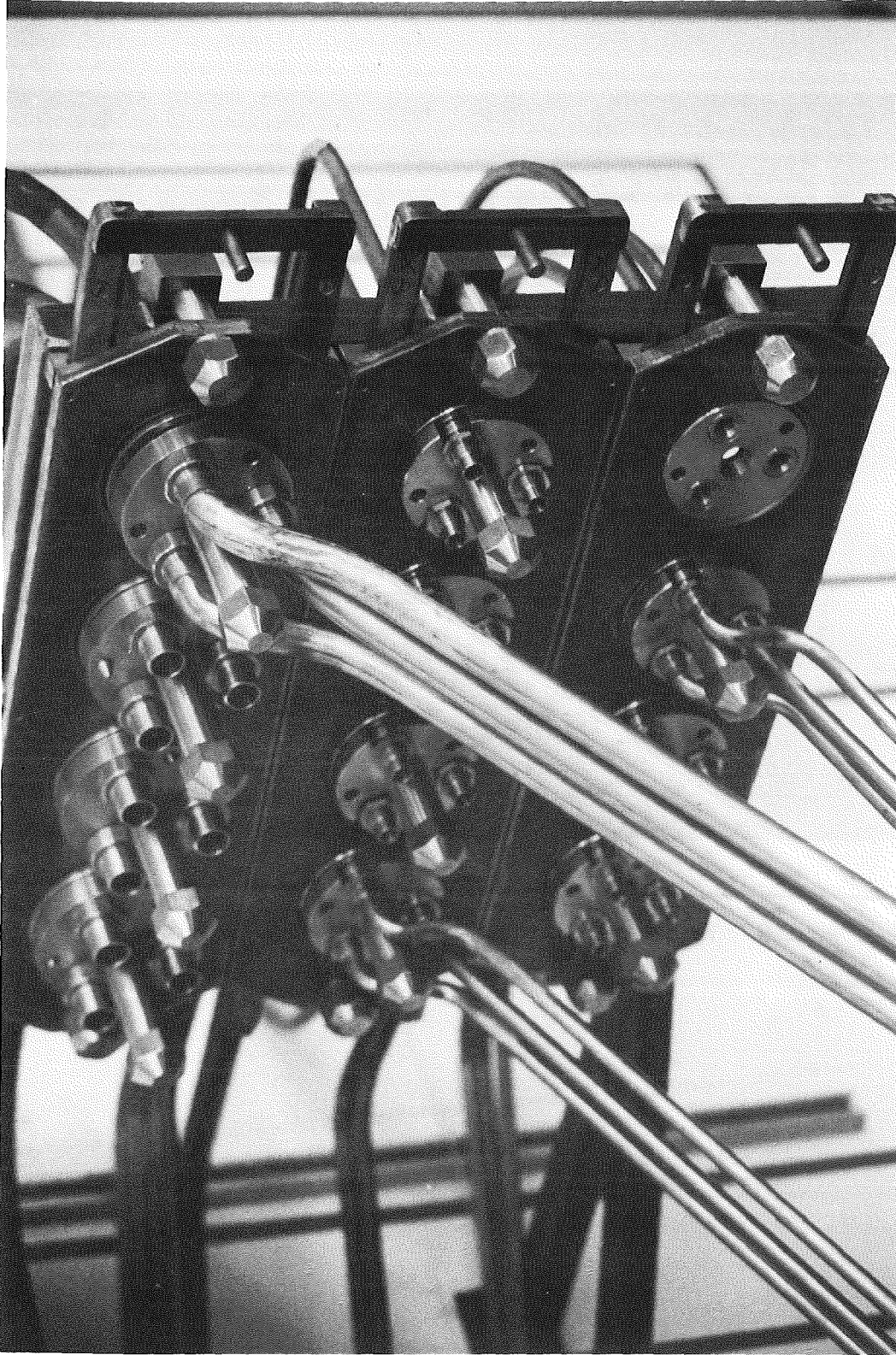


Abb. 8 Kupplungsplatte in PAMELA-Ofenzeile

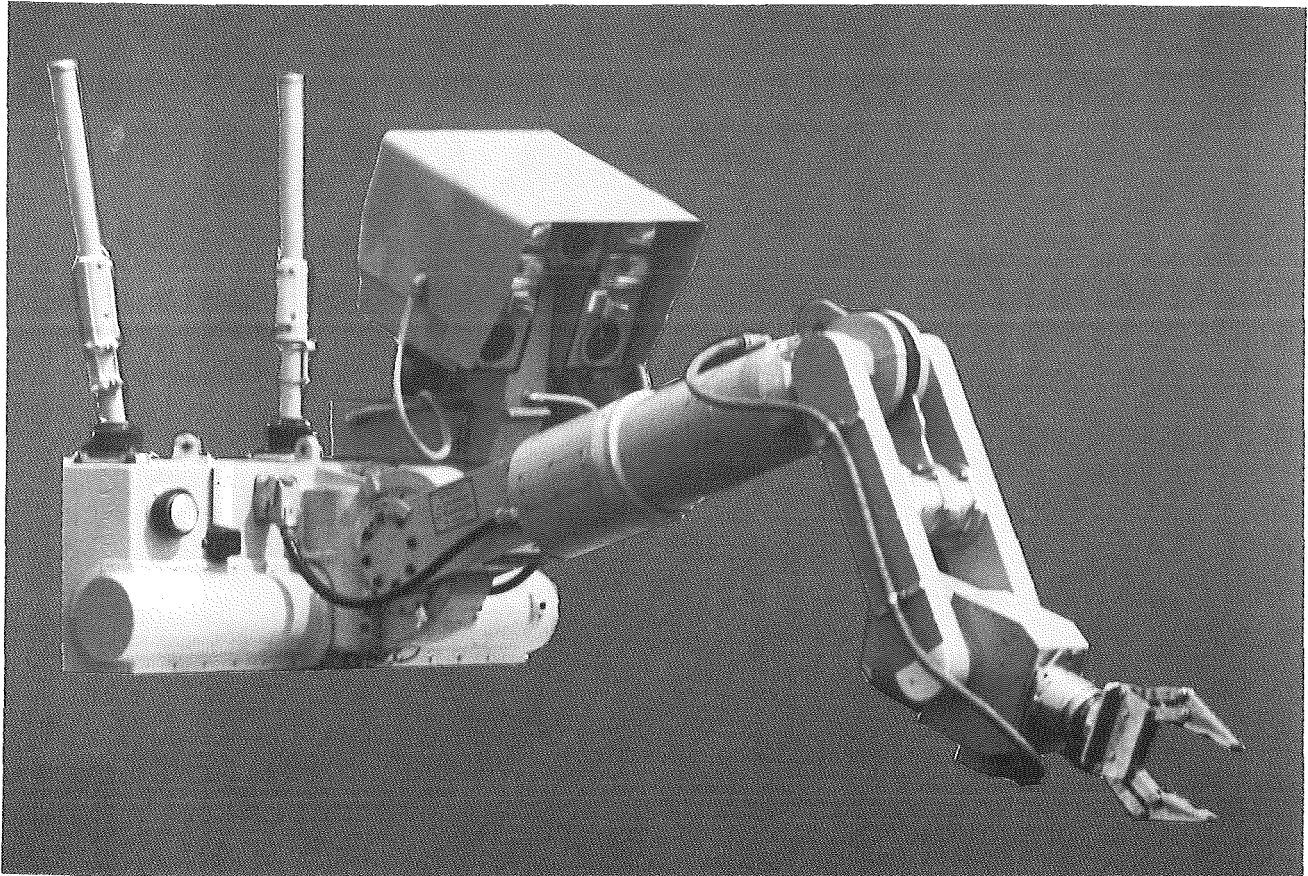


Abb. 9 Kraftmanipulator mit Stereo-Fernsehkameras

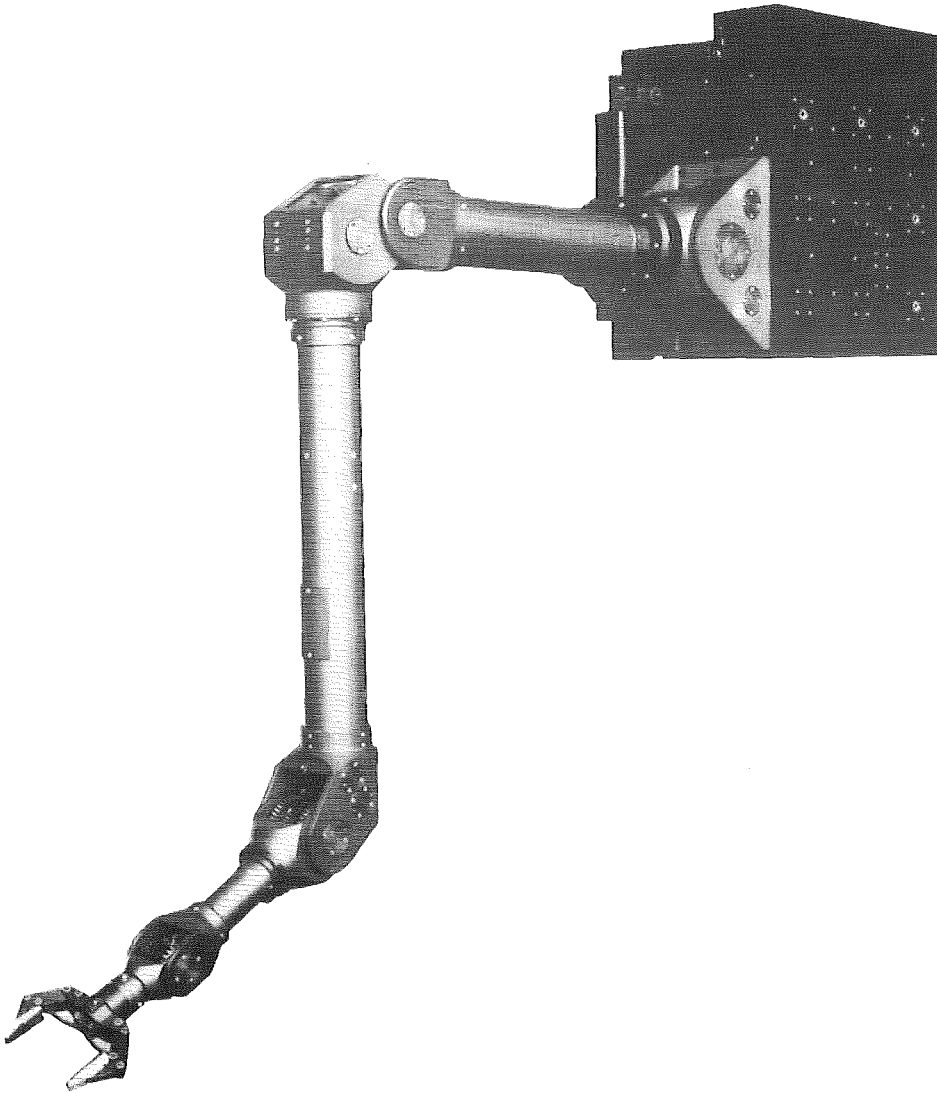


Abb. 10 Slave-Arm des Elektrischen Master-Slave-
Manipulators EMSM I

AUSWAHL, VERARBEITUNG UND ANWENDUNG VON
KORROSIONSBESTÄNDIGEN ANLAGENWERKSTOFFEN
IN DER WIEDERAUFARBEITUNG VON KERNBRENNSTOFFEN

1) *H. Klonek*

2) *S. Leistikow*

2) *R. Kraft*

1) *R. Laudien*

I n h a l t

1. Einleitung
2. Auswahl geeigneter Werkstoffe
3. Maßnahmen zur Gütesicherung
4. Betriebserfahrungen

1) WIEDERAUFARBEITUNGSANLAGE KARLSRUHE, Betriebsgesellschaft m.b.H.

2) Institut für Material- und Festkörperforschung II
Kernforschungszentrum Karlsruhe

1. Einleitung

Nach rund 730 Auflösungen kam es am Auflöser der WAK am 17.5.1980 zu einer Leckage in das 6-bar-Heizdampfsystem.

Gerade dieser Störfall hat in den letzten Monaten in verstärktem Maße die Aufmerksamkeit auf Werkstofffragen und Korrosion im Prozeßsystem einer Wiederaufarbeitungsanlage gelenkt.

Der PUREX-Prozeß spielt sich fast durchweg im salpetersauren Milieu ab, drucklos und bei niedrigen Temperaturen. Nur beim Auflöser und einigen Verdampfern wird Siedetemperatur erreicht. Die Salpetersäurekonzentration beträgt in den temperaturbelasteten Apparaten max. ~ 7 Mol/l. Der Werkstoff ist, wie in Salpetersäureanlagen im mittleren Konzentrationsbereich weltweit üblich, austenitischer Edelstahl.

Wir haben es also hier mit einem aus der Sicht der Werkstofftechnik eng begrenzten Problem zu tun: Korrosion von austenitischen Edelstählen in Salpetersäure mittlerer Konzentration bis max. Siedetemperatur, mitunter verschärft durch die Anwesenheit korrosionsbeschleunigender hexavalenter Ionen.

2. Auswahl geeigneter Werkstoffe

2.1 Austenitische CrNi-Stähle

Austenitische CrNi-Stähle sind aufgrund ihrer Fähigkeit, sich über einen breiten Potentialbereich passiv zu verhalten, sehr geeignet als Werkstoffe des chemischen Apparatebaus verwendet zu werden. Auch mit den Bedingungen des passiv-transpassiven Überganges wird ihr Einsatz in der konventionellen Technik noch als tragbar erachtet.

Die Auswahl von geeigneten Stählen für Wiederaufarbeitungszwecke orientiert sich an den Herstellungskosten, der Verarbeitbarkeit und im wesentlichen an der Korrosionsbeständigkeit. Hierbei erweisen sich einerseits die Legierungszusammensetzung und andererseits der Wärmebehandlungszustand von starkem Einfluß.

2.1.2 Werkstoff-Korrosion /1/

Die Metallkorrosion durch die stark oxidierende Salpetersäure läßt sich durch folgende elektrochemische Teilvorgänge darstellen: anodische Auflösung des metallischen Werkstoffs, kathodische Reduktion der Salpetersäure. Das salpetersaure Milieu erweist sich daher als ein kompliziertes Redoxsystem hohen Oxidationspotentials. Hierbei sind die Konzentration der Salpetersäure, ihre Temperatur und der Gehalt an oxidierenden Ionen in der Säure von hohem Einfluß.

Ernsthafte Korrosionserscheinungen werden im transpassiven Potentialbereich durch heiße, konzentrierte Salpetersäure (z.B. 65 %, 120°C) am bereits geringfügig sensibilisierten CrNi-Stahl, in verdünnten Säuren und bei mäßigeren Temperaturen durch die Gegen-

wart von geringen Konzentrationen oxidierend wirksamer Ionen ausgelöst. Es reicht bereits die spezifische Aktivität und Zusammensetzung der Korngrenzen (Segregationen von Silizium und Phosphor) aus, um den Korrosionsvorgang zu beschleunigen.

Der typische Angriff auf die Legierungsmatrix erfolgt durch interkristalline Korrosion mit Bildung von für den Angriff im transpassiven Bereich typischen keilförmigen Gräben geringer Eindringtiefe. Eine spezielle Angriffsart stellt die seigerungsbedingte selektive Korrosion ("Tunnelkorrosion") dar. Sie tritt dann auf, wenn Seigerungen des Gußgefüges durch Verformung des Werkstoffs zeilenförmig gestreckt werden und an Schnittkanten in die dem korrosiven Medium exponierte Oberfläche gelangen. Der Korrosionsangriff vollzieht sich unter diesen Umständen selektiv entlang den Seigerungszeilen in das Gefügebinnere.

Aktive Maßnahmen gegen die interkristalline Korrosion beginnen bei der Erschmelzung des Werkstoffs durch Anwendung von Verfahren, die eine hohe Reinheit hinsichtlich der kleinen, die Sensibilisierung und die heterogene Struktur des Werkstoffs verursachenden Legierungsgehalte sicherstellen.

Gegen die seigerungsbedingte selektive Korrosion kämpft man gleichermaßen durch Erschmelzung von Werkstoffen höchster Reinheit an.

Andere Erscheinungsformen der Korrosion stehen in direktem Zusammenhang mit Schweißverbindungen an austenitischen CrNi-Stählen und betreffen:

a) das Schweißgut

Bei Ausbildung eines zusammenhängenden δ -Ferritnetzes tritt häufig ein interdendritischer Korrosionsangriff auf das Schweißgut auf. Der δ -Ferritgehalt muß $< 10 \%$ gehalten werden.

b) die Wärmeeinflußzone

Die im wesentlichen interkristallinen Korrosionserscheinungen in der beidseitigen Wärmeeinflußzone der verbundenen Werkstücke beruhen auf Sensibilisierung durch Chromkarbidausscheidungen, deren Bildung vor allem durch langsame Abfuhr der durch den Schweißvorgang eingebrachten Wärme begünstigt wird. Gezielte Maßnahmen dagegen sind legierungsseitig (siehe interkristalline Korrosion) oder durch gezielte Wärmeableitung resp. thermische Nachbehandlung der Schweißnaht zu treffen. Solche Nachbehandlungen sind im Anlagenbau jedoch meist nicht möglich.

2.1.3 Der Werkstoff Nr. 1.4306

Der Werkstoff Nr. 1.4306 hat sich als kohlenstoffarmer, austenitischer CrNi-Stahl grundsätzlich in der chemischen Industrie und Wiederaufarbeitungsanlagen für Salpetersäure mittlerer Konzentration bewährt. Er ist leicht zu verarbeiten, seine abtragende Korrosion ist berechenbar und wird durch entsprechende Korrosionszuschläge berücksichtigt. Es gelingt jedoch nicht in allen Fällen selektive Korrosionserscheinungen zu unterdrücken. Es müssen zusätzlich legierungstechnische Maßnahmen ergriffen werden, vor allem um die Gehalte an Kohlenstoff, Silizium, Molybdän, Phosphor, Schwefel und Stickstoff gegenüber der für den Werkstoff Nr. 1.4306 gültigen

Spezifikation weiter einzuschränken und einen homogenen Werkstoff durch spezielle Erschmelzungsverfahren herzustellen.

Auf diese Weise kann eine Verminderung der Gesamteinschlüsse vorgenommen werden. Auch treten keine Einschlußarten mehr auf, die bei der Wärmebehandlung zu Einschlußzeilen führen können.

2.1.4 Alternative CrNi-Stähle

Alternative, austenitische CrNi-Stähle für den Einsatz in Wiederaufarbeitungsanlagen sind solche vom Typ 25 20 CrNi, wie z.B. Uranus 65 (Creusot Loire), UHB 25 L (Uddeholm) und 2 RE 10 (Sandvik). Diese Stähle zeigen in konzentrierter siedender Salpetersäure eine allgemeine, abtragende Korrosion von 0,06-0,07 mm/Jahr, deren Ausmaß mit Anstieg auf max. 0,11 mm/Jahr auch durch Wärmebehandlung im sensibilisierenden Temperaturbereich (30 min, 700°C) nicht erheblich verschlechtert wird (Abb.1). Auch ergab bei diesen Stählen die raster-elektronenoptische Analyse der Oberfläche der Schnittkanten keinen Hinweis auf akute Korrosion entlang von Seigerungszeilen (Abb.2). Geringe Konzentrationen oxidierender Ionen z.B. 0,1 g CrVI/l zur siedenden 65 % HNO₃ jedoch steigern den Metallabtrag auf 2,6 - 7,2 mm/Jahr, so daß kein Vorteil gegenüber dem Werkstoff Nr. 1.4306 in der herkömmlichen Qualität (3,1 - 5,9 mm/Jahr) mehr zu erkennen ist. /2/

Eine weitere Alternative für den Einsatz in konzentrierter Salpetersäure sind die hochsiliziumhaltigen (> 4 % Si) austenitischen Stähle vom Typ 17 15 CrNi. Dies sind z.B. Uranus S1 (Creusot Loire) sowie Werkstoff Nr. 1.4361 und die Neuentwicklung VEW A 611 /3/. Die Entwicklung dieser Stähle ist jedoch noch im vollen Fluß.

2.2 Sonderwerkstoffe

Der Werkstoff Nr. 1.4306 ist in der Regel für fast alle Anwendungen in Anwesenheit von Salpetersäure geeignet. Bei zu hohem Redox-Potential des Mediums reicht die Korrosionsbeständigkeit der CrNi-Stähle jedoch nicht mehr aus. Hierfür sollten Sonderwerkstoffe wie Titan, Zirkonium und Tantal in Erwägung gezogen werden. Die Auswahl dieser Sonderwerkstoffe wird entscheidend mitbestimmt von den Fertigungsmöglichkeiten für den speziellen Apparat und auch von den Reparaturmöglichkeiten unter den betrieblichen Bedingungen in der Anlage.

Bei der Verarbeitung dieser Werkstoffe ist zur Vermeidung von Versprödung verursachender Gasaufnahme (O,N,H) die Einhaltung spezieller Schweißrichtlinien erforderlich.

Tantal besitzt aufgrund seiner Passivierbarkeit eine bis zu hohen Temperaturen gehende Korrosionsbeständigkeit. Tantal wird nicht von Salpetersäure, jedoch von Flußsäure, heißer, rauchender Schwefelsäure und heißen Alkalilaugen angegriffen. Bei Anwesenheit von Fluoriden ist neben der abtragenden Korrosion auch mit versprödender Wasserstoffaufnahme zu rechnen.

Unter Verwendung von Tantal werden alle möglichen Apparate, z.B. Wärmetauscher und Hochdruckapparate, hergestellt. Dabei wird das Tantal aus Kostengründen meist als lose oder sprengplattierte Auskleidung eingesetzt. Das Schweißen von Tantal stellt die einführend erwähnten außerordentlich hohen Anforderungen.

Im Chemieanlagenbau bewährt sich Titan wegen seiner guten Korrosionsbeständigkeit gegenüber oxidierenden

Medien, chlorionenenthaltenden aggressiven Flüssigkeiten sowie mit inhibierenden Zusätzen versehenen, reduzierenden Säuren. Wesentlich ist auch seine Unempfindlichkeit gegenüber Lochfraß, interkristalline und Spannungsrißkorrosion.

Titan ist in Salpetersäure beständig, ausgenommen hochkonzentrierte Salpetersäure. Der Werkstoff ist gut verarbeitbar und ist auch bei sehr hohem Potential des Mediums gegen Salpetersäure korrosionsbeständig, wenn die Anwesenheit von Spuren Silizium gewährleistet ist.

Da die Technik der Titanverarbeitung beherrscht wird und auch die Reparaturmöglichkeiten gegeben sind, dürfte Titan ein geeigneter Sonderwerkstoff für den Einsatz in Wiederaufarbeitungsanlagen sein, wenn die Korrosionsbeständigkeit des Edelstahl in Bereichen hohen Redoxpotentials nicht mehr ausreicht.

Der Apparatebau mit Sondermetallen ist durch von der Edelstahlverarbeitung z.T. erheblich abweichenden Konstruktionsmerkmale geprägt und stellt ganz allgemein hohe Ansprüche, insbesondere an die Schweißtechnik.

3. Maßnahmen zur Gütesicherung

Für die Werkstoffbearbeitung im Apparatebau resultieren aus den Korrosionserscheinungen in Salpetersäure viele Besonderheiten und Richtlinien, gerade wenn Prozeßtemperaturen von über 80°C unumgänglich sind.

Die Herstellung und Fertigung von Anlagenteilen und Komponenten erfolgt nach den sogenannten "Technischen Liefer- und Abnahmebedingungen". In diesem Regelwerk sind Vorschriften und Richtlinien erlassen, die für das Bauteil berücksichtigt werden müssen. Außerdem wird eine ständige Kontrolle und Bauüberwachung durch den Auftraggeber und den Technischen Überwachungsverein während der Fertigung durchgeführt. Das Kontrollsystem ermöglicht es, durch Bauprüfpläne die Einhaltung sämtlicher Prüfforderungen in einzelnen Prüfschritten zu gewährleisten.

4. Betriebserfahrungen

Betriebserfahrungen auf dem Werkstoffsektor entstehen fast ausschließlich durch die Schadensanalyse von defekten Apparaten. Erfahrungen aus Wiederaufarbeitungsanlagen (siehe auch /4/) sind dabei grundsätzlich dieselben wie aus der chemischen Industrie:

1. Die gleichmäßige Flächenkorrosion ist immer so gering, daß der berechenbare Korrosionszuschlag bei der Wanddickenbemessung ausreicht.
2. Die in der chemischen Industrie gefürchtete Spannungsrißkorrosion und Lochfraß treten im Salpetersäurebereich nicht auf und wurden in der Wiederaufarbeitung auch nicht beobachtet.

3. Eine wichtige Rolle spielen die selektiven Korrosionsarten interkristalline Korrosion, seigerungsbedingte Korrosion bei nicht ausreichend reinem Werkstoff und die selektive Ferritkorrosion bei zu hohem Ferritgehalt im Schweißgut.

Alle beobachteten Schäden lassen sich auf diese zuletzt genannten Korrosionsarten zurückführen.

Austenitischer Edelstahl wird, abgesehen von wenigen Ausnahmen für Sondermetalle, der bevorzugte Werkstoff bleiben. Die Neuentwicklungen auf dem Werkstoffsektor verbunden mit einer umfassenden Qualitätskontrolle und Überwachung zeigen Möglichkeiten auf, die beobachteten Korrosionserscheinungen zu beherrschen.

Literatur

- /1/ H. Gräfen, E.-M. Horn, U. Gramberg: Korrosion,
Ullman Encyklopädie der Technischen Chemie,
Band 15, Verlag Chemie Weinheim 1978

- /2/ R. Kraft, S. Leistikow, E. Pott, unveröffentlicht

- /3/ G. Hochörtler, E.-M. Horn, Austenitic Stainless
Steel with approximately 5,3 % Silicon, Proc. 8th Int.
Congr. Metallic Corrosion, Vol. II, 1447-1452 (Sept. 1981),
Mainz

- /4/ Stainless Steel Information Manual for the
Savannah River Plant, DP-860, July 1964

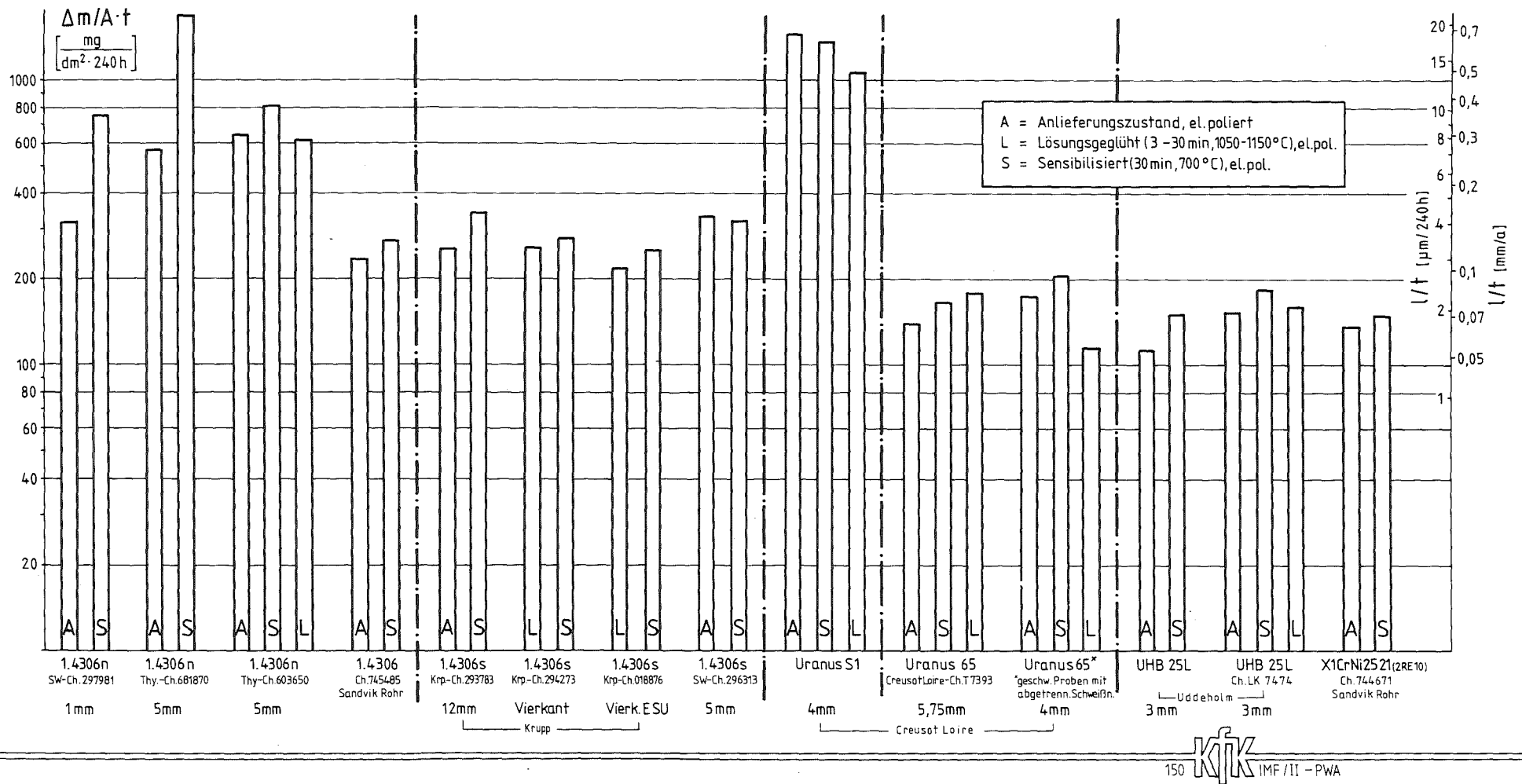


Abb. 1 Korrosion im Huey-Test von versch. Werkstoffen (65% HNO₃, 120°C, 240 h)

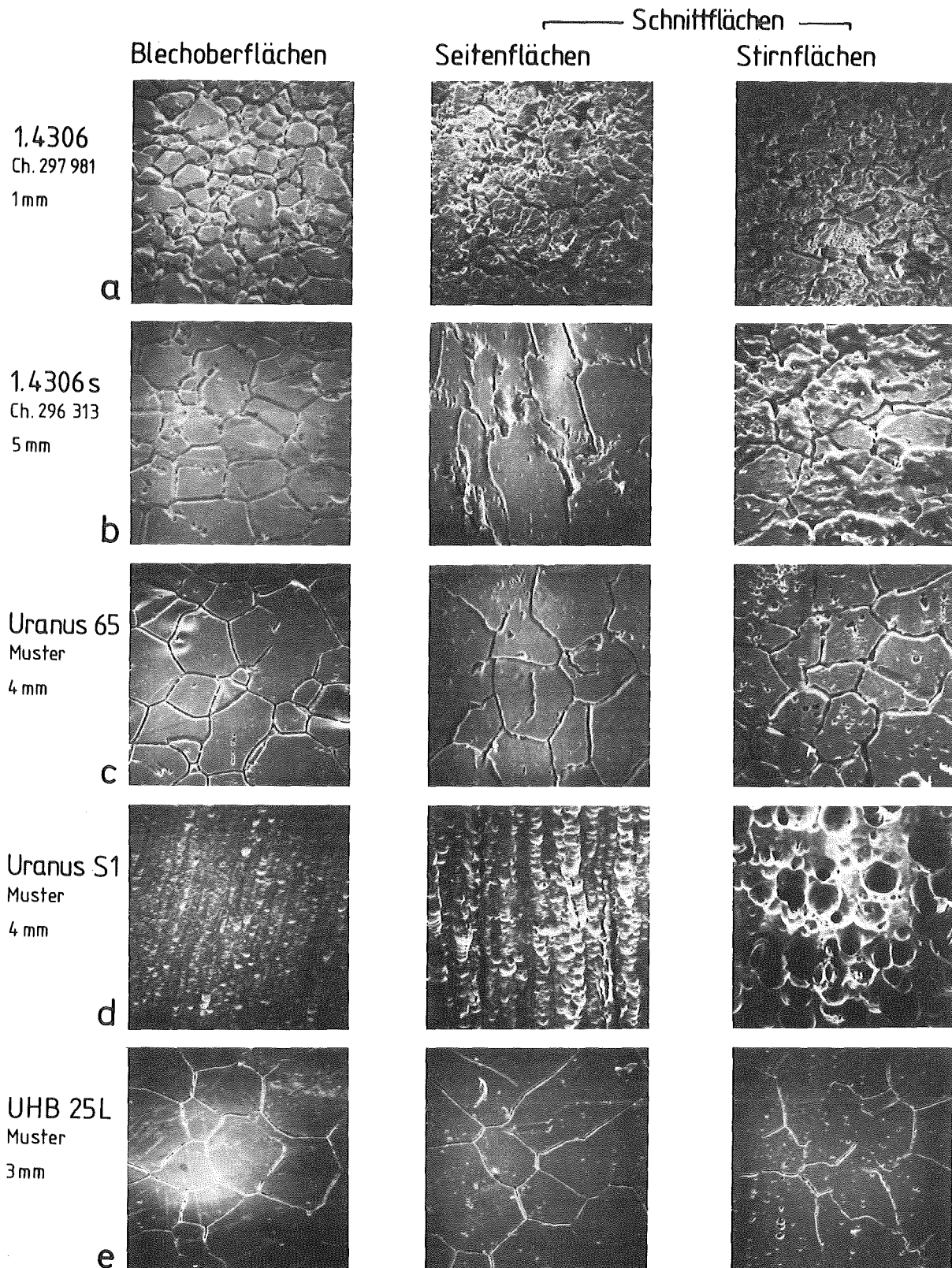


Abb.2

REM-Untersuchungen von Ober- und Schnittflächen verschiedener austen. CrNi-Stähle nach Korrosion im Huey-Test (65 % HNO₃, 120 °C, 240 Std.)