

Behandlung von Harzen und Schlämmen im Kernkraftwerk Mühleberg

Dr. A. von Gunten, L. Trummer, Dr. Ch. Weber
(BKW FMB Energie AG, Kernkraftwerk Mühleberg)

Zur Konditionierung der im Kernkraftwerk Mühleberg anfallenden Harze und Schlämme ist im bestehenden Aufbereitungsgebäude eine Verfestigungsanlage installiert. Das Verfahren umfasst die Aufbereitung der Rohabfälle, eine thermische Behandlung der Harze sowie eine volumenoptimierte Einbindung in Zement. Entsprechend den in der Schweiz gültigen Vorgaben sind Rezepturen entwickelt und qualifiziert. Abfallgebindetypen sind spezifiziert und einer Typenprüfung unterzogen. Der Betrieb der Anlage erfolgt routinemässig und im wesentlichen problemlos. Im Rahmen einer Prozessoptimierung sind die Abfallprodukte hinsichtlich ihrer Wasserbeständigkeit noch zu verbessern, was mittels eines - durch zusätzliche ionale Erschöpfung der Kationenaustauscher ermöglichten - höheren Zementgehaltes erreicht werden soll. Die Herstellung von bisher 304 aktiven Abfallgebinden hat gezeigt, dass die angestrebte Beladung für Harze und Schlämme von 300 bzw. 200 kg trockene Abfallschubstanz je m³ Abfallmatrix erreicht wird.

1. Einleitung

In Leichtwasserreaktoren werden für die Reinigung der Wasserkreisläufe und die Aufbereitung des radioaktiven Abwassers mit Ionenaustauscherharzen bestückte Reinigungsfilter verwendet. Sobald die Reinigungswirkung der in den Filtersystemen eingesetzten Harze erschöpft ist, werden sie in spezielle Sammelbehälter gespült und dort bis zu ihrer kampagnenweisen Weiterverarbeitung als radioaktiver Abfall aufbewahrt.

Für die Konditionierung der Harze zu endlagerfähigen Abfallgebinden ist im seit 1972 betriebenen Kernkraftwerk Mühleberg (KKM) eine neue Verfestigungsanlage installiert, mit welcher die Rohabfälle entwässert, getrocknet, teilweise thermolytisch zersetzt und anschliessend in 200-l-Abfallbehältern mit Zement und Zusatzstoffen verfestigt werden. Mit dieser Anlage lassen sich auch die im KKM anfallenden Schlämme konditionieren.

Die mittels der Verfestigungsanlage aus den Rohabfällen herzustellenden Abfallgebinde haben die behördlichen Anforderungen und die eines zukünftig existierenden Endlagers zu erfüllen. Zur Produktion der Gebinde ist eine behördliche Freigabe einzuholen. Während der routinemässigen Gebindeherstellung ist laufend eine Produktkontrolle durchzuführen. Dies durch stichprobenweise Auswahl von Abfallgebinden, von deren Inhalt Matrixproben entnommen oder die später einer zerstörungsfreien Prüfung zugeführt werden.

Eine wichtige Randbedingung bei der endlagergerechten Konditionierung von radioaktiven Abfällen ist die optimale Volumenausnutzung unter gleichzeitiger Einhaltung der geforderten Abfallgebindeeigenschaften.

2. Charakterisierung der Rohabfälle

Im KKM, einem Siedewasserreaktor, kommen die zwei jeweils aus einem porösen Grundgerüst auf Polystyrolbasis bestehenden Ionenaustauschertypen Pulver- und Kugelharze zum Einsatz. Kugelharze weisen einen Durchmesser von ca. 1 mm auf, bei Pulverharzen liegt die mittlere Korngröße bei ca. 40 µm. Beide Harztypen sind Mischungen aus stark sauren Kationenaustauschern und stark basischen Anionenaustauschern im Mischungsverhältnis von 1:1 bis 3:1. Die aktiven Zentren beim Kationenaustauscher bestehen aus Sulfonsäuregruppen und beim Anionenaustauscher aus quarternären Aminogruppen.

Schlämme sind Rückstände aus Absetzbehältern und Sumpfen sowie aus der Wäschezentrifuge. Sie bestehen im wesentlichen aus Sand, Staub und Korrosionsprodukten bzw. Fasern und Flusen.

Der mittlere jährliche Anfall feuchter Harze beträgt im KKM ca. 15 t mit einer spezifischen Aktivität von $10^8 - 10^{10}$ Bq/kg. Ausserdem befinden sich im Zwischenlager für radioaktive Abfälle ca. 340 t noch nicht konditionierte Harze aus früheren Betriebszyklen. Die Mengen anfallender und noch vorhandener Schlämme sind mit 0.5 t/a bzw. 6.3 t im Vergleich dazu klein. Ihre spezifische Aktivität beträgt $10^8 - 10^9$ Bq/kg.

3. Konditionierungsverfahren

Die im KKM realisierte Verfestigungsanlage arbeitet nach dem ABB-Verfahren "Cement Volume Reduction Solidification" (CVRS) und kann - jeweils als Trockensubstanz gerechnet - bis zu 300 kg Harz, Mischungen aus 270 kg Harz mit 30 kg Schlämmen oder bis zu 200 kg Schlämme je m³ Zementmatrix mit einer täglichen Produktionsrate von bis zu fünf Abfallgebinden herstellen. Mit dieser Anlage können sowohl die im laufenden Betrieb des Kraftwerks anfallende Harz- und Schlammmenge als auch die im Zwischenlager für radioaktive Abfälle in Fässern vorübergehend aufbewahrte Rohabfallmenge in endlagerfähige Produkte überführt werden.

Das Verfahren ist im in Abb. 1 gegebenen Prozessfließbild prinzipiell dargestellt. Es kann in die folgenden Teilbereiche untergliedert werden.

Abfallvorbereitung

Die im Zwischenlager gelagerten Harzfässer werden ins Aufbereitungsgebäude transportiert, dort in einer fernbedienbaren Fassentleerungsanlage geöffnet und gekippt. Die Harze werden mittels Hochdrucksprühlanzen mit Deionat aus den Fässern herausgespült und in einen, je nach Harz- bzw. Abfallart vorzuwählenden Harzabsetzbehälter überführt. Bei Harzen aus dem laufenden Betrieb des KKM entfällt dieser Schritt. Diese Harze werden separiert nach Herkunft in den Harzabsetzbehältern gesammelt und kampagnenweise konditioniert.

Die Schlammfässer werden fernbedient in eine abgeschirmte Fasskippvorrichtung eingesetzt, entdeckelt und schubweise in kleinen Schlammportionen auf einen Gitterrost entleert. Der über dem Gitterrost manuell von Fremdkörpern gereinigte Schlamm gelangt für die Weiterverarbeitung in einen Schlammvorratsbehälter, der auch zur Einstellung bestimmter Schlammparameter wie Partikelgröße, Feststoffgehalt und Aufschäumneigung dient.

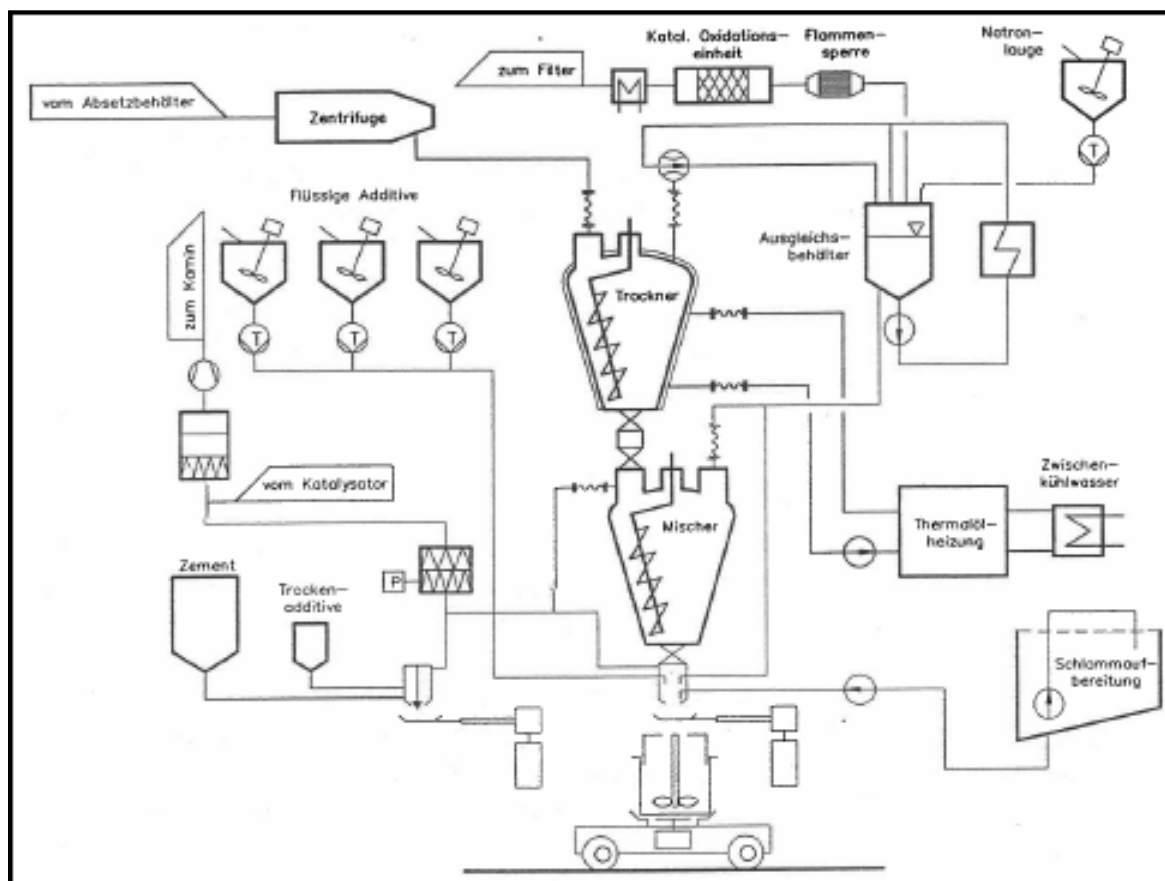


Abb. 1 Prozessfließbild der Verfestigungsanlage CVRS

Thermische Harzbehandlung

Die in den Harzabsetzbehältern vorliegenden Harzsuspensionen werden mittels einer Dekanterzentrifuge entwässert und zur anschließenden thermischen Behandlung der Harze in einen Konustrockner geleitet, dort zunächst bei 100 °C zum Entziehen der Restfeuchte getrocknet und danach bei ca. 150 °C weiterbehandelt, wodurch die Struktur der Harze durch das Abspalten von organischen Zersetzungsprodukten wie z.B. Methanol und Aminen verändert wird.

Der ausgetriebene Wasserdampf und die frei werdenden Abbauprodukte sammeln sich in einem Hilfssystem, in dem auch eine nach dem Prinzip der katalytischen Oxidation arbeitende Anlage zur Zerstörung der Zersetzungsprodukte integriert ist. Das gewonnene Kondensat wird zwischengespeichert und dient zum grössten Teil beim anschließenden Zementieren als Anmachwasser, welches in einem dem Trockner nachgeschalteten Mischer mit den behandelten Harzen vermischt wird.

Die für die thermische Harzbehandlung benötigten Anlagenteile sind mit Stickstoff inertiert.

Verfestigung

Die behandelten Harze bzw. vorbereiteten Schlämme werden in einer Abfüllstation fernbedient in standardisierte, mit integrierten Rührern versehene zylindrische 200-l-Abfallbehälter aus Edelstahl gefüllt und darin durch Beimischen von Zement und Additiven verfestigt. Ein Einfülladapter erleichtert die Behälterbefüllung unter optimaler Volumenausnutzung. Diese Adapter sowie die Rührer verbleiben in den Abfallgebinden.

Der Abfallbehälter wird auf einem Verschiebewagen zu den verschiedenen Hantierungsstationen gebracht. Der Wagen ist zusätzlich mit einer Hebevorrückung versehen, die das Andocken der Abfallbehälter an die Abfüllstation sowie an den Rührerantrieb bei der Trockendosierstation ermöglicht.

Neben dem vollautomatisierten Verschliessen der Abfallbehälter mit sogenannten Jet-ringverschlüssen kann auch fernhandelt eine Matrixprobe aus dem Fass entnommen und mit Hilfe einer Dosiervorrichtung in Probenröhrchen gefüllt sowie ein Wischtest an der Oberfläche des Abfallbehälters ausgeführt werden.

Zwischenlagerung

Die gefüllten Fässer werden mittels ferngesteuerter Transportmittel und Hebezeuge in die Lagerplätze des Zwischenlagers für radioaktive Abfälle verbracht und dort bis zu ihrem Abtransport in ein dereinst existierendes Endlager zwischengelagert.

Durch die Temperaturbehandlung kann die Beladung der Zementmatrix mit Harzen im Vergleich zu herkömmlichen Verfahren um ca. 50 % erhöht werden. Ausserdem werden auch die für die Endlagerung relevanten Produkteigenschaften der verfestigten Harze wie Druckfestigkeit und Auslaugrate sowie die Wasser- und Sulfatbeständigkeit günstig beeinflusst.

Die Verfestigungsanlage CVRS ist in das bestehende Aufbereitungsgebäude als Ersatz für eine von zwei ursprünglich installierten Zentrifugenstrassen eingebaut. Sie besteht aus übereinander angeordneten Komponenten für das Entwässern, das Trocknen und die Wärmebehandlung, das Mischen des Trockengutes mit Anmachwasser, das Dosieren der flüssigen und festen Komponenten direkt in den Abfallbehälter sowie das Homogenisieren. Die vertikale Anordnung der Komponenten erlaubt den Weitertransport der zu verfestigenden Harze von einem Prozessschritt zum nächsten bis zum Abfüllen in Fässer durch Schwerkraft.

4. Qualifizierung der Abfallprodukte

4.1 Vorgaben an die Eigenschaften der Abfallmatrix und Freigabeverfahren

In der Schweiz erteilt die Hauptabteilung für die Sicherheit der Kernanlagen (HSK) im Rahmen ihrer Aufsicht den Betreibern von Nuklearanlagen Freigaben für die Konditionierung und die Zwischenlagerung ihrer radioaktiven Abfälle. Die dafür relevanten Vorgaben sind in der HSK-Richtlinie R-14 "Konditionierung und Zwischenlagerung radioaktiver Abfälle" formuliert. Sie beinhalten verbindliche Grundsätze zu den Abfallgebinden und Konditionierungsmethoden sowie zur Produktkontrolle, Dokumentation und Qualitätssicherung.

Für die Übernahme von radioaktiven Abfällen in ein künftiges Endlager sind zusätzlich die Anforderung der Nationalen Genossenschaft für die Lagerung radioaktiver Abfälle (Nagra), d.h. deren Abnahmereglement und die vorläufigen Annahmebedingungen für endzulagernde Abfallgebände sowie die zugehörigen Ausführungsbestimmungen einzuhalten.

Entsprechend der HSK-Richtlinie R-14 sowie den von der Nagra formulierten Vorgaben bezüglich der Endlagerung haben die Abfallprodukte die Eigenschaften

- feste oder verfestigte Form,
- mindestens bis zur erfolgten Endlagerung stabil und strukturell integer,
- schwer dispergierbar,
- gegenüber wässrigen Medien resistent,
- schwer brennbar,
- möglichst geringe organische Materialanteile sowie

- keine unnötigen Leerräume

zu erfüllen. Als Verfestigungsmatrizes sind Kunststoff, Bitumen und Zement vorgesehen.

Für ausgehärtete Zementmatrizes ist gefordert, dass ihre Druckfestigkeit nach 90 Tagen mindestens einen Richtwert von 10 MPa erreicht und ihre mittleren, an ebenso lange ausgehärteten Probekörpern zu bestimmenden Auslaugraten über eine Expositionszeit von 150 Tagen sowohl für ^{60}Co als auch für ^{137}Cs je in Deionat sowie in gipsgesättigtem Wasser unter dem Erfahrungswert von $5 \mu\text{m/d}$ liegen. Zum Nachweis der Formstabilität von Zementmatrizes bei Wasserzutritt dient die an Prüfkörpern gemessene Wasser- und Sulfatbeständigkeit. Sie ist erfüllt, wenn sich die Prüfkörper nach ihrer Auslaugung von nicht ausgelaugten Referenzkörpern äusserlich in Bezug auf Form und Oberflächenstruktur qualitativ nicht unterscheiden und zusätzlich die Druckfestigkeit aufgrund der Auslaugung weder im Vergleich zu den Referenzkörpern um mehr als 30 % abfällt noch unterhalb der Mindestdruckfestigkeit liegt. Die Messmethoden stützen sich auf die Erfahrungen des Paul Scherrer Instituts (PSI), wo die Matrixparameter üblicherweise bestimmt werden.

Basierend auf einer vom Abfallverursacher zu erstellenden Spezifikation, welche das Konditionierungsverfahren sowie den Aufbau des Abfallgebindetyps beschreibt, bescheinigt die Nagra die Endlagerfähigkeit der Abfallgebinde. Ist dies erfolgt, erteilt die HSK zunächst eine provisorische Freigabe des Konditionierungsverfahrens zur Herstellung einer beschränkten Anzahl von Gebinden im Rahmen einer Typenprüfung. Ziel der Typenprüfung ist der Nachweis der Produktqualität bzw. der geforderten Produkteigenschaften und des bestimmungsgemässen Betriebs der Konditionierungsanlage. Wenn die Typenprüfung bestanden ist, erteilt die HSK die definitive Freigabe zur Produktion von Gebinden des geprüften Abfallgebindetyps.

4.2 Rezepturevaluierung und Rezepturqualifizierung

Vorgängig zum Bau der Verfestigungsanlage CVRS ist im Rahmen einer Rezepturqualifizierung anhand von Laborversuchen und Versuchen im Massstab 1:1 der Nachweis erbracht worden, dass Abfallmatrizes mit einem Harzgehalt von 300 kg Trockensubstanz je m^3 im Falle der Pulverharze sämtliche behördlichen und endlagerbedingten Anforderungen erfüllen. Basierend auf der erarbeiteten Rezeptur sind, wie aus Tab. 1 ersichtlich, auch solche für Mischungen von Pulverharzen mit Sumpfschlämmen bzw. Kugelharzen sowie reinen Kugelharzen bzw. reinen Schlämmen entwickelt worden mit dem Ziel, das endzulagernde Abfallvolumen durch Maximierung der Abfallbeladung der einzelnen Gebinde zu minimieren.

In Abb. 2 sind Abfallbeladungen verschiedener Rezepturen dargestellt. Insgesamt sind 74 verschiedene Labormischungen hergestellt worden, aus denen die für die Verfestigungsanlage CVRS am besten geeigneten ausgewählt worden sind. Dies sind 5 Rezepturen, mit denen reine Pulverharze, Mischungen von Pulverharzen mit Kugelharzen oder Schlämmen, Kugelharze sowie reine Wäschereischlämme zu verfestigen sind (s. Tab.1).

Tab. 1 Qualifizierte Rezepturen; Abfallbeladung als Trockensubstanz in der Abfallmatrix

Abfallart	Rezeptur	Abfallbeladung [kg/m^3]
Pulverharz	T11	300
Pulverharz / Sumpfschlämme	T12	275 / 25
Pulverharz / Kugelharz	T13	225 / 75
Kugelharz	T14	280
Wäschereischlamm	T15	125 - 200

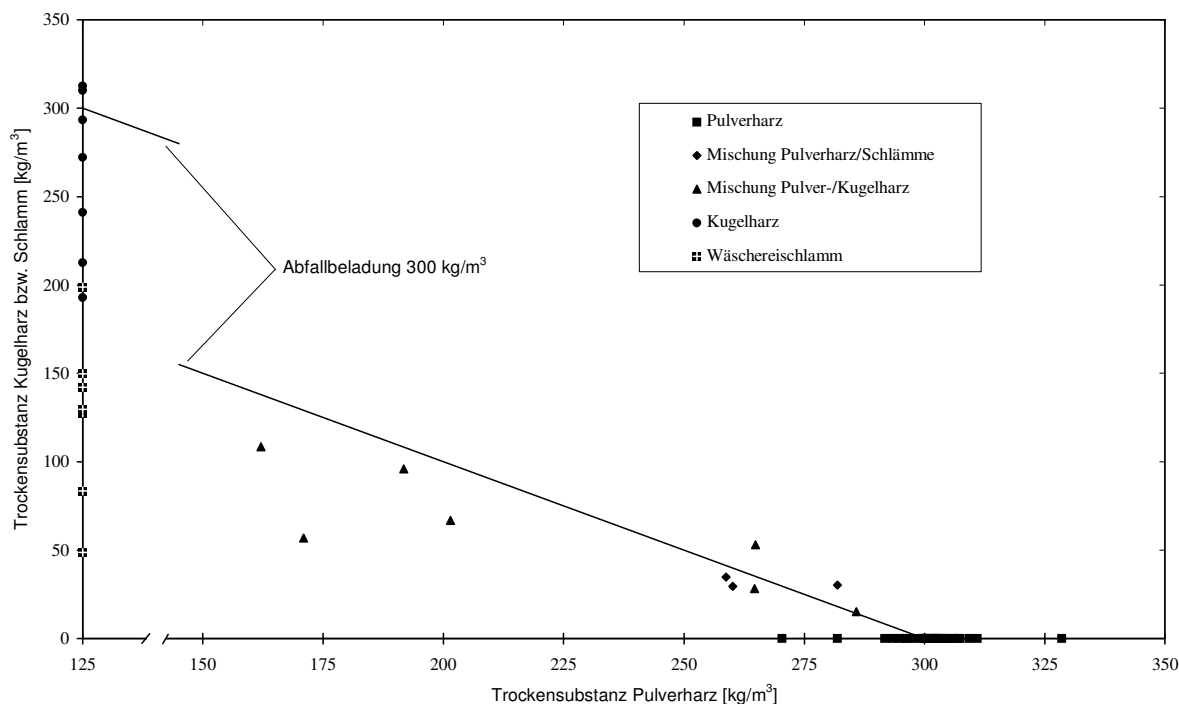


Abb. 2 Abfallbelastung verschiedener, im Labormassstab geprüfter Rezepturen. Neben den Anforderungen an die Abfallmatrix (s. Kap. 4.1) gilt für reine Pulverharze sowie deren Mischungen eine anzustrebende Abfallbelastung von 300 kg/m^3 als weitere Randbedingung.

4.3 Typenprüfung

Für die Konditionierung der in Tab. 1 aufgeführten Abfallarten sind insgesamt sechs Abfallgebindedtypenspezifikationen erarbeitet worden. Die Endlagerfähigkeit ist bescheinigt und die provisorische Typenfreigabe erteilt.

Im Rahmen der Typenprüfung ist mittels Testläufen mit inaktiven Pulver- und Kugelharzen der Nachweis der Produktqualität und des bestimmungsgemässen Betriebs der Verfestigungsanlage CVRS erbracht worden. Dazu wurden 20 Fässer mit Pulverharzen und 3 Fässer mit reinen Kugelharzen hergestellt.

Der Nachweis der Produktqualität stützt sich auf die Ergebnisse von Druckfestigkeitsmessungen an Matrixproben [nach 90 Tagen Aushärzeit](#), zerstörungsfreien Prüfungen an der Oberfläche von ausgehärteten Abfallprodukten - bestehend aus einer visuellen Beurteilung der Oberflächenbeschaffenheit sowie einer Eindringprüfung mittels einer wohldefinierten Nagelspitze - und der Beurteilung der Homogenität der Matrix anhand von aufgeschnittenen Abfallgebinden. Wie Abb. 3 zeigt, wird das gesamte nutzbare Volumen der Fässer gleichmässig mit homogen gemischter Abfallmatrix gefüllt.

**Abb. 3**

Mit der Verfestigungsanlage CVRS hergestelltes, aufgeschnittenes Gebinde mit inaktiven Pulverharzen. Schnitt durch Rührerwelle und Achsen der Rührerflügel. Vorne Fassöffnung ohne Deckel, mit eingedrücktem Adapter.

Im Anschluss an die inaktive Testphase sind unter realen Bedingungen für jede der 5 Rezepturen aktive Gebinde hergestellt worden. Dies waren 63 Fässer mit reinen Pulverharzen, 4 Fässer mit Kugelharzen, 7 Fässer mit Pulverharz-Kugelharz-Mischung, 5 Fässer mit der Mischung von Pulverharz mit Sumpfschlämmen und 5 Fässer mit Wäschereischlamm.

Durch eine zerstörungsfreie Prüfung an den ausgehärteten Abfallgebänden und Druckfestigkeitsmessungen anhand von Probekörpern konnte eine ausreichende Festigkeit sowie die Vergleichbarkeit mit den Ergebnissen der Rezepturqualifizierung nachgewiesen werden. Exemplarisch ist in Abb. 4 ist der Zusammenhang zwischen der Druckfestigkeit und der Matrixdichte aufgezeigt. Sowohl die Messungen aus der Rezepturqualifizierung als auch die an allen 80 bisher entnommenen Proben sind aufgetragen. Die Übereinstimmung der Ergebnisse - mit Ausnahme der für Kugelharze (Rezeptur T14) - ist ersichtlich. Der Einfluss einer zusätzlichen Erschöpfung der Kationenaustauscher mit Kalkmilch (s.u.) ist an der zunehmenden Dichte und Druckfestigkeit der Proben der Rezeptur T11 zu erkennen.

Die übrigen Matrixparameter, deren Ermittlung bis zu 240 Tage erfordert, werden im Rahmen der produktionsbegleitenden Produktkontrolle bestimmt.

4.4 Produktkontrolle

Zum Nachweis, dass die Abfallmatrix und damit die hergestellten Abfallgebände die geforderten Eigenschaften aufweisen, wird stichprobenweise die Qualität der hergestellten Gebinde beurteilt. Dazu werden aus der laufenden Produktion Abfallgebände ausgewählt, von deren Inhalt eine Probe entnommen wird oder die einer späteren zerstörungsfreien Prüfung zugeführt werden.

Entnommene Matrixproben werden auf die Parameter Druckfestigkeit, Wasser- und Sulfatbeständigkeit sowie auf Auslaugraten untersucht. Dabei beträgt aufgrund des vorgeschriebenen Messverfahrens die Zeitspanne zwischen der Probenahme und dem Vorliegen der Untersuchungsergebnisse mindestens 9 Monate.

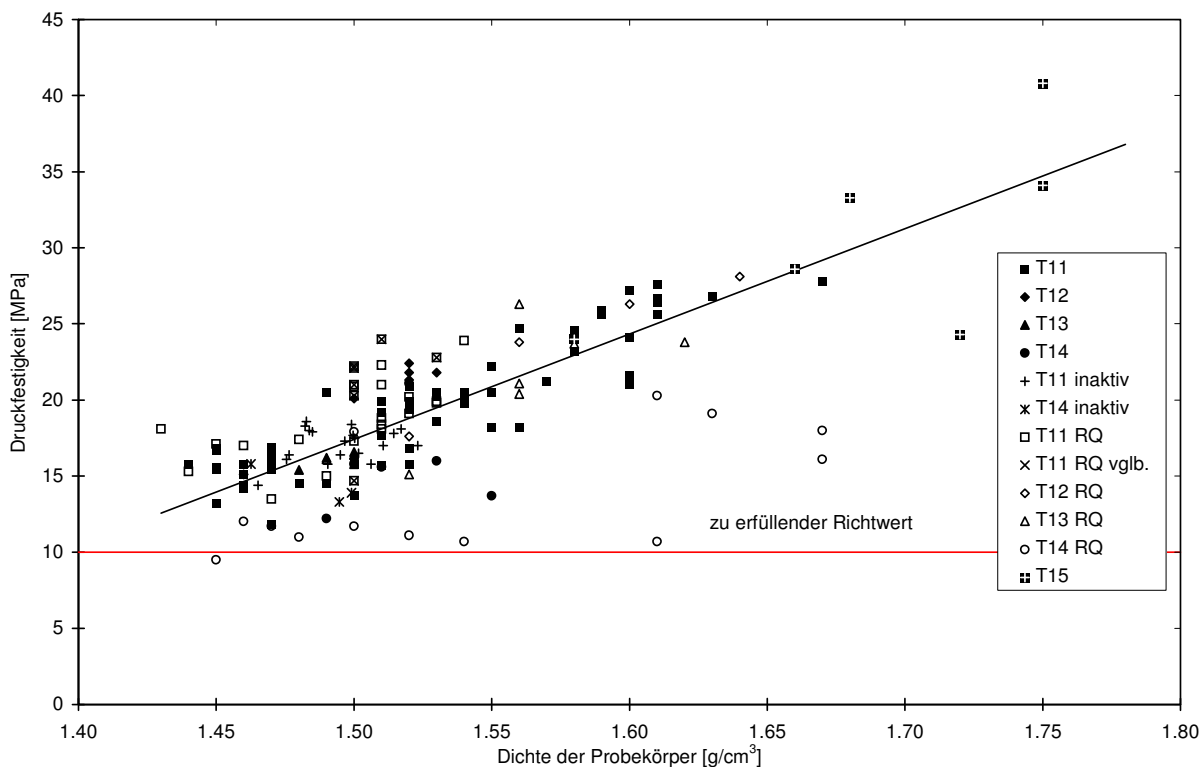


Abb. 4 Druckfestigkeit der Probekörper nach 90 Tagen Aushärtzeit. Mit Ausnahme der Rezeptur T14 (Kugelharze) stimmen die Ergebnisse der Rezepturqualifizierung (RQ) mit den gemessenen Eigenschaften der mit der Verfestigungsanlage CVRS hergestellten Abfallmatrizes überein. Die Rezepturen der RQ, welche eine mit der verwendeten Rezeptur T11 direkt vergleichbare Zusammensetzung haben, sind gekennzeichnet (vglb.). Bei der Berechnung der Regressionsgeraden ist die Rezepturqualifizierung nicht berücksichtigt.

5. Erfahrungen beim Betrieb der Verfestigungsanlage CVRS

Seit Anfang 1996 wird die Verfestigungsanlage CVRS erfolgreich betrieben. Die Herstellung der bisher produzierten Abfallgebände ist routinemässig und im wesentlichen ohne Probleme erfolgt.

Während der Typenprüfung war bei einigen Gebänden festzustellen, dass sich der Füllstand nach Beenden des Rührens durch Nachquellen der Abfallmatrix erhöht, was zur Folge hat, dass die maximale Füllhöhe vermindert werden muss. Eine mögliche Ursache ist, dass die während der Wärmebehandlung gebildeten, leichtflüchtigen Amine auf den nur teilweise beladenen Kationenaustauschern gebunden und beim anschliessenden Verfestigungsprozess im, bedingt durch die Zementzugabe, alkalischen Medium wieder freigesetzt werden. Bei der Rezepturqualifizierung sowie bei den inaktiven 1:1-Versuchen ist dieses Quellen nicht beobachtet worden. Dies könnte dadurch zu erklären sein, dass dort eine definierte ionale Erschöpfung der Harze von 25 % ihrer Kapazität vorgelegen hat, Betriebsharze jedoch zum Teil wesentlich weniger erschöpft sind.

Aus diesem Grund ist bereits während der Typenprüfung bei 13 Fässern die Erschöpfung der Kationenaustauscher durch Zugabe von Kalkmilch erhöht worden. Durch diese Massnahme konnte das Quellen reduziert werden. Ein Kalküberschuss kann allerdings sowohl zur Bildung von Kesselstein als auch zur Freisetzung der auf den Kationenaustauschern gebundenen Aktivität führen. Um das Verhalten der Harze zu verifizieren sowie um zu ermitteln, welche Menge Kalkmilch an welcher Stelle des Prozesses einzusetzen ist, sind im Anschluss an die

Typenprüfung im ersten Halbjahr 1996 von insgesamt 158 hergestellten Gebinden 121 mit Pulverharzen unter Zugabe unterschiedlicher Mengen Kalkmilch produziert worden. Die Calciummenge je Abfallgebilde betrug dabei bis zu 4.5 kg, die entsprechende ionale Erschöpfung der Kationenaustauscher lag zwischen 5 % und 100 %.

Bei einigen Proben der während der Typenprüfung hergestellten Gebinde (vor allem bei solchen mit reinen Pulverharzen) hat sich gezeigt, dass der im Rahmen der Produktkontrolle bestimmte Parameter Wasserbeständigkeit nicht erfüllt war. Um dem Abfall der Wasserbeständigkeit entgegenzuwirken, waren Korrekturmaßnahmen zu ergreifen. Es wurde angestrebt, die Matrixdichte zu erhöhen und das Wasser-Zement-Verhältnis zu reduzieren. Wie die Versuche mit Kalkmilch zeigen, kann die Matrixdichte und damit die Druckfestigkeit durch eine zusätzliche ionale Beladung der Kationenaustauscher signifikant erhöht werden (vgl. Abb. 5). Überlegungen zur Reduktion des Wasser-Zement-Verhältnisses führten dazu, alternativ zum Calcium einen anderen Stoff - bevorzugt ebenfalls ein Erdalkalielement - zur ionalen Erschöpfung der Ionenaustauscher einzusetzen. Durch die Verwendung von Barium war zu erwarten, dass das Harzvolumen stärker schrumpft und der Wasserbedarf der Abfallmatrix sich dadurch weiter verringert.

In einem Prozessoptimierungsschritt wurden weitere 62 Abfallgebilde produziert, wobei die Kalkmilch teilweise durch Barytwasser ersetzt worden ist. In Abb. 5 ist der Einfluss der zusätzlichen Erschöpfung der Harze durch Calcium- bzw. Bariumionen auf das Verhältnis von Wasser zu Zement und die Abfallmatrixdichte dargestellt. Der Volumeneffekt, d.h. die Dichtezunahme bei gleichzeitiger Abnahme des Wasser-Zement-Verhältnisses, durch Kalkmilch- und noch verstärkt durch Barytwasserzugabe ist deutlich zu erkennen.

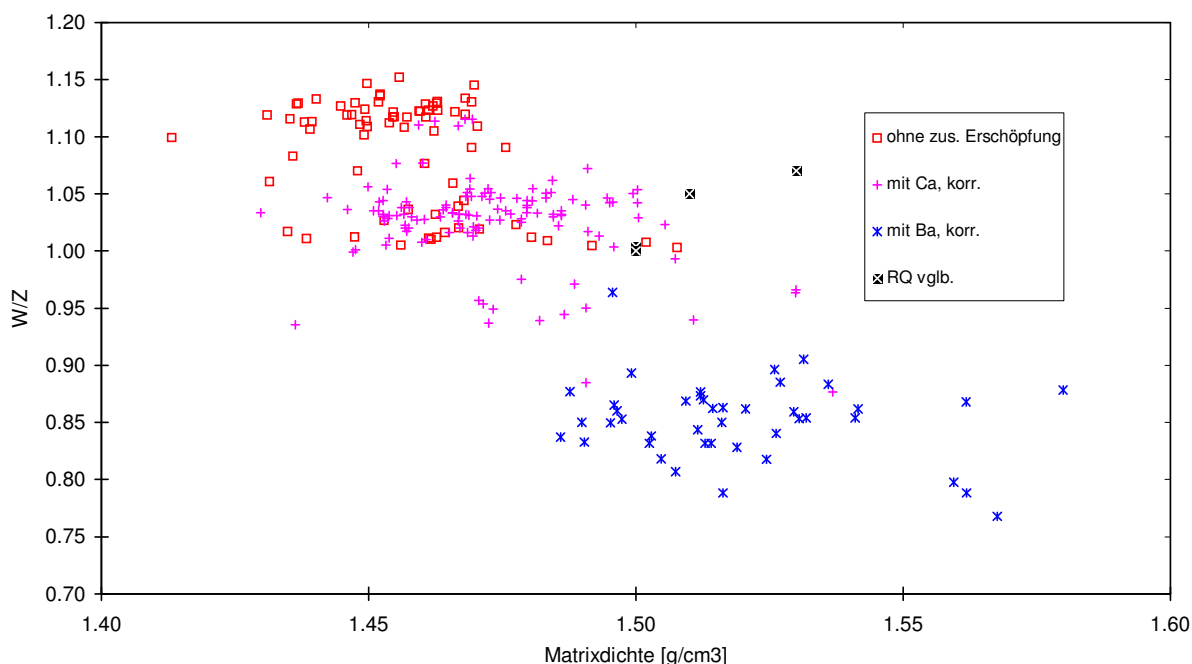


Abb. 5 Fässer mit reinen Pulverharzen, verfestigt nach der Rezeptur T11. Durch Kalkmilch- und verstärkt durch Barytwasserzugabe erhöht sich die Matrixdichte und verringert sich das Wasser-Zement-Verhältnis W/Z. Bei der Dichteberechnung ist zur deutlicheren Hervorhebung des reinen Volumeneffekts die Masse der Calcium- bzw. Bariumionen nicht berücksichtigt. Ergänzend sind die vergleichbaren Werte der Rezepturqualifizierung (RQ) aufgeführt.

Erste Ergebnisse aus diesen Versuchen zeigen, dass mit dem Ersetzen von Calcium durch Barium die Harze besser zu erschöpfen sind, die Aushärtung der Matrix nicht - wie teilweise mit Calcium beobachtet - zeitlich verzögert wird und eine um 15 bis 20 % höhere Zementzugabe möglich ist. Zur Bestimmung der Matrixeigenschaften sind von 20 Gebinden Matrixpro-

ben entnommen. Die als Voraussetzung für eine definitive behördliche Produktionsfreigabe benötigten abschliessenden Ergebnisse der Untersuchung dieser Proben werden allerdings erst Ende Juli 1997 vorliegen.

6. Bisherige Betriebsergebnisse

Mit der Verfestigungsanlage CVRS ist es möglich, die im KKM anfallenden und die bereits vorhandenen Harze und Schlämme mittels eines routinemässig zu betreibenden Verfahrens endlagergerecht zu konditionieren. Durch die Vorbehandlung der Harze ist die Beladung der Zementmatrix mit Abfällen im Vergleich zu herkömmlichen Zement-Verfahren um ca. 50 % erhöht¹. Da der feuchte Rohabfall, bedingt durch seine Schüttdichte, ein grösseres Volumen einnimmt als die hergestellte Abfallmatrix, kommt es durch die Konditionierung der Harze mit der Verfestigungsanlage CVRS trotz Zementierung sogar zu einer leichten Volumenreduktion. Sie beträgt ca. 10 %.

Insgesamt sind, wie aus Abb. 6 ersichtlich, bisher 304 Abfallgebilde hergestellt. Davon enthalten 241 reines Pulverharz (Rezeptur T11), 9 reines Kugelharz (T14) und 42 ausschliesslich Wäschereischlamm (T15) als Rohabfall. Bei 7 Gebinden setzt sich der Rohabfall aus einer Pulverharz-Kugelharz-Mischung zusammen (T13) und 5 Fässer enthalten eine Mischung aus Pulverharz mit Sumpfschlämmen (T12).

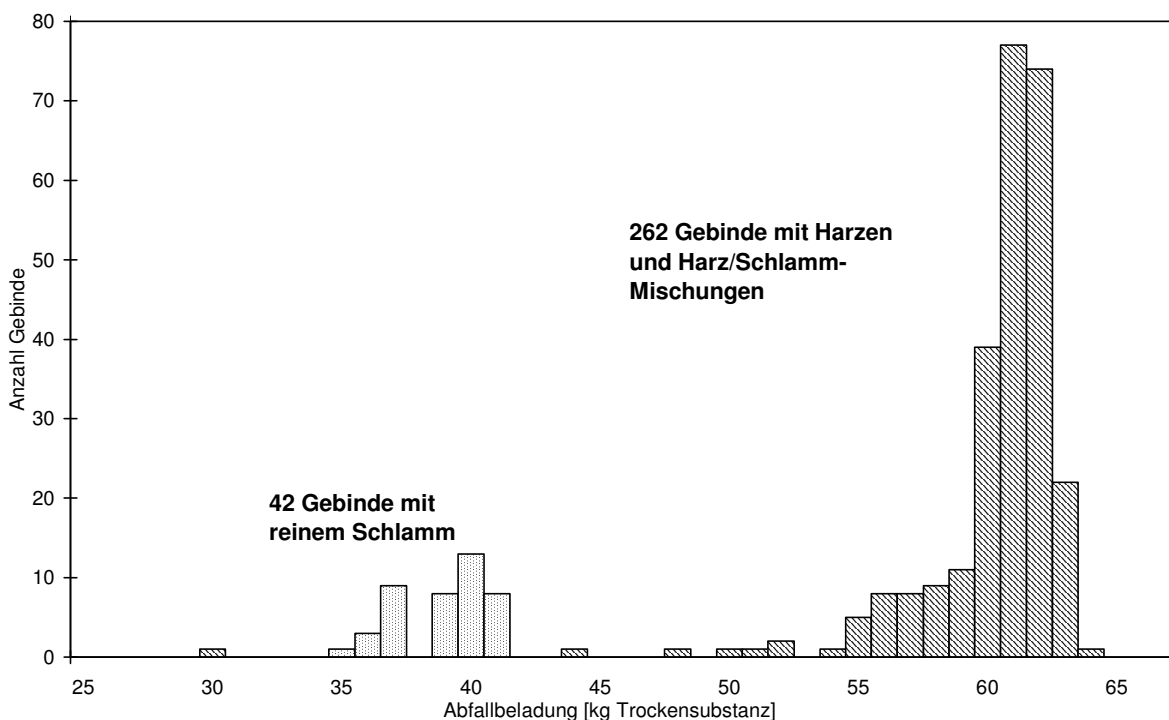


Abb. 6 Beladung der bisher hergestellten Abfallgebilde mit Rohabfall (Stand Ende 1996)
Die mittlere Oberflächendosisleistung der bisher produzierten Gebilde beträgt bei den Harzen ca. 20 mSv/h und bei den Schlämmen ca. 0.5 mSv/h.

Die bisherigen Erfahrungen zeigen, dass eine zusätzliche Erschöpfung der Kationenaustauscher notwendig ist, damit die Matrixeigenschaften allen Anforderungen genügen. Die ab-

¹Ohne Einbindung der Harze in eine Zementmatrix könnte durch ein leistungsfähiges Verfahren - wie z.B. das Heiss-Hochdruckverfahren, welches im Kernkraftwerk Philippsburg zum Einsatz kommt - mit umgerechnet ca. 120 kg Trockensubstanz je 200-Liter-Gebinde etwa eine Verdoppelung der Harzbeladung erreicht werden (s. Trummer, L. et al.). Solche Verfahren sind aufgrund der Anforderungen an die Abfallmatrix (s. Kap. 4.1) in der Schweiz jedoch nicht anwendbar.

schliessenden Ergebnisse der Untersuchungen an den Matrixproben werden im Laufe des Jahres 1997 vorliegen. Es kann aber bereits heute abgeschätzt werden, dass mit der Zugabe von Kalkmilch oder Barytwasser die Abfallmatrix so beeinflusst wird, dass sie die geforderten Parameter erfüllt.

Abb. 6 zeigt die Abfallbeladung der hergestellten Abfallgebände. Zur Darstellung der reinen Abfallbeladung ist bei den betroffenen Gebänden die Masse der Calcium- bzw. Bariumionen, die zur Erschöpfung der Kationenaustauscher eingesetzt worden sind, nicht berücksichtigt.

Die erreichte Abfallbeladung für Harze und Schlämme beträgt im Mittel 283 bzw. 183 kg trockene Abfallsubstanz je m³ endzulagerndes Volumen oder 299 bzw. 193 kg je m³ Abfallmatrix, was mit den angestrebten Werten von 300 bzw. 200 kg je m³ Matrix sehr gut übereinstimmt.

7. Schlussbemerkung

Das in der HSK-Richtlinie R-14 geforderte Verfahren zur Bestimmung der endlagerrelevanten Eigenschaften im Rahmen einer Typenprüfung hat sich als praktikabel erwiesen und ist grundsätzlich bewährt. Bei der Inbetriebnahme der Verfestigungsanlage CVRS hat sich jedoch gezeigt, dass bei freigabepflichtigen Verfahrensanpassungen der Zeitbedarf für die Bestimmung der Parameter, welche für die Langzeitsicherheit eines Endlagers von Bedeutung sind, so gross ist, dass der bestimmungsgemässe Betrieb der Anlage stark verzögert werden kann. Für solche Fälle sollten weniger zeitaufwendige Prüfmethode gefunden werden.

Literatur

Christensen, H.; Torstenfelt, B.: Volume Reduction and Cement Solidification of Radioactive Waste. International Symposium on management of low- and intermediate-level radioactive waste, Stockholm 16.-20. May 1988

HSK: Konditionierung und Zwischenlagerung radioaktiver Abfälle. Richtlinie für Kernanlagen R-14. HSK Dez. 1988

Nagra: Reglement über das Verfahren zur Übernahme radioaktiver Abfälle für die Endlagerung ("Abnahmereglement"). Nagra, Wetztingen 29.06.1992

Nagra: Endlager für kurzlebige schwach- und mittelaktive Abfälle (Endlager SMA) - Bericht zur Langzeitsicherheit des Endlagers SMA am Standort Wellenberg (Gemeinde Wolfenschiessen, NW). Nagra Technischer Bericht NTB 94-06. Nagra, Wetztingen Juni 1994

Nagra: Endlager SMA: Vorläufige Annahmebedingungen für endzulagernde Abfallgebände. Nagra, Wetztingen Jan. 1994

Nagra: Ausführungsbestimmungen - Verfahren zur (provisorischen) Endlagerfähigkeitsbescheinigung (ELFB- und pELFB-Verfahren). Nagra, Wetztingen 10.12.1996

Trummer, L.; Schürch, E.; von Gunten, A.; Grundke, E.; Harrass, H.: Behandlung von radioaktiven Harzen in den Kernkraftwerken Mühleberg und Philippsburg. SVA-Vertiefungskurs, Bewirtschaftung radioaktiver Betriebsabfälle aus Kernkraftwerken, Brugg-Windisch 27.-29. März 1996