



KERNFORSCHUNGSANLAGE JÜLICH GmbH

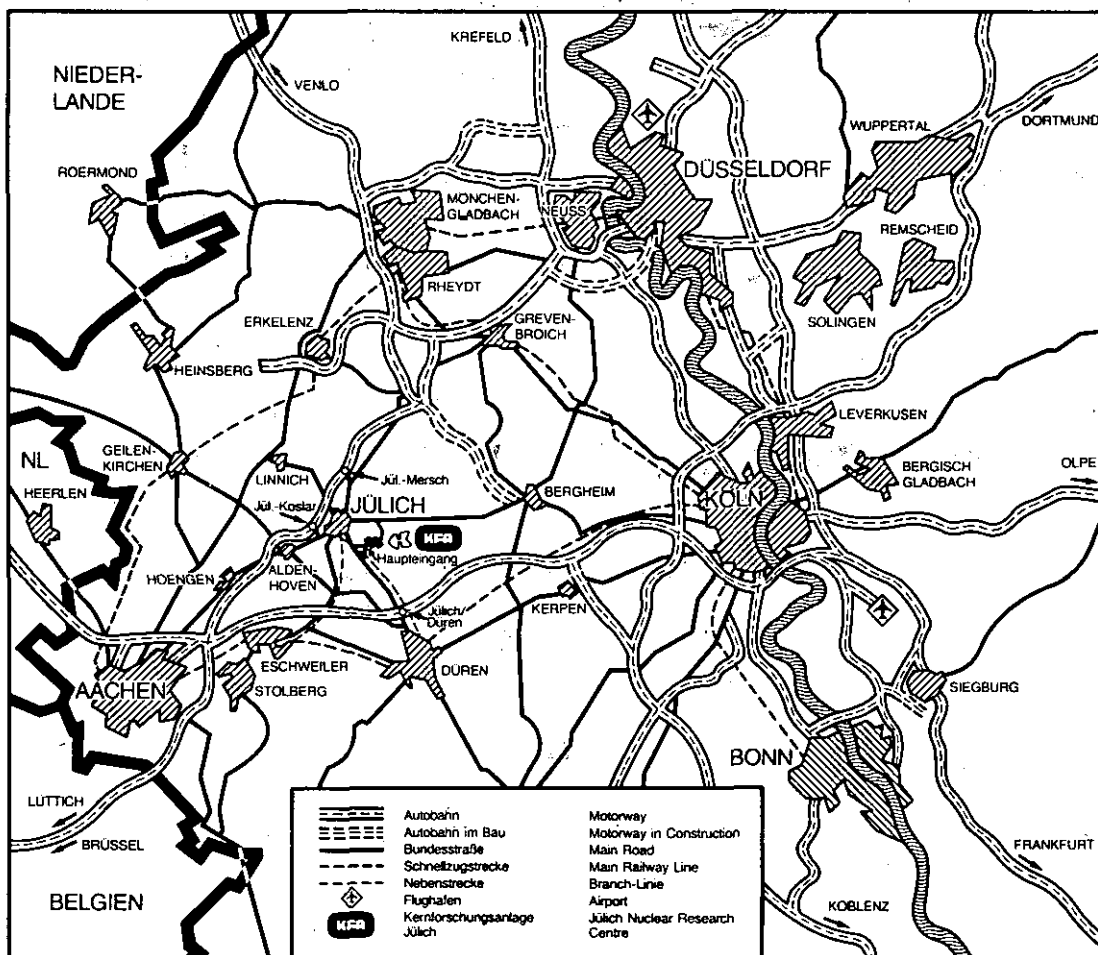
Programmgruppe Kernenergie und Umwelt

Die Wiederaufarbeitung von Kernbrennstoffen

von

E. Merz, M. Paschke, E. Pohlen, E. Zimmer,
G. Baumgärtel, Chr. Brückner, H. Stöber und
K. L. Huppert

Jül - Spez - 207
Mai 1983
ISSN 0343 - 7639



Als Manuskript gedruckt

Spezielle Berichte der Kernforschungsanlage Jülich – Nr. 207

Programmgruppe Kernenergie und Umwelt Jülich - Spez - 207

Zu beziehen durch: ZENTRALBIBLIOTHEK der Kernforschungsanlage Jülich GmbH

Postfach 1913 · D-5170 Jülich (Bundesrepublik Deutschland)

Telefon: 02461/610 · Telex: 833556-0 kf d

Die Wiederaufarbeitung von Kernbrennstoffen

von

E. Merz, M. Paschke, E. Pohlen, E. Zimmer
Kernforschungsanlage Jülich GmbH, Jülich

G. Baumgärtel, Chr. Brückner, H. Stöber
Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH, Karlsruhe

K. L. Huppert
Deutsche Gesellschaft für Wiederaufarbeitung
von Kernbrennstoffen mbH, Hannover

Inhaltsverzeichnis

	Seite
Vorwort	1
1. Einleitung	2
2. Technische Stufen der Wiederaufarbeitung	6
2.1 Einführung	6
2.2 Brennelementempfang und Pufferlager für Brennelemente	6
2.3 Zerkleinern der Brennelemente	8
2.4 Auflösung des Brennstoffs	9
2.5 Extraktion	12
2.6 Abgasbehandlung	23
2.7 Abfallbehandlung	26
2.8 Mischoxidbrennstoff-Herstellung	33
3. Betriebserfahrungen von Wiederaufarbeitungsanlagen	35
4. Betriebsstörungen und Störfälle in Wiederaufarbeitungsanlagen	41
4.1 Kritikalitätssicherheit	41
4.2 Die Vermeidung von Bränden und Explosionen	43
5. Übergreifende Aspekte	47
5.1 Kernmaterialüberwachung in Wiederaufarbeitungsanlagen	47
5.2 Arbeitsschutz bei Betrieb und Instandhaltung	52
5.3 Radioökologie bei einer Wiederaufarbeitungsanlage	54
5.4 Endlagerung	58
6. Entwicklungschancen des PUREX-Prozesses, Optimierung und neue Wege	63
Anhang:	
Fachwörter-Erläuterungen	68
Maßeinheiten	72
Literatur	73

Vorwort

Zielsetzung der vorliegenden Expertise ist der Versuch, die in den vergangenen Jahren erschienenen zahlreichen widersprüchlichen Darstellungen um das Für und Wider einer baldigen Entsorgung deutscher Kernkraftwerke über eine Wiederaufarbeitung nach dem sogenannten PUREX-Prinzip objektiv zu analysieren. Zweifel an der technischen Machbarkeit werden von den Kernenergiegegnern energisch vorgetragen.

Den eigentlichen Anstoß lieferte die Enquête-Kommission "Zukünftige Kernenergiepolitik" des 8. Deutschen Bundestages, die in ihrem Abschlußbericht vom 27. Juni 1980 auch Empfehlungen zum weiteren Vorgehen in Sachen Errichtung einer Demonstrations-Wiederaufarbeitungsanlage abgegeben hat /1/. Im Auftrage des Bundesministers für Forschung und Technologie fertigte daraufhin Professor Wolf Häfele eine Studie zur zweckmäßigen Größe einer Demonstrations-Wiederaufarbeitungsanlage an /2/, die vom Ausschuß für Forschung und Technologie des Deutschen Bundestages in dessen Sitzung am 07. Dezember 1981 gutgeheißen wurde /3/.

Mit der Veröffentlichung der genannten Ausarbeitung setzte bald darauf eine lebhaftere Auseinandersetzung um Inhalt und Aussage des "Häfele-Papiers" ein. Entgegnungen und eigenständige Stellungnahmen wurden verfaßt, jedoch nur teilweise einer breiteren Öffentlichkeit zugänglich gemacht /4,5/.

1. Einleitung

In der öffentlichen Auseinandersetzung um die zukünftige Kernenergie-Politik in der Bundesrepublik Deutschland hat die Frage nach der Entsorgung der Kernkraftwerke mehr und mehr eine zentrale Bedeutung erlangt. Dabei spürt man eine emotional geführte Argumentation in beiden Lagern der Pro- und Contra-Seite. Die aufgeworfenen Fragen sind vielschichtig. Die am häufigsten genannten lauten etwa folgendermaßen:

- Macht eine Wiederaufarbeitung überhaupt einen Sinn, vor allem in wirtschaftlicher Hinsicht?
- Welche Mengen an abgebrannten Brennelementen fallen an, und wie groß wählt man zweckmäßigerweise eine Anlagenkapazität aus?
- Welche Techniken sind verfügbar?
- Sind sie überhaupt sicherheitstechnisch beherrschbar?
- Verursacht die Wiederaufarbeitung schädliche Umwelteinflüsse; fördert sie die Gefahr der Atomwaffenherstellung und ihres Einsatzes?
- Wohin mit dem radioaktiven Abfall?

Die Flut an Aufklärungsschriften und Stellungnahmen hält weiter an. Für den unvoreingenommenen Bürger muß das Hin und Her mit Gutachten, Gegengutachten und nachfolgenden Erwiderungen unweigerlich zu einer Verunsicherung führen. Wem soll er glauben bei der Vielfalt von Meinungen und kontrovers dargestellten Sachverhalten?

Notwendigkeit der Wiederaufarbeitung

Der zweifellos wichtigste Fragenkomplex einer zweckmäßigen Entsorgung gilt der Wiederaufarbeitung. Die dem Kernreaktor entnommenen Brennelemente enthalten neben den Spaltprodukten noch um die 95 % an Wertstoffen, die sich einmal aus dem unverbrauchten Uran-235, dem im Reaktor erbrüteten Plutonium und zum anderen aus dem noch nicht umgesetzten Brutstoff Uran-238 zusammensetzen. Bei den heutigen Leichtwasserreaktoren wird mehr Spaltstoff verbraucht als gleichzeitig erbrütet werden kann. Der Nachschub an Spaltstoff stammt aus dem im Natururan zu 0,72 % enthaltenen Isotop U-235. Künftige Brutreaktoren hingegen ermöglichen Brutfaktoren über eins und schaffen damit eine nahezu

vollständige Ausnutzung des gesamten Brutstoffs U-238 zur Energieerzeugung.

Sinn und Zweck einer Wiederaufarbeitung liegen in einer langfristigen Energierohstoff-Sicherstellung. Selbst wenn heute noch kein Nettogewinn durch Wiederaufarbeitung und Spaltstoffrezyklierung gegenüber der direkten Entsorgung ohne Wiederaufarbeitung herauspringt, sollte sie nicht unnötig lange aufgeschoben werden, um einer Rohstoffvergeudung entgegen zu wirken. Die auch bei Leichtwasserreaktoren bereits jetzt erreichbare Natururaneinsparung ist im Hinblick auf eine verminderte Umweltbelastung in den Uranabbaugebieten und eine weltumfassenden Ressourcenschonung ein gewichtiger Faktor. Dabei spielt die immer wieder hochgespielte Frage nach dem Prozentsatz schon erzielter oder in Zukunft mit LWR-Hochkonvertern erzielbarer Natururaneinsparungen eine untergeordnete Rolle. Die gewählten Randbedingungen legen Bandbreiten von minimal 15 % bis zu 40 % und sogar darüber hinaus fest.

Unstrittig ist auch die Erkenntnis, daß die Verwirklichung fortgeschrittener Reaktorlinien, vor allem des Schnellen Brütters, mit der Beherrschung der Wiederaufarbeitung im industriellen Maßstab steht und fällt. Die Gewinnchancen lohnen den Einsatz. Uneinigkeit besteht nicht hinsichtlich des Befundes, allerdings über das Wollen im Grundsätzlichen umso mehr. Das hauptsächliche Stichwort dagegen ist die mit einer "Plutoniumwirtschaft" verbundene Gefahr eines Polizeistaates. Obwohl die Stichhaltigkeit der Argumente wiederholt widerlegt wurde, gehen die Kampagnen unvermindert weiter.

Direkte Endlagerung

Die direkte Endlagerung, bei der die abgebrannten Brennelemente nach geeigneter Konditionierung nicht rückholbar in das Endlager eingebracht werden sollen, wird zur Zeit als mögliche Alternative oder Ergänzung zur Entsorgung mit Wiederaufarbeitung analysiert. Es ist nach dem heutigen Erkenntnisstand davon auszugehen, daß sich auch diese Entsorgungsmöglichkeit sicherheitstechnisch realisieren läßt.

Berücksichtigt man jedoch beim Vergleich dieser beiden Entsorgungsmöglichkeiten die langfristige Verknappung der Kernbrennstoffe, so hat hier unter dem Aspekt der nationalen Energiesicherung die direkte Endlagerung eindeutige Nachteile, da eine Verteuerung der Brennstoffpreise abzusehen ist.

Als nachteilig für Non-Proliferationsüberlegungen wird sich bei der großtechnischen Einführung der direkten Endlagerung die Ansammlung von großen Mengen an Kernmaterial ergeben. Fragen nach der Überwachung dieses Kernmaterials durch internationale Organisationen lassen auch hier Probleme erwarten.

Überlegungen dieser Art lassen Zweifel an einer großtechnischen Realisierung dieser Entsorgungsmöglichkeit aufkommen. Als Ergänzung zur Entsorgung mit Wiederaufarbeitung wird sie jedoch für eine kleinere Anzahl von abgebrannten Brennelementen aus speziellen Reaktorprogrammen eine Rolle spielen können.

Zwischenlagerung

Da derzeit nicht genügend Wiederaufarbeitungs-Kapazität in der Bundesrepublik Deutschland verfügbar ist, ergibt sich die Notwendigkeit der Zwischenlagerung /6/. Dafür bieten sich zwei unterschiedliche technische Lösungen an: Naß- und Trockenlager. Mißt man der inhärent sicheren Abfuhr der Nachzerfallswärme ein großes Gewicht bei, ist die Trockenlagerung vorzuziehen.

Rückholbare Endlagerung untertage ist gemeint als rückholbare Untertage-Lagerung für den Fall, daß Wiederaufarbeitung und Spaltstoffrückführung wirtschaftlich attraktiv werden. Im Lichte solcher Überlegungen sollte besser eine gegen EVA-geschützte oberirdische Zwischenlagerung ins Auge gefaßt werden (EVA=Einwirkung von außen).

Kapazität einer Wiederaufarbeitungsanlage

Fast jede Schrift, die sich mit Entsorgung bzw. Wiederaufarbeitung befaßt, wird mit Prognosen der künftigen Kernenergieentwicklung und ihres Einsatzes eingeleitet. Meist folgen ausführliche Abhandlungen über den zu erwartenden Stromeinsatz, über mögliche Ölsubstitution durch Kernenergie sowie über alternative Energiepfade. Dasselbe trifft für offizielle und offiziöse Gutachten und Stellungnahmen zu. Manchmal drängt sich der Eindruck auf, als handle es sich bei diesen Dingen um den Kernpunkt der Entsorgungstechnik, so ausführlich wird zu Fragen der Volkswirtschaft, Wirtschaftspolitik, Ökologie und Soziologie Stellung genommen.

Die Bedeutung derartiger Einflüsse steht außer Zweifel, irritierend wirken

sie in ihrer Umfänglichkeit in zahlreichen Auslassungen zum Stande der Wiederaufarbeitungstechnologie. In den meisten Fällen genügt der Nachweis, daß Wiederaufarbeitung energiepolitisch sinnvoll ist und zu ihrer operativen Wahrnehmung eine Kapazität einer unschwer festzulegenden Bandbreite gebraucht wird, zumal es bei der Erstanlage um eine solche mit Demonstrationscharakter geht. Dazu bedarf es für eine erste Näherung auch keiner aufwendigen Systemanalyse.

Durch den Beschluß der Regierungschefs von Bund und Ländern vom 28. September 1979 /7/ ist sichergestellt, daß der nach der Novelle zum Atomgesetz von 1976 geforderte Entsorgungsnachweis vor Erteilung einer Betriebsgenehmigung für ein Kernkraftwerk unabhängig von der Kapazität einer Wiederaufarbeitungsanlage geführt werden kann. Dennoch sollten bei der Entscheidung über die Größe einer Wiederaufarbeitungsanlage Entsorgungserfordernisse berücksichtigt werden.

2. Technische Stufen der Wiederaufarbeitung

2.1 Einführung

Die Wiederaufarbeitung von LWR-Brennstoff läuft im Prinzip nach dem folgenden Schema ab:

In der Eingangsstufe, dem sogenannten Head-End, werden die Brennelemente zerlegt und zerkleinert. Anschließend wird der bestrahlte Brennstoff mit siedender Salpetersäure aus den Hülssen herausgelöst. Die aus Zircaloy oder Edelstahl bestehenden Brennstoffhülssen widerstehen dem Säureangriff und gelangen nach Spülung zur Abfallbehandlung. Gasförmige Schadstoffe und Aerosole, die beim Zerschneiden und beim Auflösen des Brennstoffs freiwerden, durchlaufen eine Abgasreinigungsstrecke.

Die geklärte salpetersaure Lösung durchläuft nun eine Folge von chemischen Trennprozessen. Diese Prozesse haben zum einen die Aufgabe, die störenden Spaltprodukte und Aktinidenelemente von den Wertstoffen Uran und Plutonium sauber abzutrennen, damit sie anschliessend in auslaugungsresistente Produkte für eine Endlagerung überführt werden können. Zum anderen haben sie die Aufgabe, den Uran/Plutoniumstrom chemisch aufzutrennen und jedes der beiden Rohprodukte einer Feinreinigung zu unterziehen.

2.2 Brennelementempfang und Pufferlager für Brennelemente

Die Brennelemente, die zur Wiederaufarbeitung gelangen, werden vom Kernkraftwerk oder aus einem Zwischenlager in Transportbehältern an der Wiederaufarbeitungsanlage angeliefert. Die Transportbehälter dienen während des Transportes als zusätzliche Umschließung des in den Brennstäben enthaltenen Brennstoffs. Ihre dicken Stahl- oder Gußeisenwandungen sorgen für eine ausreichende Abschirmung der radioaktiven Strahlung und die Kühlrippen oder Kühlstifte leiten die Nachzerfallswärme nach außen ab. Derartige Behälter haben in Fall- und Feuerprüfungen ihre hohe mechanische Festigkeit und Sicherheit bewiesen.

Das Öffnen der Transportbehälter und die Übernahme der Brennelemente in das Pufferlager der Wiederaufarbeitungsanlage kann nach zwei unterschiedlichen Methoden vorgenommen werden.

Beim Entladen unter Wasser wird der zuvor geflutete Behälter in den Entladeteil des als Wasserbecken ausgebildeten Lagers abgesenkt. Nach Lösen der Deckelschrauben und Abheben des Deckels entnimmt man die 4-5 Meter langen Brennelemente dem Behälter mit Hilfe von Unterwassergreifwerkzeugen, setzt sie in Büchsen ein, die lose verschlossen werden, und verbringt sie mit einem Kran in die Lagergestelle. Das Wasser dient als Abschirmung und gewährleistet zugleich eine ausgezeichnete Sicht bei den Entlade-Hantierungen. Der entleerte Behälter wird anschließend aus dem Wasserbecken gehoben und die Wasserfüllung abgelassen. Bevor er zum Verlassen der Anlage verladen werden kann, muß er verschlossen und äußerlich gereinigt werden.

Die zeitaufwendige Prozedur der Reinigung kann mit einer moderneren Entladetechnik vereinfacht werden /8,9/. Bei dieser sogenannten trockenen Entladung wird der bis zu 120 Tonnen schwere Brennelement-Transportbehälter unter die Bodenöffnung einer heißen Zelle verfahren und dort angekuppelt. Die heiße Zelle ist mit Strahlenschutzfenstern, Kran und Manipulatoren ausgestattet. Nach dem fernbedienten Öffnen des Behälterdeckels können die Brennelemente mit Hilfe des Krans entnommen und durch eine zweite Bodenöffnung in das Brennelementbecken abgesenkt werden. Diese Technik, die bisher nur an einer US-amerikanischen Anlage (ICPP Idaho Falls) praktiziert wurde, verspricht eine Vereinfachung des Entladevorganges und eine weitere Verringerung der Dosisbelastung des Personals, die bei der Naßentladung etwa 5-10 mrem pro Entladung beträgt.

Nach dem Entladen und Verschließen des Transportbehälters wird dieser angekuppelt, auf eventuell vorhandene geringfügige Kontaminationen überprüft und diese ggf. beseitigt. Der leere Behälter kann abtransportiert werden.

Das Brennelementpufferlager der geplanten deutschen Wiederaufarbeitungsanlage wird eine Vorhaltekapazität für 1-2 Wochen Anlagenbetrieb haben. Größere Becken sind nicht erforderlich, da Zwischenlager, in denen die Brennelemente in Transportbehältern bis zur Wiederaufarbeitung gelagert werden, mit ausreichender Kapazität zur Verfügung stehen werden.

Im Lagerbecken der Wiederaufarbeitungsanlage werden die Brennelemente mit einem Teleskopkran unter Wasser zu den Lagerpositionen gebracht bzw. von dort über einen Kanal an die Eingangszelle übergeben. Eine Wasserreinigungsanlage entfernt kontinuierlich inaktive und radioaktive Verunreinigungen aus dem Becken, wodurch auch die Klarsicht bis in große Wassertiefen (7-15 m) gewährleistet wird. Die Wärmeabfuhr erfolgt über ein Kühlsystem, jedoch ist die

Wärmeentwicklung des jeweiligen Brennstoffinventars so gering, daß sich das Wasser bei Abschaltung oder Ausfall des Kühlsystems nur allmählich aufheizt. Selbst bei langfristiger Abschaltung erreicht das Wasser infolge von Konvektion und Verdunstung nicht die Siedetemperatur.

2.3 Zerkleinern der Brennelemente

Am Beginn der chemischen Aufarbeitung des bestrahlten Brennstoffs steht die Auflösung, d. h. die Überführung des keramisch-festen Urandioxids (zusammen mit den gebildeten Spaltprodukten und Aktiniden) in eine Lösung. Das Hüllmaterial der Brennstäbe aus Zircaloy oder Edelstahl ist jedoch beständig gegen die verwendete Salpetersäure; aus diesem Grund muß der Brennstoff vor der Auflösung mechanisch freigelegt werden; dies geschieht durch Zerkleinern der Brennelemente.

Zum Zerkleinern der Brennelemente sind gegenwärtig zwei Scherensysteme im Einsatz: Einzelstabschere und Bündelschere.

Die in der Wiederaufarbeitungsanlage Karlsruhe (WAK) eingesetzte Einzelstabschere ist im praktischen Einsatz laufend verbessert worden. Die Schere mit zwei hydraulischen Antriebszylindern schneidet mehrere Stäbe bei einem Arbeitshub und erreicht so Leistungen von 250 kg Brennstoff pro Stunde. Höhere Leistungen können durch Parallelschalten von Scheren erreicht werden. Nach 10-15 Tonnen Brennstoff wird ein Messerwechsel erforderlich, der fernbedient innerhalb von ca. 3 Stunden ausgeführt wird. Dem Schneiden geht eine Zerlegung der Brennelemente in Einzelstäbe voraus, wozu eine moderne, leistungsstarke Zerlegemaschine verwendet wird. Dieses System hat sich so gut bewährt, daß es kaum Wünsche offen läßt und auch für Anlagen von mehreren Tonnen Tagesdurchsatz eingesetzt werden könnte /8/.

Will man noch höhere Durchsätze erreichen, so verwendet man Brennelement-Bündelscheren, die ganze Brennelemente zerschneiden. Brennelement-Bündelscheren sind in mehreren Anlagen eingesetzt worden (Cap de la Hague, Sellafield, Tokai Mura, NFS u.a.). Auch hier ist im Laufe der Jahre eine stetige Verbesserung vorgenommen worden. In der französischen Wiederaufarbeitungsanlage in La Hague sind bisher rund 500 Tonnen LWR-Brennstoff in dieser Weise verarbeitet worden, in anderen Anlagen des Auslands auch etwa 1000 Tonnen (NFS: 600 t; Sellafield ca. 100 t; Tokai Mura ca. 170 t). Im allgemeinen werden die Endstücke der

Brennelemente vorher abgetrennt oder beim Schneiden separat aufgefangen, um das Füllvolumen des Auflösers besser auszunutzen.

Der Wechsel des Schermessers ist nach längerer Standzeit erforderlich; er erfolgt fernbedient durch Austausch eines sogenannten "Messerblocs". Anfängliche Schwierigkeiten, verursacht z. B. durch Staubablagerungen, Schwierigkeiten beim Messerwechsel oder beim Verbundbetrieb einer Schere mit mehreren Auflösern (Cap de la Hague, Tokai Mura), sind inzwischen behoben worden oder lassen sich durch konstruktive Maßnahmen beim Neubau von Scheren beseitigen. Insgesamt sind die Erfahrungen so gut, daß man bei der Planung größerer Wiederaufarbeitungsanlagen, so auch für die deutsche industrielle Anlage, auf diesen Scherentyp zurückgreifen kann.

2.4 Auflösung des Brennstoffs

Lösevorgang

Bei der Wiederaufarbeitung von LWR-Brennstoffen werden die Brennstababschnitte nach dem Schneiden mit Salpetersäure ausgelaugt. Uran, Plutonium und der überwiegende Teil der Spaltprodukte gehen dabei als Nitrate in Lösung. Die Hülsen und Strukturmaterialien bleiben ungelöst zurück; sie werden als Festabfälle behandelt.

Der Lösevorgang dauert 4 bis 6 Stunden und man stellt, je nach gewählter Prozeßführung, Temperaturen zwischen 90°C und 110°C ein.

Gasförmige und flüchtige Spaltprodukte werden zusammen mit nitrosen Gasen von der eingeblasenen Rührluft dem Abgassystem zugeführt.

Unlösliche Rückstände

Die Lösung des Brennstoffs enthält nach dem Lösevorgang feinverteilte Feststoffe, die einige Promille des eingesetzten Brennstoffs ausmachen. Zum geringeren Teil handelt es sich um Schnittspäne des Hüllmaterials (Zircaloy, ggf. Edelstahl). Wie Untersuchungen an Uranoxid-elementen /10/ gezeigt haben, besteht der größere Teil der Feststoffsuspension aus Ausfällungen schwerlös-

licher Verbindungen der Spaltprodukte Molybdän, Ruthenium, Rhodium, Palladium und Zirkon. Uran und Plutonium finden sich in diesen Rückständen in Mengen von weniger als 0,1 % des Brennstoffs in Form mechanischer Einschlüsse.

Bei der Verarbeitung von Uran-Plutonium-Mischoxid-Brennelementen (MOX-Elemente) kann der Plutoniumgehalt im Rückstand höher sein. Moderne Fertigungsverfahren für den MOX-Brennstoff gewährleisten auch hier einen minimalen Plutoniumgehalt im Rückstand des bestrahlten Brennstoffs.

Die Brennstofflösung wird vor der Weiterverarbeitung geklärt, wozu sowohl Filter als auch Klärzentrifugen eingesetzt werden. Die unlöslichen Rückstände gehen zum radioaktiven Festabfall. Lediglich bei Rückständen von MOX-Brennelementen älterer Fertigung ist eine Nachauflösung vorgesehen. Sie kann ebenfalls mit Salpetersäure, ggf. unter Zusatz geringer Mengen Flußsäure oder Cer-Ionen, jedoch in einem separaten Lösekessel, erfolgen.

Standzeit des Auflösers

Die Einrichtungen zur Auflösung des Brennstoffs unterliegen einem betriebsüblichen Abtrag des Behältermaterials (Korrosion). Im Falle der Wiederaufarbeitungsanlage Karlsruhe (WAK) ist erstmalig nach 9 Betriebsjahren ein Leck des Auflösers aufgetreten /11/. Der Einbau eines neuen Auflösers (einschließlich der Erneuerung der gesamten Zelleinrichtung) beanspruchte rund 2 1/2 Jahre. Die lange Austauschzeit war durch den Pilotcharakter der Anlage bedingt. Insbesondere wurde der Anlagenteil dabei soweit dekontaminiert, daß er von Personen begehrbar war. Bei Produktionsanlagen sind jedoch die Auflöser kurzfristig fernbedient auswechselbar (Savannah River Plant, AGNS Barnwell) oder es sind Reserveauflöser installiert, auf die bei Bedarf umgeschaltet werden kann. Dadurch werden Produktionsausfälle vermieden.

Kritikalitätskontrolle

Das Eintreten eines "kritischen Zustandes" (Kritikalität), d. h. der Ablauf einer unerwünschten Kernkettenreaktion bei der Auflösung, wird durch konstruktive und administrative Maßnahmen vermieden (vgl. hierzu die Ausführungen in Abschnitt 4.1).

Zu den konstruktiven Maßnahmen zählt die Ausführung in "kritisch-sicherer Geometrie". Die Abmessungen des rohr- oder scheibenförmigen Auflösers sind dann so begrenzt, daß keine Kritikalität eintreten kann. Je nach Anfangsanreicherung, Abbrand und U/Pu-Verhältnis können Auflöser in "sicherer Geometrie" für Brennstoffmengen von bis zu 0,5 - 2 Tonnen gebaut werden. Mehrere zyklisch betriebene Auflöser gewährleisten auch für sehr große Wiederaufarbeitungsanlagen ausreichende Lösekapazität.

Zu den konstruktiven Maßnahmen zählen auch feste, neutronenabsorbierende Einbauten im Auflöser (Borkarbid, Hafniumbleche), die ebenfalls eine Vergrößerung der Lösemenge gestatten.

Administrative Maßnahmen zur Kritikalitätskontrolle werden allein (z.B. Massenbeschränkung) oder in Verbindung mit konstruktiven Maßnahmen angewendet. Eine moderne aussichtsreiche Methode ist die Spaltstoffbestimmung in den zu verarbeitenden Brennelementen vor der Auflösung mittels eines Neutronenmonitors. Anstelle der bislang in die Sicherheitsberechnungen eingesetzten Anfangsanreicherung könnte dann vom Restspaltstoffgehalt ausgegangen werden. Diese Methode läßt ebenfalls eine Vergrößerung der Lösecharge zu.

Auflöserabgas

Die Technologie zur Abgasreinigung und Rückhaltung von Aerosolen und flüchtigen radioaktiven Stoffen hat sich seit vielen Jahren in den Wiederaufarbeitungsanlagen bewährt (vgl. hierzu die Ausführungen in Abschnitt 2.6). Zu den neueren Methoden zählen die seit 1976 in der Wiederaufarbeitungsanlage Karlsruhe erfolgreich eingesetzten Iodfilter mit mittleren Rückhaltefaktoren von 1000. Nicht zurückgehalten werden die Radionuklide Krypton-85 und Kohlenstoff-14 (als CO₂ vorliegend), da sie keine nennenswerte Belastung der Umwelt darstellen.

2.5 Extraktion

Der mit Extraktion bezeichnete verfahrenstechnische Teil ist das Herzstück des Wiederaufarbeitungsprozesses. In diesem Teil wird die Trennung des Urans vom Plutonium und deren Reinigung von den Spalt- und Aktivierungsprodukten vorgenommen. Für diese Trennung werden bekannte Methoden chemischer Trennverfahren angewandt. Bei der Auswahl der geeigneten Methode wurden die besonderen Bedingungen berücksichtigt, die auf den Stoffeigenschaften der radioaktiven Substanzen beruhen.

Entwicklungsgang

Im Laufe der Entwicklung wurden bei der Suche nach geeigneten Wiederaufbereitungsverfahren die verschiedenen chemischen Trennmethoden wie Fällungs-, Verflüchtigungs-, pyrometallurgische und Extraktionsverfahren auf ihre Eignung untersucht. Von allen Verfahren konnten sich nur die Extraktionsverfahren durchsetzen, da die anderen Trennmethoden verfahrenstechnisch zu kompliziert (hohe Temperaturen und Korrosionsprobleme bei Verflüchtigungs- und Schmelzverfahren) oder mit zu großen Wertstoffverlusten verbunden sind (Fällungsverfahren).

Von den verschiedenen Extraktionsverfahren (REDOX-, Trigly-, BUTEX- und PUREX-Prozeß) setzte sich schließlich wiederum ein Verfahren als das beste durch: der PUREX-Prozeß.

Von Kernenergiegegnern wird die Behauptung aufgestellt, der PUREX-Prozeß sei technisch nicht ausgereift, und man müsse nach technisch besseren Trennmethoden suchen. Solche Behauptungen und Forderungen lassen jedoch technisches Verständnis vermissen und lassen zudem die historische Entwicklung des Wiederaufarbeitungsprozesses außer acht. Der PUREX-Prozeß wurde bereits vor 30 Jahren als Wiederaufbereitungsverfahren in einer technischen Anlage eingesetzt (Savannah River Plant) /12/. Auch spätere Bemühungen, den PUREX-Prozeß durch andere Trennverfahren zu ersetzen, hatten bisher keinen Erfolg /13/.

Warum hat sich gerade der PUREX-Prozeß für die Aufarbeitung bestrahlter Kernbrennstoffe bewährt und sich gegenüber anderen Aufarbeitungsmethoden durchgesetzt? Um diese Frage zu beantworten, soll auf das Prinzip des PUREX-Prozesses etwas näher eingegangen werden.

Grundlagen des PUREX-Prozesses

Grundlage des PUREX-Verfahrens ist eine besondere Art der Extraktion: die Flüssig-Flüssig-Extraktion (Solventextraktion). Hierunter versteht man die Überführung eines (oder mehrerer) in einer flüssigen Phase gelösten Stoffes in eine andere Phase, wobei die beiden flüssigen Phasen selbst nicht miteinander mischbar sind. Die Menge eines Stoffes, die von einer Phase in die andere übertritt, wird durch den Verteilungskoeffizienten D_x bestimmt. Er ist definiert als das Verhältnis der Gleichgewichtskonzentration C_{org} des Stoffes X in der organischen Phase zur Konzentration C_{aq} des gleichen Stoffes X in der wäßrigen Phase

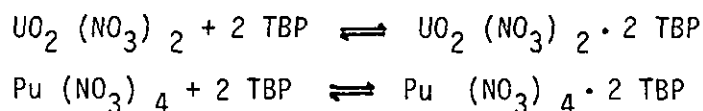
$$D_x = \frac{C_{org}}{C_{aq}}$$

Technisch erfolgt der Extraktionsvorgang in zwei Teilschritten:

Zunächst geschieht eine innige Durchmischung der beiden Phasen, wobei der Übergang des Stoffes von einer Phase in die andere gemäß dem Verteilungskoeffizienten erfolgt. Der nächste Schritt ist dann die Trennung der beiden Phasen in eine organische und eine wäßrige Phase.

Beim PUREX-Verfahren wird als organische Phase eine meist 30 %ige Lösung von Tributylphosphat ($[C_4H_9]_3 PO_4$) in n-Dodecan ($C_{12}H_{26}$) und als wäßrige Phase eine salpetersaure Lösung verwendet.

Uran und Plutonium bilden nun im Vergleich zu den Spaltprodukten mit dem Tributylphosphat (TBP) bevorzugt Komplexe gemäß folgender Gleichung:



Die Lage des Gleichgewichtes dieser Reaktionsgleichung ist stark von der Salpetersäurekonzentration in der wäßrigen Phase abhängig, d. h. der Verteilungskoeffizient des Urans bzw. Plutoniums ist eine Funktion der Salpetersäurekonzentration /14/.

Abbildung 2.1 zeigt diese Verhältnisse für einige Metallionen. Daraus läßt

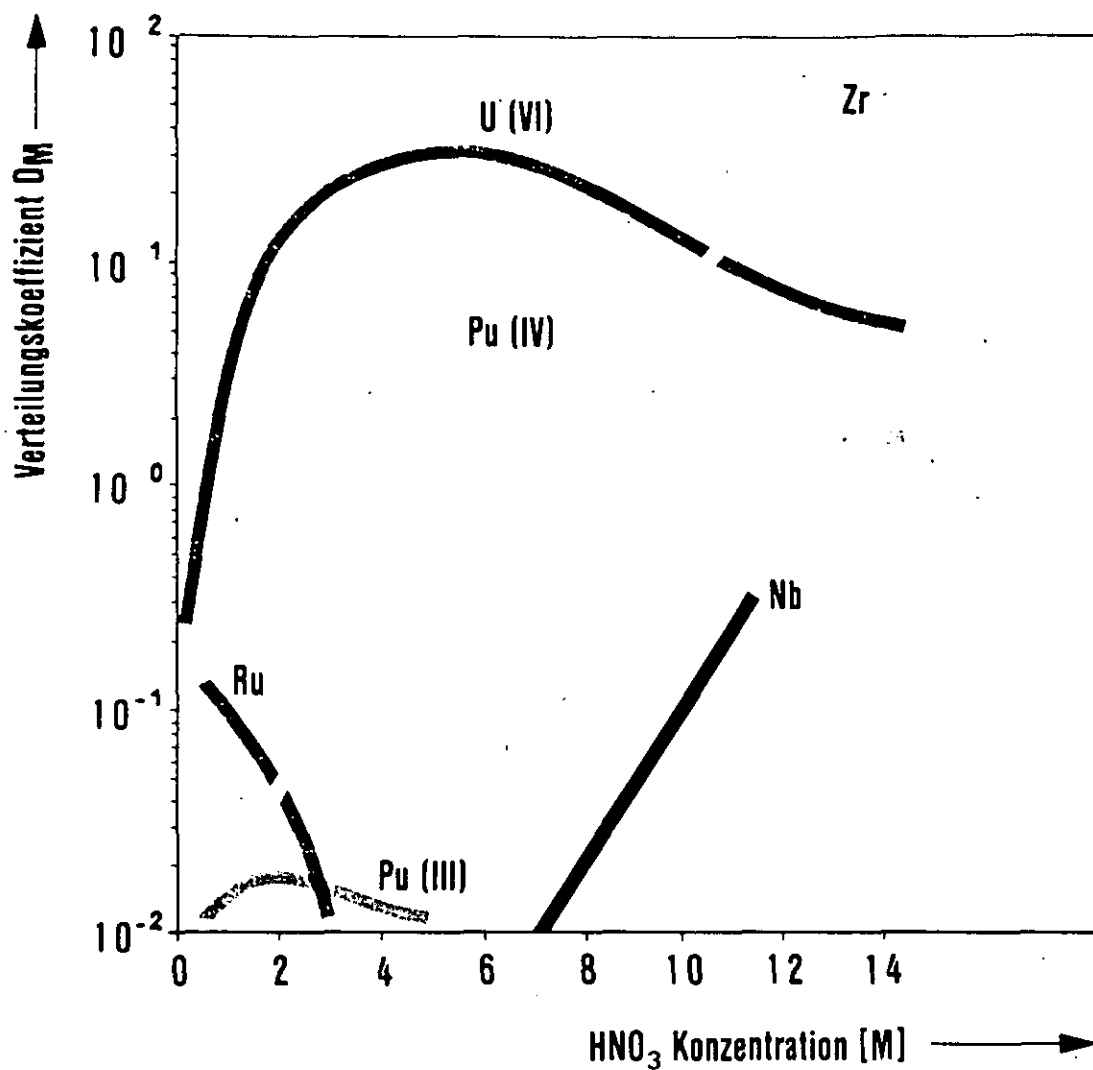


Abb. 2.1: Verteilungskoeffizient für verschiedene Schwermetalle im System Salpetersäure - 30 % Tri-n-butyl-phosphat/Kerosin

sich entnehmen, daß bei 3-molarer Salpetersäurekonzentration die Wertstoffe in Form von 6-wertigem Uran (U (VI)) und 4-wertigem Plutonium (Pu (IV)) gut extrahiert, dagegen die Spaltprodukte (im Beispiel Ru, Zr und Nb) bei dieser Salpetersäurekonzentration nur geringfügig mitextrahiert werden. 3-wertiges Plutonium (Pu (III)) hat einen so niedrigen Verteilungskoeffizienten, daß es praktisch gar nicht extrahiert wird. Bei geringen Säurekonzentrationen (<0,1 m) fallen die Verteilungskoeffizienten von Uran und Plutonium stark ab, so daß die Gleichgewichtskonzentration ganz auf der wäßrigen Seite liegt.

Auf diesem unterschiedlichen Verhalten der Verteilungskoeffizienten ist nun der Trennungsgang des PUREX-Verfahrens aufgebaut (Abb. 2.2).

- Bei etwa 3-molarer HNO_3 -Konzentration Extraktion der Wertstoffe U (VI) und Pu (IV) in die organische Phase, wobei die Spaltprodukte weitgehend in der wäßrigen Phase zurückbleiben.
- Rückextraktion der Wertstoffe aus der organischen Phase durch Waschen dieser Phase mit stark verdünnter Salpetersäure bzw. durch Reduktion des Pu (IV) zu Pu (III). Mehrfaches Wiederholen dieses Vorganges Extraktion - Rückextraktion führt schließlich zu den geforderten hohen Dekontaminationsfaktoren von den Spaltprodukten.

An dieser Stelle ist es angebracht, einige Ausführungen zur Wahl des Extraktionsmittels für die Uran- und Plutoniumabtrennung von den Spaltprodukten zu machen. Das Extraktionsmittel ist dabei im wesentlichen zu begutachten nach /15,14/:

- Aufnahmefähigkeit für U und Pu (Verteilungskoeffizient)
- Selektivität gegenüber Spaltprodukten
- Beständigkeit gegenüber Salpetersäure
- Strahlenbeständigkeit
- Technisches Verhalten (Dichteunterschied zu Wasser, Entzündbarkeit, Emulsionsbildung)
- Notwendigkeit von Aussalzmitteln

Die Anwendung dieser Kriterien auf das Extraktionsmittel Tributylphosphat (TBP) ergibt folgendes Bild:

Die Verteilungskoeffizienten für U und Pu sind bei mittlerer Säurekonzentra-

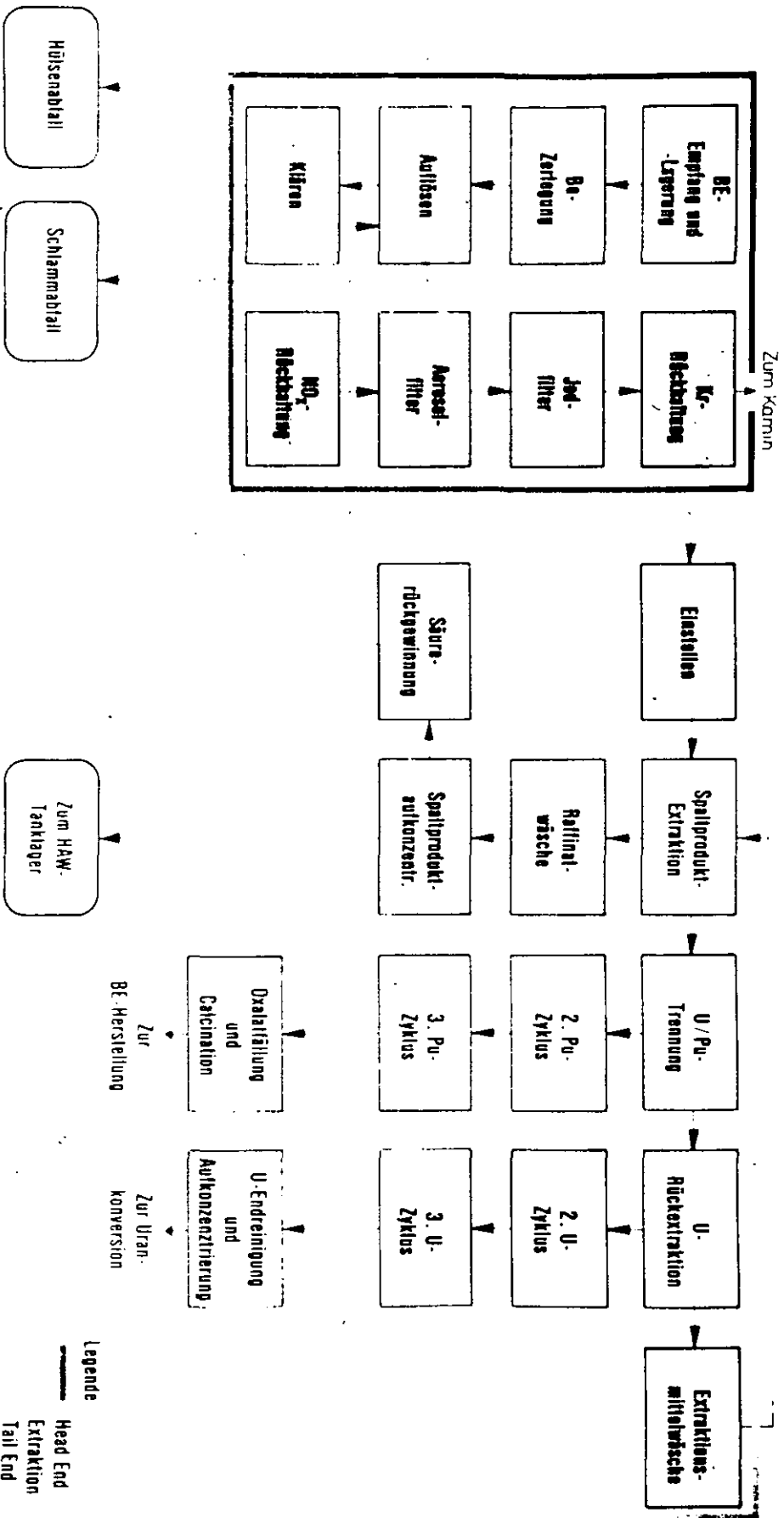


Abb. 2.2: Vereinfachtes Blockschema des Wiederaufarbeitungsprozesses

tion der Brennstofflösung genügend groß, um mit vertretbarem apparativem Aufwand eine gute Abtrennung von den Spaltprodukten zu erreichen. Die Beständigkeit gegenüber Salpetersäure - auch in höherer Konzentration - ist befriedigend; gleiches gilt auch für die Radiolysebeständigkeit. Als 30%ige Lösung in Kerosin ist das technische Verhalten des TBP als gut zu bezeichnen. Der Dichteunterschied gegenüber der wäßrigen Lösung ist so groß, daß eine schnelle Phasentrennung erfolgt; die Emulsionsbildung setzt im Mixer-Settler erst bei hohen Rührgeschwindigkeiten bzw. in Pulskolonnen bei hohen Pulsfrequenzen ein; die Zündtemperatur ist relativ hoch. Besonders positiv ist jedoch der Fortfall eines Aussalzmittels, d. h. es ist keine zusätzliche Salzzugabe (z.B. in Form von Aluminiumnitrat), um U und Pu in die organische Phase zu "drücken", notwendig; die Salpetersäure wirkt vielmehr selbst als "Aussalzmittel", wodurch unwirtschaftliche Salzzugabe und hohe Salzbelastung der Abfallströme vermieden werden.

Das Tributylphosphat hat damit ganz überwiegend positive Eigenschaften, wie ein Vergleich der in Tabelle 1 für die verschiedenen Extraktionsverfahren eingesetzten Extraktionsmittel zeigt.

Extraktionsapparate

Die technischen Apparate, in denen die Extraktion durchgeführt wird, sind im wesentlichen folgende:

a) Mischabsetzer (Mixer-Settler) (Abb. 2.3)

Aus mehreren Misch- und Absetzkammern bestehende Behälter. In der Mischkammer werden die wäßrige und die organische Phase durch Rühren gemischt; die Mischung fließt in die Absetzkammer, in der sich organische und wäßrige Phase voneinander trennen. Die organische Phase fließt in die benachbarte rechte, die wäßrige in die benachbarte linke Mischkammer (Gegenstrom). Durch mehrere hintereinandergeschaltete Mischabsetzer wiederholt sich dieser Vorgang so oft, bis der gewünschte Trenneffekt erzielt ist.

b) Pulskolonnen (Abb. 2.4)

Senkrecht stehende, zylinderförmige Rohre (Kolonne), die im Inneren in bestimmten Abständen angeordnete Siebböden enthalten. Höhe bis 12 m. Die leichte organische Phase wird unten, die schwere wäßrige oben in die

Tabelle 1: Vergleich verschiedener Extraktionsmittel für Wiederaufarbeitungsprozesse

Extraktionsmittel	Aufnahmefähigkeit für U u. Pu	Salpetersäurebeständigkeit.	Radiolysebeständigk.	Aussalzmittel	Selektivität	Techn. Verhalten
Hexon (REDOX-Prozeß)	gut (Pu IV gering, Pu VI sehr gut)	mittelmäßig	gut	Aluminiumnitrat	befriedigend	sehr niedrige Zündtemperatur
Dibutoxy-Dibutyläther (BUTEX-Prozeß)	gut	gut	gut	Salpetersäure	schlecht f. Ruthen	befriedigend, niedrige Zündtemperatur, etwas wasserlöslich
Triglykoldichlorid (Trigly-Prozeß)	nur für Pu gut, U wie Spaltprodukte	gut	gut	Salpetersäure	nur gegenüber Pu gut	schlecht
Quarternäre Amine (EUREX-Prozeß)	sehr gut	gut	gut	Aluminiumnitrat	gut	befriedigend
Tributylphosphat (PUREX-Prozeß)	gut	gut	befriedigend	Salpetersäure	gut	gut

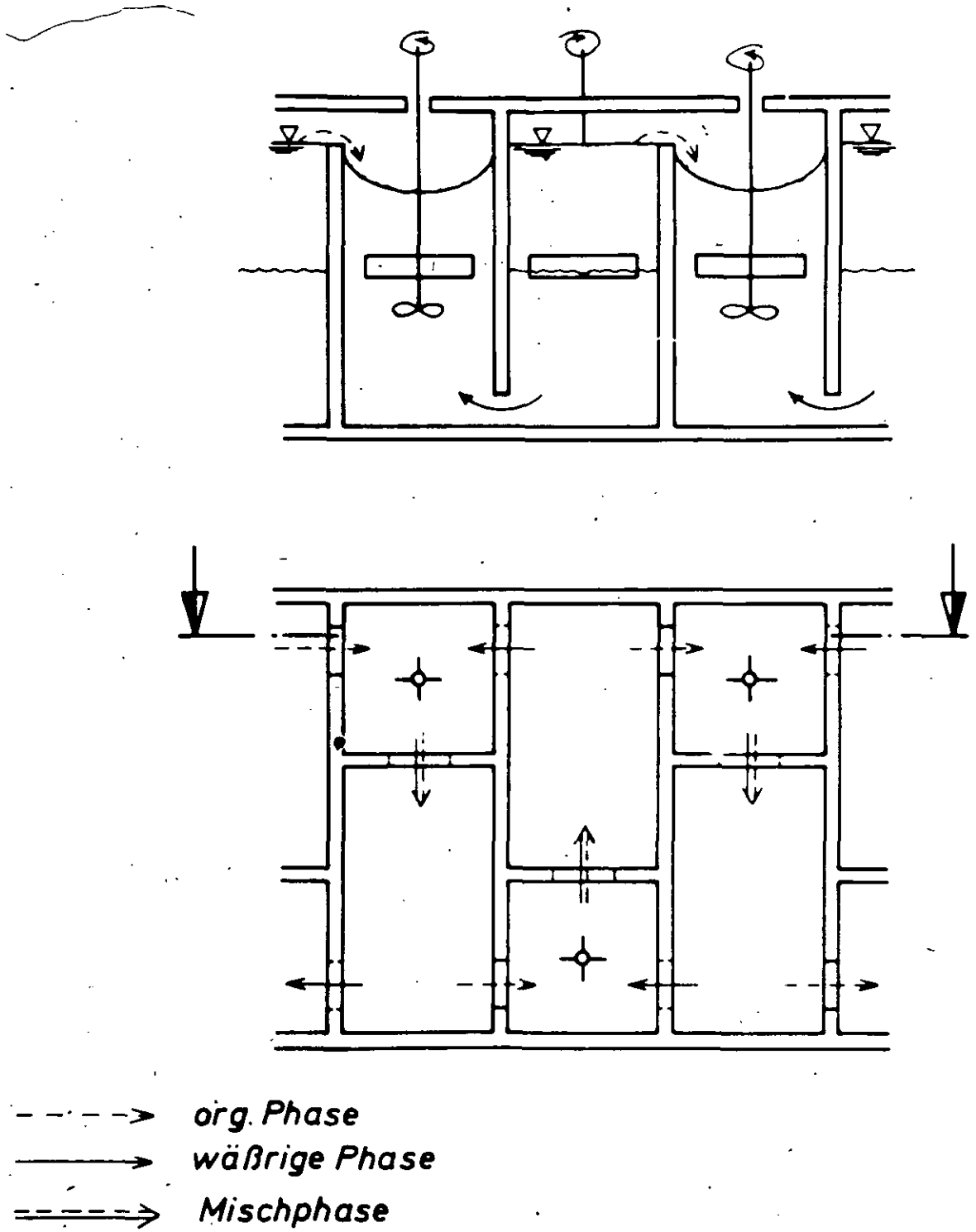


Abb. 2.3: Prinzip einer Mischabsetzer-Batterie

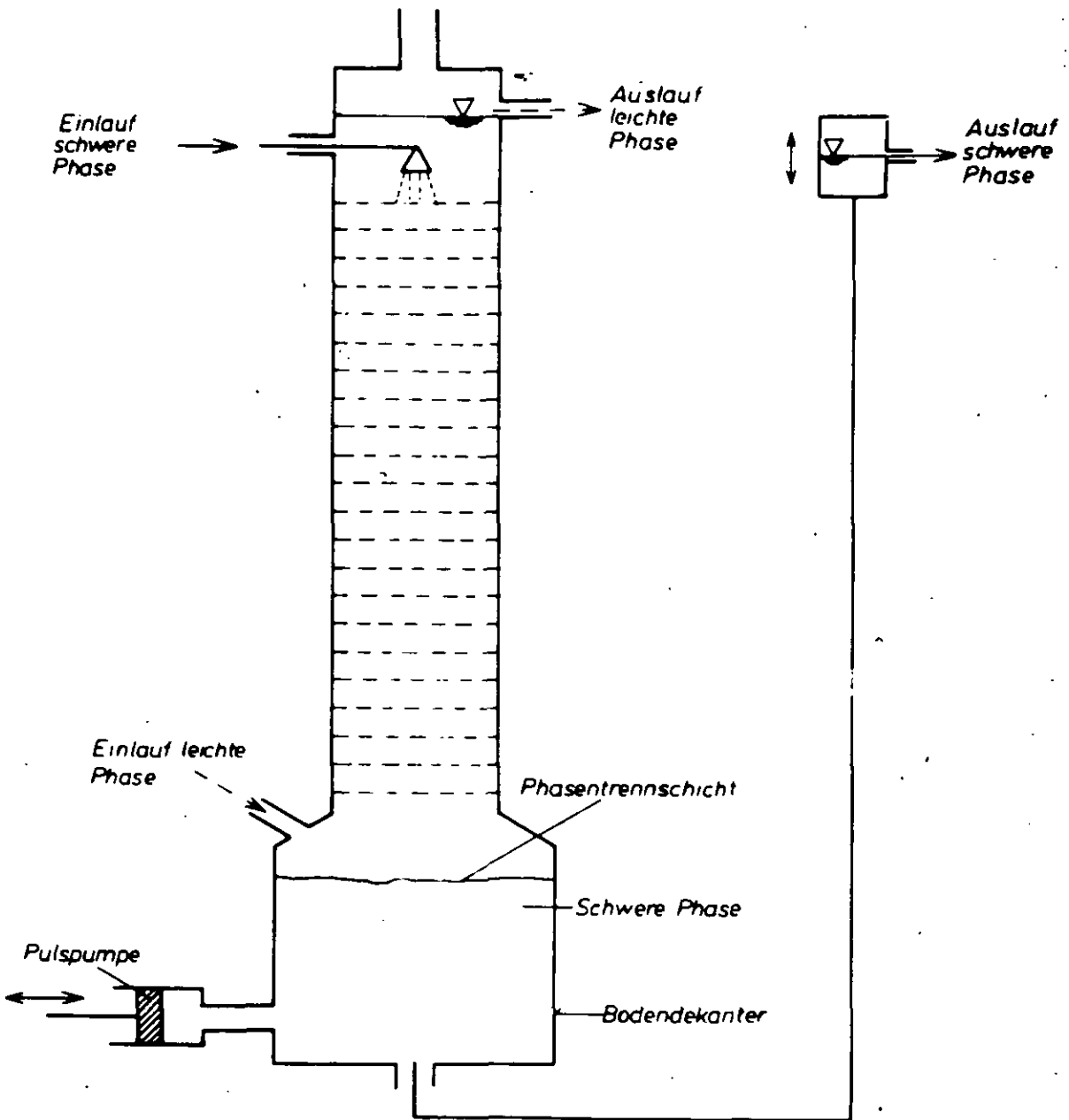


Abb. 2.4: Mechanisch gepulste Siebbodenkolonne
kontinuierliche Phase: leichtes Solvent

Kolonne eingeleitet. Durch Druckluft wird auf die Flüssigkeitssäule in der Kolonne eine Pulsation aufgegeben, die die Flüssigkeitssäule in Schwingung versetzt. Infolge dieser Schwingung und der Siebböden werden organische und wäßrige Phase vermischt. Die Trennung der beiden Phasen erfolgt entweder am Kopf oder am Boden der Kolonne in sogenannten Dekantern.

c) Schnellextraktoren (einstufiger Typ)

Meist zylinderförmige Zentrifugen mit einer Mischkammer. In die Mischkammer werden organische und wäßrige Phase zusammengeführt. Die Mischung wird dann durch Zentrifugalkraft infolge unterschiedlicher Dichten von organischer und wäßriger Phase getrennt.

Von diesen Extraktionsapparaten ist die Pulskolonne zu bevorzugen: Sie enthält keine mechanisch bewegten Teile, sie ist relativ unempfindlich gegenüber Verunreinigungen (Crud) und läßt sich auch für hohe Durchsätze kritisch sicher auslegen, wenn man für die Siebbleche neutronenabsorbierende Materialien - z.B. Hafnium - einsetzt. Mischabsetzer sind gegen Trennschichtniederschläge empfindlich, wie sie im 1. Extraktionszyklus des PUREX-Verfahrens bei der Aufarbeitung höher abgebrannter bzw. kurzzeitig gekühlter Brennstoffe entstehen können. Wegen ihres im übrigen bemerkenswert stabilen Betriebsverhaltens werden sie bevorzugt bei der Verarbeitung schwach abgebrannten MAGNOX-Brennstoffes und bei der Verarbeitung von LWR-Brennstoffen in den 2. und 3. Uran-Zyklen eingesetzt.

Schnellextraktoren dagegen, die wegen der kurzen Verweilzeit des Extraktionsmittels (Minderung der Radiolyse!) und der leicht zu verifizierenden Kritikalitätssicherheit wünschenswert wären, sind derzeit noch sehr empfindlich gegenüber Verunreinigungen und neigen zu Verstopfungen. Außerdem sind die mechanisch bewegten Teile ein gewisses Handicap.

Tributylphosphat als Extraktionsmittel und bevorzugt Siebbodenpulskolonnen als Extraktionsapparate sind demnach zwei wichtige Voraussetzungen, mit denen man die bei der Trennung hochradioaktiver Stoffe sich ergebenden verfahrenstechnischen Schwierigkeiten in den Griff bekam: Tributylphosphat zeigt bei genügend hoher Strahlenbeständigkeit und gutem technischen Verhalten eine brauchbare Selektivität für U und Pu gegenüber den Spaltprodukten. Die Pulskolonnen unterstützen zum Teil diese Eigenschaften, da sie relativ kurze Verweilzeiten des Extraktionsmittels erlauben, wodurch die Strahlenbelastung

des Extraktionsmittels beträchtlich reduziert wird (gegenüber dem Mischabsetzer etwa um den Faktor 15) /16/. Obendrein sind Pulskolonnen problemlos kritisch sicher auszulegen.

Diese positiven Eigenschaften haben wesentlich dazu beigetragen, dem PUREX-Prozeß im Vergleich zu anderen Trennverfahren weltweit zum Durchbruch zu verhelfen. Dies bedeutet jedoch nicht, daß nicht auch der PUREX-Prozeß in Teilen verbesserungsfähig ist. In diesem Zusammenhang sei auf Kapitel 6 verwiesen, in dem die Entwicklungschancen des PUREX-Prozesses behandelt werden.

Keine Problemelemente: Technetium, Zirkon und Neptunium

Abschließend zum Thema Extraktion nach dem PUREX-Prozeß sei noch kurz auf das Verhalten der Spaltprodukte Technetium und Zirkon sowie auf das Neptunium eingegangen, die von Kritikern häufig als Problemelemente bei der Wiederaufarbeitung bezeichnet werden. Gibt es damit wirklich Probleme, die den PUREX-Prozeß infrage stellen könnten und gar die Entwicklung eines neuen Trennverfahrens wünschenswert erscheinen ließen?

Zirkon bildet mit dem Radiolyseprodukt Monobutylphosphat mulmartige Niederschläge, den sogenannten Crud. Dieser Crud setzt sich bevorzugt an der Grenzfläche zwischen organischer und wäßriger Phase ab. Damit wirkt das im Crud enthaltene Zr-95 als starker Strahler auf das Extraktionsmittel ein, erhöht infolge der Akkumulation die Radiolyse und forciert damit in einer Art Autokatalyse wiederum die Crud-Bildung /17/. Dieser Fall trat besonders in Misch-Absetzern auf. Durch geeignete technische und extraktionschemische Maßnahmen läßt sich diese Störung jedoch vermeiden: Einperlen von Luft in Misch-Absetzer verhindert die Akkumulation von Crud an der Phasengrenzfläche und damit eine Erhöhung der Radiolyse; Erhöhung der Spaltstoffkonzentration in der organischen Phase führt zu einer starken Verdrängung des Zirkons in die wäßrige Phase und damit zu einer Verminderung der primären Radiolyseproduktentstehung, so daß die Crud-Bildung drastisch reduziert wird. An die Crud-Unempfindlichkeit der Pulskolonnen sei an dieser Stelle nochmals erinnert.

Technetium bildet als Pertechetat in Anwesenheit von Uranyl Nitrat den Komplex $UO_2(TcO_4)(NO_3)$ /18/, in dem das Technetium bei der U-Pu-Trennung nicht zur vierwertigen Stufe reduziert wird, so daß eine Verstopfungsgefahr durch ausfallendes, unlösliches Technetiumdioxid nicht entsteht.

Im übrigen befindet sich der überwiegende Teil des Technetiums in gelöster Form im hochaktiven Abfallstrom und nur ein geringer Teil verteilt sich auf die übrigen Abfallströme. Im Endprodukt Uran sind weniger als 0,04 % vom Gesamttechnetium enthalten, womit die geforderten Spezifikationen erreicht werden.

Neptunium kommt unter PUREX-Prozeßbedingungen in verschiedenen Wertigkeitsstufen vor, die unterschiedliches Extraktionsverhalten zeigen. Der überwiegende Teil des Neptuniums gelangt zwar im 1. Extraktionszyklus zusammen mit den Spaltprodukten in den HAW-Strom, ein geringer Teil gelangt jedoch in die weiteren Extraktionszyklen und dadurch auch in die übrigen Abfallströme. Es gelingt jedoch, das Neptunium von den Spaltstoffen Uran und Plutonium abzutrennen und die geforderten Spezifikationen für die Endprodukte zu erreichen /19/. Die Abtrennung des Neptuniums ist also mit dem PUREX-Verfahren gewährleistet, wenn auch die gezielte Überführung des gesamten Neptuniums in einen Abfallstrom wünschenswert wäre.

Aus dem Gesagten geht hervor, daß Technetium, Zirkon und Neptunium keine Problemelemente sind und schon gar nicht eine Abkehr vom PUREX-Prozeß erfordern.

2.6 Abgasbehandlung

Einleitung

In den Prozeßabgasen einer Wiederaufarbeitungsanlage sind die Radionuklide Tritium (H-3), Kohlenstoff (C-14), Krypton (Kr-85) und Iod (I-129) enthalten /20/. Die Aerosole einer Wiederaufarbeitungsanlage enthalten Spaltprodukte und Aktinidenelemente. Ferner enthält das Abgas auch nicht-radioaktive Gase und Aerosole wie z. B. Stickstoff, Sauerstoff, Xenon, Wasserdampf sowie Stickoxide.

Diese Prozeßabgase werden durch Rückhalteeinrichtungen soweit gereinigt, daß die durch sie hervorgerufene Strahlenbelastung nur einen kleinen Bruchteil der nach der Strahlenschutzverordnung zugelassenen Belastung ausmacht.

Gasförmige Emissionen

Krypton, von dem übrigens nur ca. 6 % radioaktives Kr-85 sind, und C-14, hauptsächlich in Form von Kohlendioxid (CO_2), werden beim Zerkleinern und Auflösen des Brennstoffs freigesetzt. Iod wird während des Auflöseprozesses nahezu quantitativ in das Abgas freigesetzt. Vom gesamten Tritium gehen beim Zerlegen und Auflösen weniger als 0,5 % in das Abgas, ca. 60 % bleiben in den Hülsten gebunden. Vom Rest gelangt der Hauptanteil unmittelbar in den Raffinatstrom des 1. Extraktionszyklusses, d. h. in den HAW-Strom, von wo er über das Verdampferkondensat zur Abfallbehandlung gelangt; ein Teil gelangt als Tritiumwasser (HTO) in die Extraktion, wo er mit Hilfe einer Wäsche abgetrennt und zur Abfallbehandlung abgegeben werden kann.

Krypton, Tritium und C-14 sind bei der Wiederaufarbeitung bisher nicht zurückgehalten worden, denn auch ohne ihre Rückhaltung konnten die Strahlenschutzbestimmungen hinsichtlich der Umweltbelastung eingehalten werden /24,25/. Iod wird grundsätzlich zurückgehalten /28,29/ durch Wäsche und Filter. In der WAK wurde 1975 die Iodwäsche durch effiziente Filter ergänzt.

Umfassende Untersuchungen zeigen, daß die Rückhaltung von Krypton aus radiologischen Gründen nicht notwendig ist /21/, da die Belastung durch Krypton in der Umgebung einer Wiederaufarbeitungsanlage äußerst gering ist.

C-14 verbleibt teilweise im Verlauf des Wiederaufarbeitungsprozesses, hauptsächlich als CO_2 bzw. Karbonat, in verschiedenen Filtern bzw. flüssigen Abfallströmen.

Betrachtet man die Strahlenbelastung der Bevölkerung durch die erwähnten Radionuklide, so kommt man zu dem Schluß, daß auch in Zukunft bei der Wiederaufarbeitung aus Strahlenschutzgründen von den gasförmigen Bestandteilen nur das Iod zurückgehalten werden muß. Trotzdem werden Anlagen für die Rückhaltung, insbesondere des Tritiums und Kryptions /21,26,27/ entwickelt, um auch in Zukunft dem Prinzip des Strahlenschutzes entsprechen zu können, wonach die Strahlenbelastung auch unterhalb der zugelassenen Grenze so niedrig wie vernünftig erreichbar zu halten ist.

Aerosol-Emissionen

Aerosole mit den darin enthaltenen Radionukliden Plutonium (Pu), Strontium/Yttrium (Sr-90/Y-90), Cäsium (Cs-137), Cer (Ce-144) und Ruthen (Ru-106) entstehen in jeder Stufe des Aufarbeitungsprozesses, hauptsächlich beim Zerkleinern des Brennstoffs, beim darauffolgenden Auflösen des Brennstoffs in Salpetersäure, beim Eindampfen von Lösungen, bei Destillationen zur Rückgewin-

nung von Flüssigkeiten sowie bei der Behandlung von Abfällen, z. B. der Ver-
glasung. Aerosole können in Tröpfchen- oder Staubform auftreten und werden
durch wirkungsvolle Filter- und Waschsyste me abgetrennt.

Entwicklung von Rückhalteeinrichtungen

Von Beginn der Entwicklung der Kernenergienutzung an waren für den Betrieb
der entsprechenden Anlagen effektive Rückhalteeinrichtungen erforderlich, in
Anbetracht der Radiotoxizität vieler radioaktiver Stoffe. Insoweit gibt es
keinen Unterschied zur konventionellen chemischen Industrie, in der ebenfalls
häufig giftige Schadstoffe von der Umwelt ferngehalten werden müssen. Auch
die Art der Rückhalteeinrichtungen ist in beiden Fällen grundsätzlich gleich:
Schwebstofffilter, Waschkolonnen usw. In beiden Fällen werden die Rück-
halteeinrichtungen laufend weiterentwickelt und optimiert wegen der allgemein
steigenden Anforderungen hinsichtlich des Umweltschutzes, die z. B. die Rück-
haltung von Stoffen erfordern können, die man früher nicht oder nur wenig
zurückhielt, oder auch weil ein vergrößertes Schadstoffinventar dies notwendig
macht.

Im Falle der Wiederaufarbeitung wurden die Aerosole schon von Beginn der Ent-
wicklung an effektiv zurückgehalten. Wie erwähnt, wird von den flüchtigen
Radionukliden bisher nur das Iod (mit einer Effektivität von mehr als 99 %)
zurückgehalten. Im Hinblick auf eine zukünftige größere Wiederaufarbeitungs-
anlage in der Bundesrepublik Deutschland wurde schon vor Jahren, vor allem im
Kernforschungszentrum Karlsruhe, damit begonnen, die vorhandenen Rückhalte-
techniken weiterzuentwickeln und zu optimieren.

Für die Auflöserabgasreinigung wird eine Anlage mit Pilot- und Prototypcharak-
ter seit einigen Jahren im Kernforschungszentrum Karlsruhe entwickelt. Sie be-
steht aus folgenden Komponenten:

Auflöser, Stickoxid (NO_x)-Waschkolonnen, Filterstrecke mit Aerosol- und Iod-
filtern, zwei Vorreinigungsstufen, Rest-Stickoxidbeseitigung, Gastrocknung
und einer Tieftemperatur-Rektifikationsanlage zur Abtrennung von Edelgasen
aus dem Stickstoff-Trägergasstrom und zur Trennung des Kryptons vom inaktiven
Xenon.

Wie schon erwähnt enthält auch das Abgas anderer Teile einer Wiederaufarbei-
tungsanlage sowie der Abfallkonditionierungsanlagen radioaktive Stoffe,

hauptsächlich als Aerosole, und wird durch bekannte Rückhaltetechniken gereinigt.

Die Reinigung der Prozeßabgase von Wiederaufarbeitungsanlagen und ihrer Hilfsanlagen ist somit kein grundsätzlich neues Problem, da sie bereits von Beginn der Entwicklung dieser Technik an betrieben wurde. Eine Weiterentwicklung und Optimierung /22,23/ erfolgt, wie bei konventionellen Schadstoffemittenten auch, im Hinblick auf erhöhtes Aktivitätsinventar in größeren Anlagen und verstärkte Umweltschutzanforderungen, hier entsprechend dem Strahlenschutzprinzip, wonach die Strahlenbelastung auch unter der zugelassenen Grenze so niedrig wie vernünftig erreichbar zu halten ist.

2.7 Abfallbehandlung

Allgemeine Betrachtungen zur Konditionierung von Spaltprodukten

Bei der Behandlung und Lagerung der radioaktiven Abfälle des Kernbrennstoffkreislaufes wird den hochradioaktiven wäßrigen Lösungen, die nach der Extraktion von Uran und Plutonium im ersten Zyklus des PUREX-Prozesses anfallen, besondere Beachtung geschenkt. Diese Lösungen enthalten über 99,9 % der Spaltprodukte, die mit der Speiselösung in den Extraktionsprozeß eingebracht werden, daneben noch die nicht extrahierbaren α -Strahler Neptunium, Americium und Curium /30/.

Das wäßrige Raffinat des 1. Zyklus (HAW) weist eine Spaltproduktkonzentration von weniger als 10 g/l auf und kann durch Eindampfen etwa um einen Faktor 10 konzentriert werden (HAWC) /31/. Obwohl nämlich zwischen der Entnahme des Brennstoffs aus dem Reaktor und der Wiederaufarbeitung mehrere Jahre Kühlzeit liegen und dann die ursprüngliche Radioaktivität unter 1 % abgeklungen ist, erzeugen HAWC-Lösungen noch beträchtliche Wärmeleistungen, bis zu einigen Watt pro Liter.

Die HAWC-Lösung wird zunächst in Tanks zwischengelagert. Über Erfahrungen mit der Tanklagerung verfügen heute viele Länder /32,33/. Schwierigkeiten, die anfangs bei dieser Flüssiglagerung insbesondere in den USA auftraten, waren durch nicht geeignete Materialauswahl bedingt und sind heute behoben. Bei der Wahl geeigneten Materials können Behälter so konstruiert werden, daß eine

Tanklagerung über Jahrzehnte ohne Risiko möglich ist. Da jedoch die Spaltprodukte über Jahrhunderte, α -Strahler (Np, Am, Cm) sogar über einen um Größenordnungen längeren Zeitraum sicher eingeschlossen werden müssen, kann eine Flüssiglagerung keine endgültige Lösung des Abfallproblems sein.

Die Überführung der im HAWC enthaltenen radioaktiven Spaltprodukte und Aktiniden vom flüssigen in den weniger korrosiven und weniger mobilen festen Zustand - wie sie heute in Frankreich schon durchgeführt wird - ist deshalb die weltweit geplante Konditionierung für eine Endlagerung. Bei der Verfestigung werden zudem Produkte erzeugt, die im besonderen Maße für eine Endlagerung geeignet sind. Angestrebte Eigenschaften sind hier die chemische Stabilität des Produkts gegenüber verschiedensten Umgebungseinflüssen, eine gewisse mechanische Stabilität, um eine Dispersion zu vermeiden, und schließlich muß der Festkörper auch die notwendige thermische Stabilität besitzen, weil die Zerfallswärme der Spaltprodukte eine Selbsterhitzung zur Folge hat.

Die einfachste Art der Verfestigung ist die Herstellung von Kalzinaten /34/. Dazu wird die HAWC-Lösung zur Trockne gebracht, und durch weiteres Erhitzen auf 400 - 800°C werden vor allem die Oxide der Spaltprodukte erzeugt.

Derartige Kalzinate besitzen unzureichende Eigenschaften für ein Endlagerprodukt /35/.

Eine wesentlich bessere Isolation der radioaktiven Stoffe gegenüber der Biosphäre läßt sich durch eine Einbettung in eine inerte Matrix erreichen. Hierfür kommen z. B. oxidische Materialien in Frage; denn auch die Spaltprodukte und α -Strahler sind zum überwiegenden Teil durch Erhitzen leicht in die Oxide zu überführen und dann chemisch recht stabil. Als Matrix bevorzugt werden heute Borosilikatgläser, die neben ihren guten chemischen und physikalischen Eigenschaften auch ein gutes Aufnahmevermögen für die meisten der über 30 chemischen Elemente besitzen, die im HAW vertreten sind /36/.

Es sind auch andere Matrices in der Diskussion bzw. Entwicklung. Insbesondere werden für die Einbettung keramische Körper vorgeschlagen, in denen die Spaltprodukte und α -Strahler chemisch spezifisch gebunden vorliegen können /37/. Die ausgewählten Wirtsphasen finden sich im allgemeinen in der Natur und haben dort ihre Stabilität in geologischen Zeiträumen bewiesen. So bestechend dieses Konzept ist, so muß doch dagegen eingewendet werden, daß kristalline Körper in einem Zustand hoher Ordnung vorliegen und deshalb auf Änderung der che-

mischen Zusammensetzung empfindlich reagieren. Eine Verfestigung aller Spaltproduktelemente und α -Strahler in eine einzige keramische Matrix ist deshalb nicht in einfacher Weise zu verwirklichen. Vielmehr scheint zur Verwirklichung des Konzepts zunächst eine Aufteilung des HAW in verschiedene chemisch-kristallographische Fraktionen erforderlich zu sein. Außerdem wäre eine Technik zur Herstellung der keramischen Produkte zu entwickeln und zu demonstrieren. Bisher sind so hohe Temperaturen erforderlich, daß ein Teil der Spaltprodukte bereits verflüchtigt wird. Grundsätzlich darf die thermodynamische Stabilität des Wirtsmaterials durch den Einbau von vielen Spaltproduktelementen nicht beeinträchtigt werden.

Die Verglasung radioaktiver Abfälle ist demgegenüber eine bereits erprobte Technik. Sowohl Entwicklungsarbeiten zur Rezeptur geeigneter Gläser und deren Charakterisierung als auch Verfahrens- und Anlagenentwicklungen sind weltweit in großem Umfang betrieben worden und werden weiterhin durchgeführt /38/. Im folgenden soll deshalb auf die Verglasung hochaktiver Spaltproduktlösungen näher eingegangen werden.

Verglasung hochradioaktiver Spaltproduktlösungen

Gläser sind weitgehend amorphe Substanzen. Auf Grund der wenig ausgeprägten Fernordnung kann ein Glas Wirtssubstanz für eine Vielzahl von Elementen sein. Diese Eigenschaft macht Glas zu einer gut geeigneten Matrix für die Verfestigung von HAW, der wie bereits erwähnt eine große Zahl von Elementen enthält. Günstig für die Verfestigung ist auch der - gegenüber vergleichbaren keramischen Stoffen - niedrige Schmelzpunkt der Gläser; eine Verflüchtigung der Spaltprodukte in merklichem Umfang während des Schmelzprozesses kann deshalb vermieden werden. Für die Fixierung von Spaltprodukten wird heute vorwiegend Borosilikatglas verwendet bzw. in Betracht gezogen, Phosphatgläser sind demgegenüber in der letzten Zeit ganz in den Hintergrund getreten.

In Borosilikatgläsern können bis zu 20 % Abfalloxide eingebaut werden, ohne daß es zur Ausscheidung separater Phasen (z. B. Alkalimolybdate und -chromate) kommt oder daß eine Beeinträchtigung der Eigenschaften des Glases erfolgt. In Versuchen zeigen derartige Gläser gegenüber destilliertem Wasser Auslaugraten in der Größenordnung von 10^{-4} g/cm²d bei 100°C; gegenüber quinärer Salzlauge sind die Auslaugraten mit etwa 10^{-5} g/cm²d bei sonst gleichen Bedingungen günstiger /39/.

Eine Rekristallisation der Borosilikatgläser tritt bei Temperaturen oberhalb 500° ein. Da sich durch diese Strukturumwandlung die Auslaugrate erhöhen kann, müssen Spaltproduktbeladung und die Abmessungen des Glasblocks so gewählt werden, daß die Zentraltemperatur des Blocks unterhalb 500°C bleibt. Die Beständigkeit des Glases gegen Strahlungseffekte ist nach Zeitraffer-Untersuchungen sehr gut /40/.

Für die Verwendung von Borosilikatgläsern lassen sich somit eine Reihe von positiven Eigenschaften anführen:

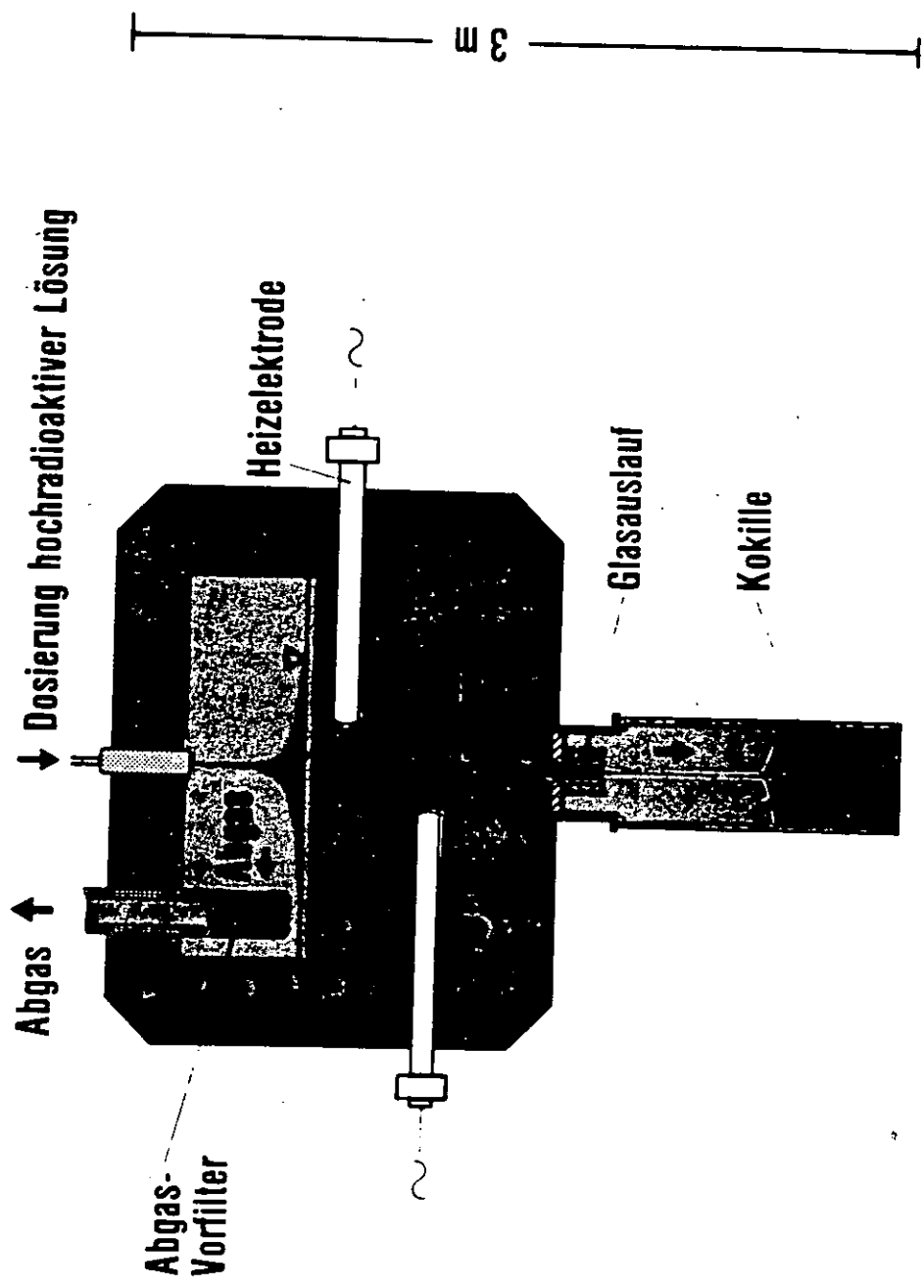
- Gute mechanische und thermische Stabilität
- Relativ gute Wärmeleitfähigkeit
- Auslaugbeständigkeit
- Strahlenbeständigkeit
- Gute Aufnahmefähigkeit für Spaltprodukte und α -Strahler
- Leichte Herstellbarkeit

In der Bundesrepublik Deutschland sind seit fast zwei Jahrzehnten Verfahrens- und Anlagenentwicklungen zur Verglasung hochradioaktiver Abfälle durchgeführt worden. Im folgenden soll der Stand der Entwicklung kurz dargestellt und die Verglasung von hochradioaktiven Abfällen einer Wiederaufarbeitungsanlage vorgestellt werden.

Verfahren und Versuchsanlagen zur Verglasung

Im Prinzip sind sich alle Verglasungsverfahren sehr ähnlich: Nach Herstellung einer konzentrierten Lösung (HAWC) werden die Spaltproduktnitratlösungen getrocknet und anschließend kalziniert, d. h. zu Oxiden zersetzt. Der Feststoff wird dann mit einem Glaspulver gemischt und das HAWC-haltige Glas erschmolzen. Es gibt allerdings auch Verfahren, bei denen der HAWC ohne Zwischenbehandlung in den Glasschmelzofen eingespeist wird.

Die einfachsten und ältesten Verglasungsverfahren sind die "Pot-Prozesse", bei denen der HAWC mit dem Glaspulver in einem Endlagerbehälter erhitzt wird. Das Konzentrieren, Denitrieren (thermisch) und Erschmelzen des Glases erfolgt hier in einem einzigen Reaktionsgefäß. Da die Durchsätze der Pot-Prozesse unbefriedigend waren, wurden andere Verfahren entwickelt, bei denen der Verglasungsprozeß in mehrere Schritte unterteilt wird. In Deutschland wurden z. B. das VERA-Verfahren im Kernforschungszentrum Karlsruhe und das PHOTO/PAMELA-Verfahren der Firma Gelsenberg AG entwickelt. Diese Verfahren sind



Basis der gegenwärtigen deutschen Entwicklung, die in Mol/Belgien unter dem Namen PAMELA durchgeführt wird.

Kernstück des neuen PAMELA-Verfahrens ist die direkte Einspeisung der Spaltproduktlösung in einen keramischen Schmelzofen. Keramische Schmelzöfen bestehen aus einer keramischen Wanne, die Heizung erfolgt durch Joule'sche Wärme über Elektroden, die in die Glasschmelze eingetaucht sind. Die Entladung der Schmelzöfen erfolgt chargenweise. Im PAMELA-Verfahren vereinigen sich somit die Einfachheit der Pot-Verfahren mit der langen Lebensdauer und dem hohen Durchsatz eines keramischen Schmelzofens /41/.

Neben dem PAMELA-Verfahren existiert auch das, bei der deutschen Planung ebenfalls in Betracht gezogene französische AVM-Verfahren, das bereits im Jahre 1978 den Heißbetrieb aufgenommen und HAW-Lösungen in technischem Maßstab verglast hat.

Hauptkomponente des AVM-Verfahrens ist ein Drehrohrföfen, in dem die HAW-Lösung denitriert und zusammen mit einem Glaspulver zur Trockne gebracht wird. Das getrocknete Gemisch fällt dann in einen metallischen Schmelztiegel; die Schmelze wird in metallische Endlagerbehälter abgefüllt.

Ein dem AVM-Verfahren ähnlicher Prozeß ist der in der Kernforschungsanlage Jülich entwickelte FIPS-Prozeß. Zu diesem Verfahren ist eine Heißzellenanlage in Betrieb genommen worden, mit der grundsätzliche Untersuchungen zur Verglasung von Spaltprodukten durchgeführt werden /42/.

Fester radioaktiver Abfall

Bei der Auflösung des Brennstoffs fallen zwei Sorten fester Abfall an. Er besteht einmal aus dem Brennstoffhüllmaterial (Zircaloy oder Edelstahl) und zweitens aus dem in Salpetersäure schwer löslichen Bestandteilen, dem sog. Feedklärschlamm.

Die Konditionierung der Hüllen erfolgt bisher durch Einbettung in Zement. Eines von mehreren alternativen Verfahren zur Zementierung, das vor allem auf eine Volumenminimierung zielt, ist die direkte Lagerung der durch Heißpressen aus den Hüllen hergestellten kompakten Metallblöcke in Salzformationen. Die ausgezeichnete Korrosionsfestigkeit von Zircaloy gegenüber Salz läßt

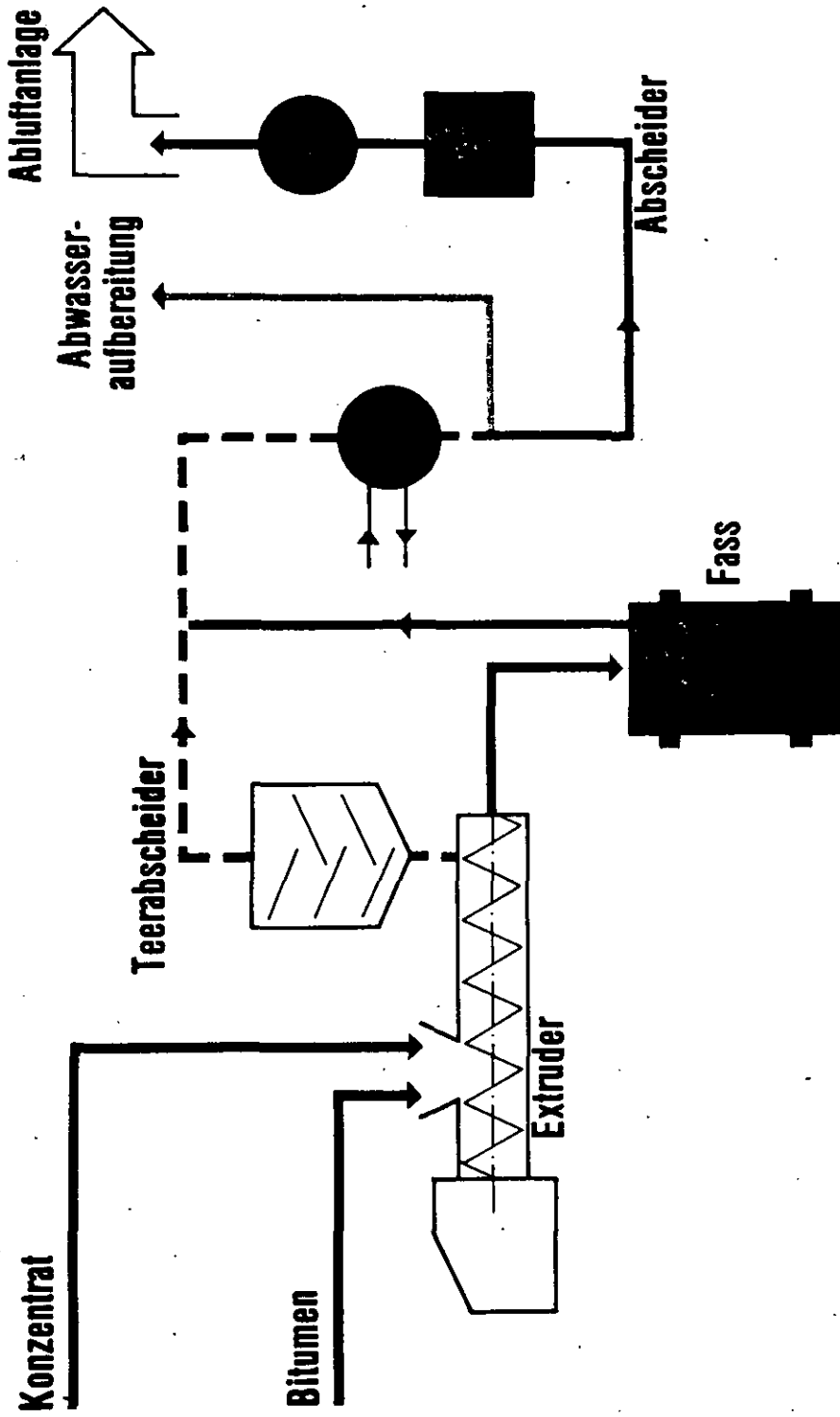


Abb. 2.6: Verfestigung von LAW/MAW

dieses Verfahren als aussichtsreich erscheinen.

Der Feedklärschlamm besteht zu einem großen Teil aus Edelmetallen, die in unlöslicher Form vorliegen und schließt Spuren von Aktiniden mit ein. Auch hier ist die Einbettung in Zement ein bewährtes Konditionierungsverfahren. An der Entwicklung verbesserter Endlagerprodukte wird gearbeitet. Da die Menge des Feedklärschlammes klein ist, faßt man als Alternative auch eine gemeinsame Verglasung mit dem HAW ins Auge oder die Einbettung des Feedklärschlammes in keramische, porzellanartige Matrices.

Die verfestigten hochradioaktiven Spaltprodukte enthalten etwa 99,9 % der Radioaktivität, nehmen aber nur etwa 1 % des ausgestoßenen Waste-Volumens in Anspruch /43/. D. h. etwa 99 % des Waste-Volumens werden von mittel- und schwach-aktivem Abfall in Anspruch genommen. Wegen der großen hierbei zu bewältigenden Mengen stehen bei der Behandlung dieser Abfälle zunächst einmal Verfahren zur Konzentration der Radioaktivität im Vordergrund. Flüssige Abfälle können durch Verdampfen, Fällungen oder Ionenaustausch im Volumen reduziert werden. Die Volumenreduktion von brennbaren festen Abfällen geschieht durch Verbrennen, Pyrohydrolyse oder Naßveraschung; ähnliches gilt auch für brennbare flüssige Abfälle. Üblicherweise werden die anfallenden Konzentrate in Zement fixiert. Für gewisse Arten von Abfall kommt auch die Bitumierung in Frage, wie sie in anderen Ländern (z. B. Frankreich und Belgien) im Einsatz ist.

2.8 Mischoxidbrennstoff-Herstellung

Das in LWR-Brennstoffen erbrütete Plutonium löst sich in Salpetersäure gut auf. Dagegen ist reines Plutoniumdioxid, PuO_2 , im Gegensatz zu Urandioxid, UO_2 , in Salpetersäure nur schwer auflösbar. Die Auflösbarkeit von U/Pu-Mischbrennstoffen hängt sehr stark vom verwendeten Herstellungsverfahren ab. Es gibt heute Verfahren, die eine nahezu 100 %-ige Auflösung gewährleisten.

Die Herstellung von Mischoxid-Brennstoff ist in der Bundesrepublik Deutschland von der Firma ALKEM durch die Entwicklung des AUPUC-Verfahrens gelöst worden /44/. Bei diesem Verfahren wird eine gleichzeitige Fällung (Kopräzipitation) von Uran und Plutonium dadurch erreicht, daß Plutonium nicht im vierwertigen

Zustand als $\text{Pu}(\text{NO}_3)_4$, sondern ebenso wie Uran im sechswertigen als $\text{PuO}_2(\text{NO}_3)_2$ in Lösung vorliegt. Das Verfahren ist erprobt, und es liegen bereits Produktionserfahrungen vor.

Die Herstellung von Mischoxid-Brennstoff läßt sich aber auch auf anderen Wegen lösen. Die belgische Firma Belgonucleaire entwickelt z. B. einen Prozeß, bei dem auf den sechswertigen Zustand des Plutoniums verzichtet werden kann /45/. Eine Kopräzipitation wird hier erzielt, indem die schwermetallhaltige Lösung vor der Fällung in kleine Tropfen zerteilt wird. Dieses Verfahren basiert auf Entwicklungsarbeiten zur Herstellung von HTR- Brennstoff, die in der Kernforschungsanlage Jülich durchgeführt werden.

3. Betriebserfahrungen von Wiederaufarbeitungsanlagen

Die Wiederaufarbeitung bestrahlter Kernbrennstoffe kann inzwischen auf eine mehr als 30jährige Erfahrung zurückblicken. Die nachfolgende Tabelle zeigt die bisher durchgesetzten Mengen /46,47/.

Tabelle 2: Für die Wiederaufarbeitung wesentliche Daten verschiedener Brennelementtypen und ihre bislang aufgearbeiteten Mengen

Brennelementtyp	Abbrand [Mwd/t]	Kühlzeit vor Aufarbeitung	bislang durch- gesetzte Mengen [t Uran]
BE im militärischen Bereich	< 1.000	< 100 Tage	300.000 - 800.000 ¹⁾
BE aus Gas-Graphit- Reaktoren (Magnox)	< 7.000	~ 1 Jahr	ca. 30.000
Leichtwasserreaktor- Brennelemente	20.000-40.000	3-7 Jahre	ca. 1.400

Der überwiegende Teil dieser Brennstoffmengen wurde nach dem oben bereits beschriebenen PUREX-Verfahren aufgearbeitet. Dabei ist der Vergleich der Wiederaufarbeitung von militärischem Brennstoff mit der von LWR-Brennstoff durchaus statthaft:

Die zu verarbeitende Radioaktivitätsmenge liegt bei niedrigem Abbrand und kurzer Kühlzeit (wie bei militärischem Brennstoff) in der gleichen Größenordnung wie bei hohem Abbrand und langer Kühlzeit (wie bei LWR-Brennstoff) /48,47/.

Eine Übersicht über die militärischen und zivilen Wiederaufarbeitungsanlagen gibt die nachfolgende Aufstellung (Tabelle 3) /49,50,51/. Die Erfahrungen, die man in diesen Anlagen mit dem PUREX-Prozeß erzielt hat, sind als gut zu bezeichnen. Sie zeigen, daß die entscheidenden Probleme des Wiederaufarbeitungsprozesses gelöst sind und die sicherheitstechnische Realisierung der Wiederaufarbeitung machbar ist.

1) Die Unsicherheit in der Mengenangabe ist darauf zurückzuführen, daß keine direkten Angaben verfügbar sind und man auf indirekt ermittelte Werte angewiesen ist; der wahre Zahlenwert dürfte jedoch eher im oberen als im unteren Bereich liegen.

Tabelle 3: Wiederaufarbeitungsanlagen

(Stand: Ende 1982)

BEZEICHNUNG U. STANDORT	JAHR DER INBETRIEBNAHME	PROZESSART	KAPAZITÄT	BISHER DURCHGESETZTE MENGEN [T SM]	BEMERKUNG
I C P P IDAHO FALLS	KALT: 1952 HEISS: 1953	REDOX CHEM. ZERLEGUNG	15-50 KG U/D JE NACH BE-TYP	?	MILITÄRANLAGE AB ENDE DER 30ER JAHRE: PUREX
S R P AIKEN	KALT: 1952 HEISS: 1954	PUREX CHEM. ZERLEGUNG	MAX. 14 T U/D	30.000 (1954 - 76)	MILITÄR. ANLAGE U. ENTSORGUNG VON DEMONSTRATION REAKTOREN
H P P HANFORD	HEISS: 1956	PUREX CHEM. ZERLEGUNG	7,6 T U/D	?	MILITÄRANLAGE. 1972 STILLGELEGT. WIEDERER- ÖFFNUNG VORGEGEHEN
N F S WEST VALLEY	HEISS: 1966	PUREX CHOP / LEACH	1 T/D (40 KG/D FÜR HEU)	640 (1966 - 72)	1972 AUS WIRT- SCHAFTLICHEN GRÜNDEN STILLGELEGT
M F R P ILLINOIS	KALT: 1974	AQUAFLUOR CHOP / LEACH	1,1 T/D	-	ANLAGE WEGEN NICHT AUS- GEREIFTEN PROZESSES NICHT HEISS IN BETRIEB GENOMMEN
B N F P BARNWELL	KALT: 1977	PUREX CHOP / LEACH	5 T/D	-	AUS POLITISCHEN GRÜNDEN BISHER NICHT IN BETRIEB GENOMMEN. INBETRIEB- NAHME 1987 MÖGLICH
UP1 MARCOULE (F)	HEISS: 1958	PUREX CHEM. ZERLEGUNG	1-2 T U/D	12.000 (1958 - 81)	MILITÄRISCHE U. IN- DUSTRIELLE ANLAGE
UP2 CAP DE LA HAGUE (F)	KALT: 1965 HEISS: 1966	PUREX CHEM. ZERLEGUNG	3 T U/D	3.900 (1966 - 81)	INDUSTRIELLE ANLAGE FÜR MAGNOX-BE
H A O CAP DE LA HAGUE (F)	HEISS: 1976	OXID-HEAD END (CHOP / LEACH) FÜR UP2	2 T U/D	510 (1976 - 82)	INDUSTRIELLE ANLAGE IN VERBINDUNG MIT UP2 LWR-BE VERARBEITET
WINDSCALE 1 SELLAFIELD (GB)	HEISS: 1952	BUTEX MECHAN. ZERLEGUNG	?	?	MILITÄR. ANLAGE. 1964 STILLGELEGT UND ZUR HEAD-END PLANT UMGEBAUT
NEW SEPARATION PLANT SELLAFIELD (GB)	HEISS: 1964	PUREX CHOP / LEACH	5 T U/D	20.000 (1964 - 81)	INDUSTRIELLE ANLAGE FÜR MAGNOX-BE; TEILWEISE MILITÄRISCH
HEAD-END PLANT SELLAFIELD (GB)	KALT: 1968 HEISS: 1969	BUTEX CHOP / LEACH	1,3 T U/D	100 (1969 - 73)	INDUSTRIELLE ANLAGE FÜR LWR-BE IN VERBINDUNG MIT NEW SEP. PLANT. 1973 NACH STÖRFALL STILLGELEGT
TROMBAY PLANT TROMBAY (IND.)	HEISS: 1965	PUREX CHEM. ZERLEGUNG	0,25 T/D	?	VERSUCHSANLAGE FÜR MAGNOX-BE
EUROCHEMIC MOL (B)	KALT: 1965 HEISS: 1966	PUREX CHEM. ZERLEGUNG	5 KG/D F. HEU MAX. 350 KG/D FÜR ANDERE BE	200 T NIEDRIG ANGER. U 35 T HEU	INDUSTRIELLE MEHR- ZWECKANLAGE. 1974 AUS WIRTSCHAFTLICHEN GRÜNDEN STILLGELEGT
W A K KARLSRUHE (D)	KALT: 1970 HEISS: 1971	PUREX CHOP / LEACH	200 KG/D	114	INDUSTRIELLE VERSUCHS- ANLAGE
TOKAI MURA TOKAI (J)	KALT: 1975 HEISS: 1977	PUREX CHOP / LEACH	1 T/D	170 (1977 - 82)	INDUSTRIELLE PILOT PLANT. BIS OKT.81 WAR DIE AUFARBEITUNG AUF 99 T BESCHRÄNKT
TARAPUR PLANT TARAPUR (IND.)	HEISS: 1978	PUREX CHOP / LEACH	0,5 T/D	?	INDUSTRIELLE ANLAGE FÜR MAGNOX- UND LWR-BE
UDSSR	?	PUREX CHOP / LEACH	?	?	ANLAGE VERARBEITET NIEDRIG ANGEREICHERTEN UO ₂ -BRENNSTOFF

Zwar hat es in verschiedenen Wiederaufarbeitungsanlagen Störfälle gegeben - was in technischen Anlagen ganz allgemein nicht auszuschließen ist - jedoch sind hierbei weder Menschen durch die Einwirkung von radioaktiver Strahlung zu Tode gekommen noch ist die Bevölkerung der umliegenden Gebiete in irgendeiner Weise in Mitleidenschaft gezogen worden. Dies zeigt eindrucksvoll den hohen sicherheitstechnischen Entwicklungsstand der Wiederaufarbeitungstechnologie.

Häufig wird auch die Verfügbarkeit der Wiederaufarbeitungsanlagen als sehr niedrig eingestuft und dies dann als ein Kriterium für den niedrigen Stand der Wiederaufarbeitungstechnologie angegeben.

Hierzu ist aber folgendes zu bemerken:

Wiederaufarbeitungsanlagen im militärischem Bereich haben schwankende Durchsätze, die stark von der jeweiligen politischen Weltlage abhängig sind. Hier ist es daher nicht möglich, durchschnittliche Verfügbarkeitswerte anzugeben. Dennoch kann die Betriebsbereitschaft der Wiederaufarbeitungsanlagen im militärischen Bereich als gut bezeichnet werden. Z. B. ist die Wiederaufarbeitungsanlage in Savannah River nun seit 30 Jahren in Betrieb und arbeitet weiterhin zufriedenstellend /52/.

Im zivilen Bereich haben wir eine andere Situation. Die durchschnittlichen Verfügbarkeiten der kommerziellen Anlagen der 1. Generation sind zum Teil relativ niedrig, wenn man die maximalen Durchsatzzahlen mit den tatsächlich erreichten vergleicht. Hieraus jedoch den Schluß zu ziehen, die Wiederaufarbeitungstechnologie sei nicht genügend ausgereift, ist sicherlich nicht richtig. Es müssen vielmehr für jede Anlage die wirklichen Gegebenheiten betrachtet werden.

Beispielhaft soll dies für die im Zusammenhang mit niedriger Verfügbarkeit genannten Anlagen West Valley, EUROCHEMIC, UP 2 in La Hague und Tokai Mura getan werden.

Für alle Anlagen ist dabei zu berücksichtigen, daß in der Inbetriebnahmephase der volle Nominaldurchsatz erst mehr oder weniger langsam erreicht wird. Was für konventionelle Produktionsanlagen zutrifft, gilt auch für Wiederaufarbeitungsanlagen. Leider wird diese Tatsache häufig übersehen.

Nuclear Fuel Services in West Valley /53/

Diese erste kommerzielle Anlage war ausgelegt auf einen Durchsatz von 1 t/d LWR-Brennstoff oder auf einen Durchsatz von 40 kg/d hochangereicherten Brennstoff. Die Auslegung einer Anlage auf zwei so unterschiedliche Brennstoffe hat sich nicht bewährt, da stets ein beträchtlicher Teil der Gesamtzeit für die Umstellung der Anlage von einem Brennstofftyp auf den anderen benötigt wurde. Von diesem Nachteil abgesehen war jedoch das Betriebsverhalten als gut zu bezeichnen. Es gab zwar verschiedene Mängel im Abgas- und im Säurerückgewinnungssystem, die bei einem beantragten Ausbau der Anlage beseitigt werden sollten. Im Genehmigungsverfahren für diesen Ausbau zeichneten sich jedoch Auflagen ab, die einen weiteren Betrieb der Anlage als unwirtschaftlich erscheinen ließen. Die Anlage wurde daher aus wirtschaftlichen Erwägungen infolge hohe Kosten verursachender Nachrüstungen und nicht wegen technischen Unvermögens stillgelegt.

EUROCHEMIC /54,55,56/

Diese Anlage war ebenfalls als Mehrzweckanlage ausgelegt und benötigte daher beträchtliche Umstellzeiten. Diese Auslegungsart wurde gewählt, da in der EUROCHEMIC-Anlage die Wiederaufarbeitung von verschiedenen Brennstoffarten mit unterschiedlichem Abbrand sowie unterschiedlicher Anreicherung demonstriert werden sollte.

Zudem diente EUROCHEMIC als Gemeinschaftsunternehmen von 13 OECD-Staaten vor allen Dingen dem Ziel, diesen Staaten betriebliche Erfahrungen in der Wiederaufarbeitungstechnologie zu liefern. Nach anfänglichen Schwierigkeiten während der Inbetriebnahmephase, die durch nachträglichen Einbau einiger zusätzlicher Apparate behoben wurden, war das Betriebsverhalten der Anlage sehr gut. Bei den einzelnen Aufarbeitungskampagnen der verschiedenen Brennstofftypen konnten hohe Verfügbarkeiten erzielt werden. Die Anlage wurde 1974 aus Konkurrenzgründen stillgelegt, da man seinerzeit glaubte, in Westeuropa genügend Wiederaufarbeitungskapazität zur Verfügung stellen zu können.

Inzwischen ist die Anlage völlig dekontaminiert worden und soll nach einigen Änderungen, besonders in der Eingangsstufe, wieder in Betrieb genommen werden. Dies würde sicherlich nicht geschehen, wenn die vorherigen Betriebserfahrungen negativ gewesen wären.

UP 2 - Anlage in Cap de la Hague /50,57,58/

Die sogenannte UP 2 - Anlage wurde 1966 in Betrieb genommen und sollte nur den aus französischen Reaktoren kommenden MAGNOX-Brennstoff aufarbeiten. Die durchschnittliche Verfügbarkeit für die Aufarbeitung von MAGNOX-Brennstoff betrug dabei von 1967 bis 1980 ca. 70 %. 1978 wurde sogar eine Verfügbarkeit von 93 % erreicht.

Um ursprünglich nicht vorgesehenen LWR-Brennstoff in der UP 2 - Anlage aufarbeiten zu können, wurde hierfür eine gesonderte Eingangsstufe gebaut (HAO genannt), die 1976 den Betrieb aufnahm.

In der Kombination HAO plus UP 2 kann nun auch LWR-Brennstoff aufgearbeitet werden. Anfängliche Schwierigkeiten mit dem HAO-Teil scheinen inzwischen überwunden zu sein. Eine Verfügbarkeitsangabe für HAO kann jedoch nicht gemacht werden, da eine laufende LWR-Aufarbeitung nicht möglich ist, solange noch MAGNOX-Brennstoff aufzuarbeiten ist. Die Aufarbeitung dieses Brennstofftyps in der UP 2 hat Vorrang, da wegen der andersartigen Zusammensetzung der Brennelementhülle des MAGNOX-Brennstoffs dieser wegen Korrosionsgefahr nicht längere Zeit zwischengelagert werden kann (im Gegensatz zum LWR-Brennstoff, der mit einer korrosionsfesten Hülle versehen ist).

Aufbauend auf den guten Erfahrungen, die mit der Wiederaufarbeitung in Frankreich gesammelt wurden, wird in La Hague eine weitere Anlage gebaut (die UP 3-Anlage), in der nur LWR-Brennstoff aufgearbeitet werden soll und die 1986 den Betrieb aufnehmen soll.

Tokai Mura-Anlage /59,60,61/

Die Tokai Mura-Anlage wird gerne als Beweis für die technisch noch nicht ausgereifte Wiederaufarbeitung im nichtmilitärischen Bereich herangezogen: Bei einer Kapazität von 200 t/a sind seit der 1977 erfolgten Inbetriebnahme bis Ende 1981 knapp über 100 t Brennstoff aufgearbeitet worden; dies käme einer Verfügbarkeit von etwa 10 % gleich.

Diese Aussage ist ein typisches Beispiel dafür, zu welcher falschen Aussagen man gelangt, wenn man die tatsächlichen Gegebenheiten nicht berücksichtigt. Die Tokai Mura-Anlage konnte nämlich gar keine höhere Verfügbarkeit erzielen,

da bis Oktober 1981 die gesamte in der Anlage zu verarbeitende Brennstoffmenge durch ein Votum der US-Regierung auf 99 t begrenzt war.

Die mit der Tokai Mura-Anlage insgesamt gesammelten positiven Erfahrungen führten zum Baubeschluß für eine große Wiederaufarbeitungsanlage mit einem geplanten Durchsatz von 600 t/a, die 1991 in Betrieb gehen soll.

Betrachtet man die mit kommerziellen Wiederaufarbeitungsanlagen der 1. Generation gesammelten Erfahrungen, so läßt sich zusammenfassend sagen:

Aus den bei den ersten Anlagen aufgetretenen Fehlern hat man gelernt und dementsprechend technische Änderungen vorgenommen. Die Summe aller Betriebserfahrungen erlaubt nunmehr in der 2. Generation kommerzielle Anlagen zu bauen, die einen verfahrenstechnisch und sicherheitstechnisch einwandfreien Betrieb gestatten werden.

4. Betriebsstörungen und Störfälle in Wiederaufarbeitungsanlagen

4.1 Kritikalitätssicherheit

Maßnahmen zur Kritikalitätssicherheit in einer Wiederaufarbeitungsanlage dienen der Vermeidung eines unerwünschten "kritischen" Zustandes, bei dem Kettenreaktionen ablaufen. Ein vielfältiger Katalog von geeigneten Maßnahmen steht zur Verfügung, um derartige Kettenreaktionen in den spaltstoffführenden Teilen einer Wiederaufarbeitungsanlage mit einem hohen Grad von Wahrscheinlichkeit auszuschließen.

Bei der Risikobewertung muß man sich auch vergegenwärtigen, daß selbst bei dem sehr unwahrscheinlichen Eintritt eines Kritikalitätsstörfalles die Auswirkungen in einer Wiederaufarbeitungsanlage begrenzt sind, und zwar aus folgenden Gründen: Der Spaltstoff liegt (relativ) verdünnt in Lösung vor, so daß keine großen Energien freigesetzt werden können. Dem entspricht der Befund, daß bei den wenigen Kritikalitätsstörfällen, die sich in WA-Anlagen ereignet haben, in keinem Fall die umschließenden Prozeßbehälter beschädigt oder zerstört wurden. Darüber hinaus halten die Betonwände der Prozeßzellen die gefährdende Neutronenstrahlung weitgehend zurück, so daß kaum eine unmittelbare Gefahr für das beschäftigte Personal besteht.

Die Maßnahmen zur Kritikalitätskontrolle in einer Wiederaufarbeitungsanlage sind stets vorbeugender Art:

(1) Konstruktive Maßnahmen

- Ausführung von Behältern und Apparaten in kritisch-sicherer Geometrie (für die betreffende Spaltstoffzusammensetzung)
- "Heterogene Vergiftung", d. h. Verwendung neutronenabsorbierender Einbauten (Borcarbid, Hafnium) und Füllungen (Borglasraschigringe)
- Ausschaltung von Neutronen-Wechselwirkungen zwischen Behältern mit Spaltstoffen durch den Einbau von Neutronenreflektoren (Beton, Polyäthylen etc.)
- Vermeidung unkontrollierter Querverbindungen (Rohrleitungen) zwischen Bereichen mit sicherer Geometrie und anderen Bereichen

(2) Administrative Maßnahmen

- Massen- bzw. Konzentrationsbeschränkungen
- "Homogene Vergiftung" mit löslichen Neutronengiften (Bor, Gadolinium)
- Neutronenmonitore an Apparaten und Behältern zur meßtechnischen Überwachung des Spaltstoffinventars in Extraktionsapparaten, Verdampfern etc.
- Meßgeräte zur Bestimmung des Spaltstoffs in Brennelementen vor der Auflösung
- Analytische Überprüfung normalerweise spaltstofffreier Prozeßströme auf Spaltmaterial vor einem Transfer; Freigabe der Fördereinrichtung nur auf Anweisung usw.

Diese Methoden kommen je nach Einsatzbereich einzeln oder kombiniert zur Anwendung. Neutronenmonitore haben sich auch im aktiven Bereich von Wiederaufarbeitungsanlagen (Hanford, WAK u. a.) zur Überwachung des Spaltstoffs (insbesondere des Plutoniums) bewährt.

Vom Einsatz homogener Neutronengifte wird wenig Gebrauch gemacht, da sie teuer sind und relativ aufwendige Methoden zur Feststellung ihrer Präsenz erfordern.

Die Auswirkungen eventueller Kritikalitätsstörfälle werden bei der Planung einer Wiederaufarbeitungsanlage sorgfältig analysiert und die Maßnahmen zu ihrer Verhütung festgelegt. Die Überprüfung erfolgt durch unabhängige Sachverständige. Den Sicherheitsbetrachtungen legt man einen hypothetischen Störfall mit 10^{18} Spaltungen zugrunde. Die damit rechnerisch angesetzte Energie- und Aktivitätsfreisetzung liegt zehnmals höher als bei der Mehrzahl der in der Vergangenheit beobachteten tatsächlichen Störfälle.

In Verbindung mit Wiederaufarbeitungsanlagen sowie anderer Anlagen des nuklearen Brennstoffkreislaufs wurden seit 1942 einige dutzend Kritikalitätsunfälle gemeldet. Beispielsweise trat 1970 im Werk Windscale (heute Sellafield) der British Nuclear Fuels Limited (BNFL) ein solcher Störfall auf /62/. In einem Anlagenteil zur Wiedergewinnung von Plutonium aus Rückständen wurde am 24. August 1970 das aus zahlreichen Strahlungsüberwachungsgeräten zur Kritikalitätskontrolle bestehende Alarmsystem ausgelöst. Nach der sofort eingelei-

teten Evakuierung des Gebäudes ergab die Überprüfung der Personendosimeter keine Anzeichen auf eine nennenswerte Strahlenbelastung. In der Plutonium-Wiedergewinnungsanlage zeigte sich zwar ein etwas höherer Strahlenpegel als normal, Messungen der Spaltprodukt-Zerfallsraten in der Umgebung der plutoniumführenden Behälter innerhalb der abgeschirmten Prozeßzelle führten aber zu dem Ergebnis, daß die gesamte Energie der Exkursion nur wenige 10^{15} Spaltungen und daß die Dauer der Kritikalität nicht mehr als einige Sekunden ... betragen haben konnte. Die Ursache für den Kritikalitätszwischenfall war verschlepptes Lösungsmittel (TBP/Kerosin), das in einem Transferbehälter aufgrund der bestehenden Dichteverhältnisse dauerhaft eingeschlossen war: Durch die in den Behälter aufeinanderfolgend eingeleiteten Chargen wäßriger Plutoniumnitrat-Lösung reicherte sich das Plutonium allmählich in der eingeschlossenen organischen Phase an und führte schließlich zur Bildung eines kritischen Zustandes der Lösung. Nach Abschluß der umfangreichen Untersuchungen und Ausführung von Änderungen an dem betreffenden Anlagenteil wurde der Betrieb der Plutonium-Wiedergewinnungsanlage am 6. Dezember 1970 wieder aufgenommen und seitdem reibungslos fortgeführt.

4.2 Die Vermeidung von Bränden und Explosionen

Bereits bei der Planung einer Wiederaufarbeitungsanlage werden Einrichtungen vorgesehen und Maßnahmen festgelegt, die geeignet sind, Brände und Explosionen beim späteren Betrieb mit großer Sicherheit auszuschließen. Die Grundlagen dafür bilden die einschlägigen Richtlinien, Verordnungen und Vorschriften, wie sie auch für konventionelle chemische Anlagen angewendet werden, und wie sie z. B. auch in den Unfallverhütungsvorschriften festgelegt sind. Ergänzende oder auf die spezielle Problematik zugeschnittene Vorkehrungen (Zwangsbelüftung, zusätzliche Abluftfilter) kommen für Anlagenbereiche zur Anwendung, in denen radioaktive Stoffe in solchen Mengen gehandhabt werden, daß sie entsprechend der Strahlenschutzverordnung Kontroll- oder Sperrbereiche darstellen. Sicherheitstechnisch wichtige Einrichtungen werden zudem so ausgelegt, daß die Erfüllung ihrer Aufgabe nicht durch Brände oder Explosionen verhindert wird.

Wiederaufarbeitungsanlagen sind nicht in höherem Maße brandgefährdet als Chemieanlagen, die anorganische Stofftrennungen auf hydrometallurgischem Wege durchführen. Bei dem chemischen Trennprozeß kommen weder hohe Temperaturen zur

Anwendung - die Maximaltemperaturen im Auflöser und in den Verdampfern betragen etwa 135° C - noch ist das Arbeiten unter Druck vonnöten. Durch die Art des Verfahrens sind jedoch brennbare Stoffe vorgegeben, die unter ungünstigen Bedingungen zu einem Brand oder zu Explosionen führen können. Auf diese soll im folgenden eingegangen werden.

Die Hüllrohre der Brennstäbe bestehen in der Mehrzahl der Fälle aus Zircaloy, einer Zirkonlegierung mit Zinn- und Eisenanteilen. Das kompakte Metall kann normalerweise nicht in Brand gesetzt werden. Es sind jedoch Fälle von Entzündungen in US-amerikanischen Anlagen bekannt geworden als metallische Uranstäbe mit Zircaloyumhüllung aufgearbeitet wurden. Die Überprüfung der Ursachen hat gezeigt, daß sich das metallische Uran, das selbst an der Luft brennbar ist, mit dem Zirkon legiert und so dessen Brennbarkeit bewirkt hatte /63/. Die Auswirkungen waren gering und hatten keine nennenswerten Dosisbelastungen zur Folge. Nach allen vorliegenden Erfahrungen mit modernen Brennelementen, die Urandioxid in Zircaloyhüllrohren enthalten, besteht diese Gefahr bei der Aufarbeitung von LWR-Brennstoffen nicht.

Allen Eventualitäten, auch der grundsätzlich möglichen Entflammung von feinzerteilten Zircaloyspänen, beugt man vor, indem die Zircaloyabfälle unter Wasser aufbewahrt oder frühzeitig mit Zement verfestigt werden. Die Zellen zur mechanischen Behandlung der Brennelemente sind außerdem mit Feuerlöscheinrichtungen ausgestattet, mit denen auch Metallbrände schnell und wirksam gelöscht werden könnten.

Zu den brennbaren Stoffen zählt auch das organische Lösungsmittel, mit dem im chemischen Trennverfahren die Wertstoffe Uran und Plutonium extrahiert werden. Mit der Einführung des PUREXverfahrens ist auch hier ein bedeutender Schritt in Richtung des verbesserten Brandschutzes getan worden. Die Siedetemperatur des Extraktionsmittels n-Tributylphosphat (TBP) liegt bei 289° C, die Siedetemperatur des ebenfalls benötigten Verdünnungsmittels (heute überwiegend n-Dodekan) bei 216° C. Daher sind die Risiken einer Entzündung gegenüber früheren Verfahren, die mit anderen Extraktionsmitteln (vgl. Tabelle 1) gearbeitet haben, gering. Dafür spricht auch die relativ hohe Entzündungstemperatur des erhitzten Gemisches 30% TBP und 70% Dodekan bei ca. 80° C, dem sogenannten Flammpunkt.

Was für die Entzündungsmöglichkeit des beim PUREX-Verfahrens verwendeten

Tributylphosphat gilt, trifft zum Teil in stärkerem Maße für die bei älteren Wiederaufbereitungsverfahren verwendeten Lösungsmittel zu, so etwa bei dem in der britischen Windscale-Anlage eingesetzten Dibutoxy-Dibutyläther: Im September 1973 ereignete sich eine starke Aerosol-Kontamination in den Bedienungsgalerien der Eingangsstufe für oxidische Brennelemente (B 204) /64/. Der Störfall ereignete sich beim Wiederanfahren des BUTEX-Vorreinigungszyklus. Unlösliche Spaltprodukte und Zirkonfeinteile, die sich in dem Dosierrad vor der HA-Kolonnen abgesetzt und während des Stillstandes selbst erhitzt hatten, führten beim Einfüllen des Lösungsmittels Butex zu einer Explosion. Aufgrund des Druckaufbaus wurden radioaktive Aerosole über Instrumentenleitungen in die Bedienungsgalerie ausgetragen. In dem am stärksten kontaminierten 7. Stock wurde stellenweise das hundertfache der maximal zulässigen Konzentration an Ruthen-106 gemessen. 35 Arbeiter wurden kontaminiert. Die Hautkontaminationen konnten bei 33 Arbeitern sofort, bei zwei Arbeitern innerhalb von zwei Tagen beseitigt werden. Die Wirkungen der äußeren Kontamination wurden als unbedeutend festgestellt. Bei den in die Lungen aufgenommenen Aktivitäten handelte es sich überwiegend um Ruthen-106. Messungen ergaben für einen Arbeiter eine Aufnahme von circa 40 mCi, bei den übrigen 34 Arbeitern zwischen 0,01 und 5,0 mCi.

Rückstände von Tributylphosphat können beim Eindampfen von Prozeßlösungen zur Bildung von "red oil" führen, einem Gemisch von Uranylнитrat, verdünnungsmittelfreiem Tributylphosphat und Zersetzungsprodukten des TBP. Diese Substanz kann sich in der Hitze und bei Gegenwart von Salpetersäure explosionsartig zersetzen /65/. Wirksame Gegenmaßnahmen zur Vermeidung dieses Risikos sind entwickelt worden. Man entfernt die TBP-Rückstände aus den Produktlösungen durch sorgfältige Wäsche mit dem Verdünnungsmittel n-Dodekan oder durch eine Dampfwäsche, sogenanntes "steam stripping"; außerdem setzt man die Dampftemperatur bei der Beheizung der Verdampfer so weit herunter, daß die Zündtemperatur des "red oil" (bei ca. 150° C) nicht erreicht wird. Diese Maßnahmen haben sich als ausreichend bewährt. Wo dennoch in neuerer Zeit Explosionen auftraten, wie 1980 in der kanadischen Urankonversionsanlage in Port Hope, sind diese Randbedingungen nicht konsequent eingehalten worden /66/.

Eine weitere mögliche Explosionsquelle wird in der radiolytischen Bildung von Wasserstoff gesehen. Wenn radioaktive Substanzen in Lösung vorliegen, wird ein Teil ihrer Strahlungsenergie in der Flüssigkeit absorbiert, was zur Bildung von Molekülbruchstücken führen kann. Theoretisch ist zu erwarten, daß in

wäßrigen Lösungen Wasserstoff aus der Flüssigkeit freigesetzt wird, sich im Gasraum eines Behälters ansammelt und mit der vorhandenen Luft ein explosionsfähiges Gemisch bildet, sobald mehr als 4 Volumenprozent Wasserstoff vorhanden sind. Messungen des Wasserstoffgehalts in HAW-Tanks der WAK /67,68,69/ ergaben obere Grenzen für Wasserstoff-Freisetzungen, die weit unterhalb von 4 Volumenprozent lagen, so daß eine Knallgasexplosion durch Radiolyse-Wasserstoff nicht auftreten kann. Die Untersuchungsbefunde zeigten, daß die Wasserstoffkonzentration zunächst sehr geringfügig ansteigt. Nach etwa 30 Stunden stellt sich jedoch ein Sättigungswert bei 4 ppm Wasserstoff in der Luft ein; dieser Wert liegt weit unterhalb der Explosionsgrenze. Selbst bei Ausfall der Behälterventilation besteht daher das Risiko einer Knallgasexplosion nicht.

Nukleare Gefahren durch Brände und Explosionen in einer Wiederaufarbeitungsanlage mit Auswirkungen auf das Betriebspersonal und die Umgebung sind nach dem oben gesagten äußerst gering. Sie werden weiter verringert durch organisatorische Maßnahmen beim Betrieb der Anlage. Betriebshandbücher regeln z. B. die Leitung, die Ausbildung und den Einsatz der Brandschutztrupps, die Unterhaltung der Brandbekämpfungseinrichtungen usw.. Damit werden auch durch aktive bekämpfende Maßnahmen Schäden durch Brand bzw. Explosion so gering wie möglich gehalten.

5. Übergreifende Aspekte

5.1 Kernmaterialüberwachung in Wiederaufarbeitungsanlagen

Überwachungsverpflichtungen für deutsche Anlagen

Die Verarbeitung von Kernmaterial in Wiederaufarbeitungsanlagen war von Anfang an von Überwachungsmaßnahmen begleitet, und dies in mehreren Stufen:

- Aus eigenen wirtschaftlichen wie sicherheitstechnischen Interessen führt ein Anlagenbetreiber Überwachungsmaßnahmen durch, um das verarbeitete Kernmaterial auf seinem Weg durch die Anlage zu verfolgen und Abhandenkommen von Material zu verhindern.
- Zusätzlich erlegt der Staat einem Betreiber per Atomgesetz /70/ Maßnahmen auf, die unter anderem zum Ziel haben, den Diebstahl von Kernmaterial zu verhindern.
- Die Europäische Atomgemeinschaft (EURATOM) /71/ führt, auf der Grundlage der ihr von den Mitgliedstaaten übertragenen Hoheitsrechte, Kontrollen mit dem Ziel durch, einen etwaigen Mißbrauch von Kernmaterial für nicht friedliche Zwecke aufzudecken.
- Schließlich überwacht die Internationale Atomenergie-Organisation (IAEO) das Kernmaterial auf der Grundlage der ihr im Vertrag über die Nichtverbreitung von Kernwaffen /72/ übertragenen Rechte und Verpflichtungen mit dem Ziel, die "rechtzeitige Entdeckung der Abzweigung signifikanter Mengen Kernmaterials" von "friedlichen Verwendungen" für die "Herstellung von Kernwaffen oder anderen Kernsprengkörpern" sowie die "Abschreckung von einer solchen Abzweigung durch das Risiko frühzeitiger Entdeckung" sicherzustellen. Die Prinzipien dieser Überwachung sind im sogenannten Verifikationsabkommen festgelegt.

Während die Betreibermaßnahmen Abzweigungen verhindern sollen, ist es die Aufgabe der internationalen Überwachung durch die IAEO in Verbindung mit der multinationalen EURATOM-Überwachung an das Licht der Öffentlichkeit zu bringen, wenn der Staat selbst Kernmaterial für eine verbotene Waffenproduktion auf die Seite bringt.

Erfahrungen über die Überwachbarkeit von Wiederaufarbeitungsanlagen

Bei der Beurteilung der Überwachbarkeit von Wiederaufarbeitungsanlagen kann vor allem auf die Erfahrungen der multinationalen bzw. internationalen Organisationen EURATOM und IAE0 /73/ verwiesen werden, die unabhängig vom Betreiber arbeiten, dabei aber auch wesentliche Kontrollmaßnahmen des Betreibers der Überwachung unterwerfen. An der Wiederaufarbeitungsanlage Karlsruhe (WAK), dem Beispiel einer kleinen Anlage, erfolgt die Überwachung durch die IAE0 seit 1978, ohne daß diese Überwachungsorganisation jemals Anlaß fand, festzustellen, daß die Ziele der Überwachung nicht erreicht werden konnten. Durch EURATOM wird die WAK seit ihrer Inbetriebnahme überwacht, im Ergebnis ebenfalls ohne Beanstandungen. Als größere Anlage ist seit ihrer Inbetriebnahme die Wiederaufarbeitungsanlage Tokai Mura unter IAE0-Überwachung. Auch für Tokai Mura sind keine Bedenken der Überwachungsorganisation hinsichtlich der Durchführbarkeit der Kernmaterialüberwachung bekannt geworden /74/.

Im internationalen Umfeld sind auch die Ergebnisse der "Untersuchungen zur Bewertung des Internationalen Nuklear-Brennstoffkreislaufs (International Nuclear Fuel Cycle Evaluation, INFCE)" heranzuziehen, die von Experten aus mehr als 40 Nationen unter der Führung der IAE0 durchgeführt wurden. Sie sagen aus, daß auch große Wiederaufarbeitungsanlagen durch die heute angewendeten Maßnahmen, ergänzt durch zusätzliche Vorkehrungen, deren Entwicklung bereits fortgeschritten ist, überwacht werden können /75/.

Grundzüge der Kernmaterialüberwachung

Die Grundzüge eines Überwachungskonzeptes ergeben sich, für den Betreiber wie für die Überwachungsorganisationen, aus den technischen Gegebenheiten. Grundlage jeder Überwachung ist die Kernmaterialbuchführung und -bilanzierung:

- Der Anlagenbetreiber führt Buch über Zugänge, Abgänge und Bestände an Kernmaterial und stellt in angemessenen Zeitabständen Bilanzen auf.
- Inspektoren der Überwachungsorganisationen prüfen die Bilanzen und verifizieren die in die Bilanzen aufgenommenen Daten durch eigene Messungen.

Darüber hinaus verfolgt der Betreiber das Material auf seinem Weg durch die Anlage, so daß er jederzeit Kenntnis über die Verteilung auf die einzelnen Anlagenteile und Komponenten besitzt. Er sichert Anlagenteile und Komponenten

durch Einschließungsmaßnahmen und Beobachtung und führt ständige Personenüberwachung durch, um Diebstahl von Material zu verhindern oder zeitlich unmittelbar zu bemerken.

Die Überwachungsorganisationen wenden ebenfalls Einschließungs- und Beobachtungsmaßnahmen an, um die Abzweigung von Kernmaterial, d. h. die Wegnahme von Kernmaterial unter Umgehung der festgelegten und Verifikationen unterworfenen Wege entdecken zu können. Wesentlicher Unterschied zu den Betreibermaßnahmen ist, daß es dabei auch die Wegnahme durch den Betreiber selbst aufzudecken gilt.

Die Überwachung im Eingangslager und im Headend bis zum Bilanzierungstank geschieht durch die Verfolgung der Brennelemente und ihrer Bilanzierung nach Stückzahl. Von Inspektoren der Überwachungsorganisationen werden die in die Wiederaufarbeitungsanlage angelieferten Elemente identifiziert. Durch Beobachtungs- und Versiegelungsmaßnahmen wird sichergestellt, daß kein Kernmaterial unentdeckt auf diesem Weg weggebracht oder unter Umgehung des Bilanzierungstanks in die Extraktion transferiert werden kann. Diese Maßnahmen umfassen auch die Kontrolle von Abfällen, wie ausgelaugten Brennstabhülsen, die nur nach Ausmessung auf einen etwaigen Restgehalt an Kernbrennstoff abgegeben werden dürfen.

Im Bilanzierungstank findet die Eingangsmessung für das Kernmaterial statt, die für Anlagenbetreiber wie auch für die Überwachungsorganisationen gleichermaßen von Bedeutung ist. Sie wird von den Inspektoren durch Analyse eigener Proben und durch Kontrolle der Tankkalibrierungen verifiziert.

Die Überwachung der Prozeßteile vom Bilanzierungstank an geschieht in der Hauptsache durch Kernmaterialmengen-Bilanzierung aufgrund von Daten, die durch die Messungen im Bilanzierungstank und dann weiter bei der Endproduktabgabe und anderen Transfers von Kernmaterial aus dem Bilanzierungsbereich heraus und durch Messungen des Kernmaterialbestandes in diesem Bereich in bestimmten Zeitabständen gewonnen werden. Messungen und die regelmäßigen Vergleiche von Soll- und Istbeständen, d. h. die Bilanzierungen, sind vom Betreiber vorzunehmen und werden von den Überwachungsorganisationen, zum Teil durch eigene Messungen, überprüft.

Geräte und Methoden, künftige Entwicklungen

Die Anwendung der Materialmengenbilanzierung zur Überwachung der Prozeßteile der Wiederaufarbeitungsanlage bedeutet, daß der Frage, mit welcher Genauigkeiten vor allem die meßtechnische Bestimmung von Plutonium in den vorliegenden Brennstofflösungen möglich ist, eine zentrale Bedeutung zukommt. Die Fehler setzen sich zusammen aus den Fehlern, mit denen die chemische Analyse behaftet ist, Kalibrierungsfehlern und Fehlern bei der Probenahme aufgrund von Inhomogenitäten der Lösung in den Behältern.

Es ist verschiedentlich in diesem Zusammenhang auf Werte für Analysenfehler hingewiesen worden, die bei Interlaboratoriumstests ermittelt wurden, d. h. bei Versuchen, bei denen Teilmengen einer gleichen Brennstofflösung von verschiedenen Labors untersucht wurden. Die Ergebnisse weisen Abweichungen in der Größenordnung von 2 % aus. Dabei ist jedoch die Herkunft der Fehler zu beachten, die von Unterschieden in der Analysetechnik bis zu Unterschieden in den verwendeten Datensätzen für die Isotopen zur Berechnung des Analysenergebnisses weitgehend laborspezifische, d. h. systematische Fehler sind. Bei der Ermittlung von Daten zur Materialbilanzierung durch ein Labor, nämlich dem Zentrallabor der Wiederaufarbeitungsanlage, fallen sie zum großen Teil heraus. Wird davon ausgegangen, daß zwischen dem Anlagenbetreiber und den Überwachungsorganisationen eine Abstimmung hinsichtlich der Methodik für Analysen und Berechnungsverfahren getroffen wird, gilt dies auch für die Kontrollanalysen für die Kernmaterialüberwachung. Die dann in Rechnung zu stellenden Fehler bei den Analysenmethoden, wie sie heute angewendet werden, betragen nach den Erfahrungen in laufenden Anlagen bei der Pu-Bestimmung in der Brennstofflösung im Bilanzierungstank, einschließlich Probenahme- und Kalibrierungsfehlern, 1 %, beim Endprodukt 0,3 %.

Eine wichtige Weiterentwicklung der klassischen Bilanzierung ist die Intervall- oder Nahe-Echtzeit-Bilanzierung (Near-Real-Time Accountancy, NRTA), die zur Zeit noch im Entwicklungsstadium ist. Die NRTA beruht darauf, daß der Kernmaterialbestand unter Verwendung der betriebsmäßig vorhandenen Instrumentierung bei laufender Anlage in kurzen Intervallen, etwa im Wochenabstand, festgestellt und mit den ohnehin zeitlich unmittelbar durchgeführten Bestandsänderungsmessungen in einer Bilanz ausgewertet wird. Eine Untersuchung der Meßmöglichkeiten zeigt, daß über 90 % des Bestandes meßtechnisch erfaßt und der Rest für den Normalbetriebszustand relativ gut abgeschätzt werden kann.

Die NRTA ist in der Lage, zweierlei zu leisten: Einmal liefert sie Informationen über das Kernmaterial, in der Gegenüberstellung von Soll- und Istbestand, in kurzen Zeitabständen und dies ohne Spülung der Anlage. Zum anderen kann durch Verfolgung und Auswertung von Trends in der laufenden Bilanzierung eine insgesamt höhere Empfindlichkeit für die Entdeckung von Materialabzweigungen erreicht werden. Zu der Entwicklung der NRTA gehören auch Entwicklungsarbeiten zur Spaltmaterialmessung im Prozeß (in line-Instrumentierung).

Einschließungs- und Beobachtungsmaßnahmen finden in der gegenwärtigen Überwachungspraxis - wie schon erwähnt - vor allem im Headend Anwendung: Entladestation, Eingangslager und der Transferweg zur Schneidezelle stehen unter Beobachtung mit Kameras. Darüber hinaus werden sie im Prozeßbereich angewendet, etwa als Versiegelung von Endproduktbehältern oder von Ventilen an Übergabetanks, womit eine ordnungsgemäße Messung von Transfers sichergestellt wird.

Die Anwendung von Einschließungs- und Beobachtungsmaßnahmen setzt die Analyse der möglichen Abzweigungswege und -handlungen voraus. Eine Abzweigung wäre ein anormaler Betriebsvorgang, der die Verwendung von Geräten und Verfahren entgegen ihrer normalen Bestimmung voraussetzt und im allgemeinen im Widerspruch zu Berichten steht, die den Überwachungsorganisationen zugehen. Mögliche Beispiele sind Unterdrückungen von Messung zur Kernmaterialbilanzierung durch Umgehung der Meßstellen, beispielsweise des Bilanzierungstanks. Die Einschließungs- und Beobachtungsmaßnahmen sind auf die Entdeckung eben dieser Anomalien hin ausgerichtet.

Die gegenwärtig laufenden Entwicklungsarbeiten für Einschließungs- und Beobachtungsmaßnahmen umfassen neben solchen Studien Arbeiten zur Weiterentwicklung und Neuentwicklung von Geräten. Hierzu gehören Videosysteme, die bisher verwendete Filmkameras ablösen sollen. Mit ihnen eröffnet sich die Möglichkeit der Auswertung der Bildaufzeichnung durch die Inspektoren vor Ort. Bei Siegel-systemen werden Anstrengungen unternommen, die Verfälschungssicherheit zu erhöhen und ebenfalls eine in-situ-Verifikation zu ermöglichen.

Neuentwicklungen sind Monitorsysteme, wie Rohrleitungs- und Türrahmenmonitore, die für die Aufgabe eingesetzt werden können, Transfers von Kernmaterial über hierfür regulär nicht vorgesehene Wege zu entdecken.

5.2 Arbeitsschutz bei Betrieb und Instandhaltung

Es wurde an anderer Stelle darauf hingewiesen, daß der Verfahrensablauf einer Wiederaufarbeitungsanlage in wesentlichen Punkten demjenigen einer vergleichbaren konventionellen Chemieanlage entspricht. Beim Betriebsablauf und der Instandhaltung bestehen Unterschiede insofern, als in einer Wiederaufarbeitungsanlage Maßnahmen zum Schutz des Personals gegen die radioaktive Strahlung und gegen die Aufnahme von radioaktiven Stoffen in den Körper (Inkorporation) ergriffen werden müssen. In der Gesetzgebung, insbesondere der Strahlenschutzverordnung, sind Grenzwerte für die Strahlendosisbelastung der Beschäftigten festgelegt worden, deren Einhaltung durch den Betreiber und staatliche Aufsichtsbehörden sorgfältig überwacht wird.

Gegen die starke Strahlung des aufzuarbeitenden Materials ist das Bedienungspersonal durch bauliche und konstruktive Elemente weitgehend geschützt. Zur Abschirmung von α - und β -aktiven Stoffen mit ihrer wenig durchdringenden Strahlung genügt der Schutz durch sogenannte Handschuhkästen oder Isotopenabzüge. Die Gamma-Strahlung einschließlich der höherenergetischen Beta-Strahlung wird durch Abschirmwände, Strahlenschutzfenster oder entsprechend dicke Wasserschichten zurückgehalten. Ein alle Räume des Kontrollbereichs umfassendes Lüftungssystem gewährleistet, daß Radioaktivität auch nicht in Aerosolform in die Bedienungsräume eindringt.

Instandhaltungsarbeiten, sei es die routinemäßige Instandhaltung nach vorausgegangener Inspektion einer Komponente oder deren Reparatur bzw. Ersatz nach einem festgestellten Schaden. Der Eingriff muß in diesem Fall an der Prozeßapparatur selbst erfolgen. Dazu sind die folgenden Techniken entwickelt worden:

(a) Fernbediente Instandhaltung:

In diesem Fall erfolgt die Instandsetzungsmaßnahme mit Fernhantierungsgeräten; ein Zugang des Personals zum Interventionsort ist weder vorgesehen noch erforderlich. Man kann die folgenden Systeme unterscheiden:

(a1) Heiße Zellentechnik:

Die Instandhaltung erfolgt mit den gleichen Geräten - Kräne, Kranmanipulatoren, Handmanipulatoren - die auch im normalen Betriebsablauf eingesetzt werden. Beispiele dafür sind die sogenannten Head-End-Zellen von Wiederaufarbeitungsanlagen.

(a2) Fernhantierte Instandhaltung von Prozeßzellen und Geräten, die speziell für diesen Zweck vorgesehen sind:

Behälter, Rohrleitungen und Apparate sind so ausgelegt und angeordnet, daß sie kurzfristig, zum Beispiel mittels maschinell lösbarer Verbindungstücke, ausgetauscht werden können. Auch hierbei betritt das Personal nicht den Zellenbereich.

Bekannte Beispiele für diese Technik sind die Wiederaufarbeitungsanlagen Hanford und Savannah River in den USA.

(b) Instandhaltung unter direktem Personaleinsatz:

Der Zugang des Instandhaltungspersonals erfolgt erst, nachdem die betreffenden Zelleneinrichtungen bis zu einem ausreichend niedrigen Strahlenspiegel dekontaminiert worden sind. Das Personal trägt Schutzkleidung gegen eventuell vorhandene offene Radioaktivität.

Die von außen vorgenommene Dekontamination der Behälter und Apparate im Bereich hoher Radioaktivität ist zeitraubend. Produktionsausfälle können daher nur vermieden werden, wenn redundante Aggregate in getrennten Zellen installiert sind, auf die bei Bedarf umgeschaltet werden kann.

Die Erfahrungen haben gezeigt, daß Wiederaufarbeitungsanlagen, die nach dem einen oder dem anderen Prinzip ausgelegt sind, gleichermaßen sicher und ohne unzulässige Strahlenbelastung des Personals betrieben werden können. Das zeigt insbesondere auch die Dosisstatistik des Betriebs- und Reparaturpersonals. In der Wiederaufarbeitungsanlage Karlsruhe (WAK) gelangt bei Instandhaltungsarbeiten eine Kombination beider Methoden zum Einsatz. Die mittleren Jahresdosen pro Mann betragen hier weniger als 10% der nach der Strl.Sch.V. zulässigen Maximaldosis von 5 rem pro Jahr /76/. Ähnlich liegen die Verhältnisse bei der französischen Anlage in Cap de la Hague, die bisher den höchsten Durchsatz an hochabgebrannten LWR-Brennstoffen erzielt hat; die mittlere Jahresdosis (für Betriebspersonal und Instandhaltungsfirmen) lag im Jahr 1981 bei 0,27 rem. Das häufig von Kritikern vorgebrachte Argument, daß diese mittlere Dosis nur durch den Einsatz einer großen Personenzahl erreicht werden kann, wird entkräftet durch den Verweis auf die applizierte Kollektivdosis. Im Gortleben-Hearing wurde ein Wert von 240 manrem pro GWe Jahr als vernünftig und vertretbar angenommen. Die Kollektivdosis lag in La Hague im Jahr 1981 unter 200 manrem pro GWe Jahr; diese Werte werden sich mit steigender Betriebserfahrung weiter senken lassen.

Es soll hier auch angemerkt werden, daß die höchsten individuellen Einzeldosen, die beim Instandhaltungspersonal auftraten, bei 2-3 rem, d. h. bei etwa 50 % des zulässigen Jahreswertes lagen. Bei der hohen Zahl von Tausenden von Be-

schäftigten in Wiederaufarbeitungsanlagen in der westlichen Welt sind nur wenige Fälle bekannt, bei denen diese Grenze bei Störfällen überschritten wurde. Tatsächlich ist aus den letzten 5 Jahren nur ein Fall aus La Hague bekannt geworden, bei dem ein mit Anstricharbeiten beschäftigter Arbeiter beim Brand in einem Silo eine höhere Dosis erhielt. Die daraus resultierende Jahresbelastung war mit 5,7 rem immer noch vergleichsweise gering.

- Im übrigen ist bemerkenswert, daß die Unfallstatistik für Wiederaufarbeitungsanlagen, sowie auch für andere nukleare Anlagen deutlich unter derjenigen vergleichbarer Industriezweige liegt. Die Maßnahmen des Strahlenschutzes wirken sich somit also positiv auf den konventionellen Arbeitsschutz aus.

5.3 Radioökologie bei einer Wiederaufarbeitungsanlage

Einleitung

Die Radioökologie bei einer Wiederaufarbeitungsanlage wird wegen der vorausgegangenen Kühlzeit der Brennelemente ausschließlich durch die längerlebigen Nuklide bestimmt. Bei der Auftrennung der Brennelement-Hüllrohre und dem nachfolgenden Auflösungsvorgang werden die gasförmigen oder leichtflüchtigen Spaltprodukte freigesetzt. Die hierbei wichtigen Radionuklide sind I-129, H-3, C-14 (als CO₂) und Kr-85. Daneben entstehen bei dem weiteren Prozeß Aerosole, deren bestimmende Nuklide Sr-90, Cs-137, Ce-144, Ru-106, Tc-99 sowie die Transurane sind.

Für die Berechnung der maximal möglichen Strahlenbelastung geht man dabei von folgenden Randbedingungen aus /77/: Betrieb der Anlage über 50 Jahre, Emissionen der genehmigten Abgaberraten, keine Abnahme der Aktivität außer durch radioaktiven Zerfall, die für die Berechnung zu betrachtende Person hält sich 50 Jahre lang an der Stelle auf, die im Jahresmittel mit der höchsten Aktivität belegt wird und bezieht auch seine gesamte Nahrung von dieser Stelle. Solche Annahmen bezeichnet man als konservativ. Sie sorgen dafür, daß das Ergebnis der Gesamtrechnung auf der sicheren Seite liegt, selbst wenn in dieser Rechnung an einzelnen Stellen Werte verwendet werden für die in verschiedenen Literaturstellen höhere Angaben zu finden sind, wie z. B. bei den Transferfaktoren, auf die beim Strontium noch näher eingegangen wird.

Gasförmige oder leicht flüchtige Spaltprodukte

a) I-129

Eines der radiologisch relevantesten Nuklide bei den Spaltgasen ist das langlebige I-129 ($T_{1/2} = 1,57 \times 10^7$ a). Iod wird vorwiegend in der Schilddrüse akkumuliert und besitzt in diesem Organ eine biologische Halbwertszeit von 138 Tagen. Ähnlich wie das für I-131 bei Kernkraftwerken gilt, ist deshalb I-129 eines der Nuklide, dessen überwiegende Rückhaltung aus Gründen des Strahlenschutzes notwendig ist. Obwohl neuere Untersuchungen zeigen, daß I-129 mit einer Halbwertszeit, die unter einem Jahr liegt, aus der Biosphäre verschwindet /78/, wird aus den vorher erwähnten Gründen bei der Berechnung der höchstmöglichen Strahlenbelastung in der Umgebung einer Wiederaufarbeitungsanlage von einer die ganze Betriebszeit andauernden Akkumulation in der Biosphäre ausgegangen. Daraus ergibt sich ein relativ niedriger Grenzwert für die höchstzulässige Jahresabgabe an I-129. Die heute technisch ausgereiften Iodfilter machen eine Unterschreitung des höchstzulässigen Grenzwertes bei der Jahresabgabe möglich.

b) H-3

Vom Gesamtinventar des Tritiums gelangt nur ein verschwindend geringer Teil (weniger als 0,5 %) unmittelbar in das Abgas. Deshalb sind hier keine gesonderten Rückhaltemaßnahmen notwendig. Tritium liegt größtenteils als HTO vor und kann in Biomoleküle anstelle des normalen Wasserstoffs eingebaut werden. Dort wird es nicht nur durch seine Strahlung, sondern auch durch Transmutationseffekte wirksam.

c) C-14

Die radioökologische Bedeutung liegt auch bei C-14 im Einbau in Biomoleküle. Die Rückhaltung von H-3 und C-14 ist wegen des geringen Beitrags zur gesamten Strahlenbelastung prinzipiell nicht notwendig, stellt jedoch kein grundsätzliches technisches Problem dar.

d) Kr-85

Kr-85 trägt zur Strahlenbelastung in der Umgebung zum einen als externe Strahlenquelle (Hautbelastung), zum geringeren Teil über den Inhalationspfad (Lungenbelastung und Ganzkörperbelastung wegen der Blutlöslichkeit) bei. Aus Gründen des Strahlenschutzes in der Umgebung einer Wiederaufarbeitungsanlage ist

die Rückhaltung des Kr-85 allerdings nicht notwendig, da die Belastung durch Kr-85 äußerst gering ist. Bei weiterem und stärkerem Ausbau der Kernenergie ist jedoch langfristig unter dem Gesichtspunkt, die Strahlenbelastung so niedrig wie möglich zu halten, eine Kr-85-Rückhaltung anzustreben. Entsprechende technisch einsetzbare Verfahren zur Rückhaltung sind in der Entwicklung.

Aerosole

a) Sr-90/Y-90

Wie bei Kernkraftwerken ist auch beim Betrieb einer Wiederaufarbeitungsanlage das Sr-90 ein radiologisch bedeutendes Nuklid. Die relativ lange Halbwertszeit, die Akkumulation in der Biosphäre und die Anreicherung im Skelett führen dazu, daß den Abgaben von Sr-90 ganz besondere Beachtung geschenkt werden muß. In diesem Zusammenhang ist die Frage des Transfers vom Boden in die Pflanze zu einem zentralen Diskussionsthema geworden, da der Hauptbelastungspfad durch Sr-90 über Bodenkontamination und Pflanzenaufnahme führt /79, 80/. Neuere Untersuchungen /81, 82/ zeigen, daß die in den Berechnungsgrundlagen festgeschriebenen Transferfaktoren bei Verwendung im eingangs beschriebenen Rechenmodell zu hinreichend konservativen Werten führen /83/.

Wirkungsvolle Filter sind für Sr-90 (und alle anderen Aerosole) in technisch ausgereifter Form vorhanden und anwendbar. Im Hinblick auf die radiologische Bedeutung sind auch für Sr-90 niedrige Abgabemengen vorgesehen.

b) Cs-137

In längst nicht so starkem Maße wie für Sr-90 treffen die Transferprobleme Boden-Pflanze für das Cäsium zu. Der Hauptanteil der Strahlenbelastung geht beim Cs-137 jedoch über Direktablagerung bzw. Direktstrahlung /82/. Dadurch fällt der Transfer Boden-Pflanze bei der gesamten Strahlenbelastung durch Cs-137 nicht so sehr ins Gewicht. Kritische Organe für Cs sind der Ganzkörper und die Leber.

c) Ce-144, Ru-106, Tc-99

Eine deutlich geringere Bedeutung als die beiden vorgenannten Nuklide haben die für eine Aerosolmischung aus einer Wiederaufarbeitungsanlage ebenfalls typischen Nuklide Ce-144, Ru-106 und Tc-99. Kritische Organe sind für Ce-144 Knochen und Leber, für Ru-106 Niere und Knochen und für Tc-99 Niere und Haut.

Der Anteil an der gesamten Strahlenbelastung durch eine Wiederaufarbeitungsanlage ist bei diesen 3 Nukliden gering.

d) Die Transurane

Wegen ihrer durch die α -Strahlung bedingten hohen Radiotoxizität stellen die Transurane eine radiologisch ebenfalls bedeutsame Nuklidgruppe dar. Emissionen von Transuranen finden in Kernkraftwerken praktisch nicht statt, sie sind auf den Betrieb einer Wiederaufarbeitungsanlage beschränkt. Alle Transurane lagern sich bevorzugt im Skelett an; bei Inhalation ist besonders die Lungenbelastung von Bedeutung. Der Rückhaltung der Transurane in Aerosolform kommt deshalb besondere Bedeutung zu.

Flüssige Ableitungen

Gegenüber den gasförmigen Ableitungen spielen die flüssigen Ableitungen eine untergeordnete Rolle. Zwar gelangen alle genannten Radionuklide außer Kr-85 auch mit dem Abwasser in die Umgebung, die dabei abgeleiteten Aktivitäten liegen unter den gesetzlich zugelassenen Freigrenzen und sind daher außerordentlich gering. Lediglich für Tritium ist der Abwasserpfad der Hauptbelastungspfad, allerdings ohne wesentlich zur Gesamtbelastung beizutragen. Bezüglich der Radioökologie gilt damit für den Abwasserpfad prinzipiell das gleiche, was schon bei den Aerosolen angeführt wurde /84/. Transurane, die aus dem Abwasser auf dem Ingestionspfad zum Menschen gelangen, sind weniger gefährlich als auf dem Inhalationsweg.

Insgesamt ergibt sich für die Radioökologie in der Umgebung einer Wiederaufarbeitungsanlage ähnliches wie bei einem Kernkraftwerk: Wegen des gegenüber einem Kraftwerk unterschiedlichen Nuklidspektrums (besonders nach langen Kühlzeiten) führt nämlich ein bloßer Vergleich der abgegebenen Aktivitäten einzelner Nuklide durch eine Wiederaufarbeitungsanlage oder ein Kernkraftwerk zu irreführenden oder nichtssagenden Zahlen. Entscheidend ist, daß auch durch eine Wiederaufarbeitungsanlage die vorgegebenen Dosisgrenzwerte der Strl.Sch.V für den ungünstigsten Fall nicht überschritten wird.

5.4 Endlagerung

Das letzte Glied in der Entsorgungskette bildet die Endlagerung der in eine geeignete stabile Lagerform konditionierten radioaktiven Abfälle. Oberstes Gebot ist die Gewährleistung des gesteckten Schutzziels, nämlich die langfristige Bewahrung von Mensch und Umwelt vor der Schädigung durch ionisierende Strahlung /85, 86, 87/. Die Verwahrungsart soll, wie der Name sagt, endgültig sein, d. h., nach Beendigung der Betriebsphase muß das gesamte Endlager sicher gegen die Biosphäre abgeschlossen werden. Auch in der Nachbetriebsphase dürfen Radionuklide, die als Folge von nicht vollständig ausschließbaren Transportvorgängen aus einem verschlossenen Endlager in die Biosphäre gelangen könnten, nicht zu Individualdosen führen, die die gesetzlich festgelegten Werte überschreiten /88, 89/.

Verwahrungsart und Verwahrungsort sind an die speziellen Gegebenheiten der Abfallstoffe anzupassen /90/. Langlebige Alphastrahler oder hochradioaktive Spaltproduktkonzentrate bedürfen einer anderen Endlagertechnik als kurzlebige oder schwachradioaktive Abfälle. Grundsätzlich empfiehlt sich die Anwendung des Prinzips des Mehrfachbarriereneinschlusses, das sich in der Kerntechnik schon an anderen Stellen sehr gut bewährt hat /91, 92/. Beim Endlager wird eine Kombination mehrerer unabhängig voneinander wirksamer Barrieren zur Anwendung kommen, nämlich:

- Abfallform einschließlich Verpackung,
- Anordnung der Einlagerungsfelder und Versatz der Hohlräume,
- Endlagerformation,
- Deckgebirge samt Nebengestein.

Durch einzelne oder die Summen dieser Barrieren muß sichergestellt werden, daß nach menschlichem Ermessen keine unzulässige Freisetzung von radioaktiven Stoffen in die Biosphäre erfolgt /93/. Je nach unterstelltem Störfall trägt die einzelne Barriere ihren Anteil dazu bei, die Ausbreitung radioaktiver Stoffe zu verhindern bzw. ausreichend zu verzögern. So ist beispielsweise der Wassereintrich während der etwa 50jährigen Betriebsphase des Endlagerbergwerks mit hoher Wahrscheinlichkeit auszuschließen. Die hohe Produktgüte des Endlagerguts würde aber auch in diesem hypothetischen Störfall eine unzulässige Freisetzung von radioaktiven Stoffen in die Biosphäre verhindern.

Die physikalischen Halbwertszeiten, spezifischen Radioaktivitäten sowie die

individuellen Radiotoxizitäten der endzulagernden Radionuklide üben den entscheidenden Einfluß auf die Auswahl der Endlagerstätte aus /94/. Den höchsten Schutzwert bieten Endlager im tiefen Untergrund des Festlandes (ca. 600 - 1200 m tief) in speziell ausgewählten geologischen Formationen. Als solche eignen sich vorzugsweise Steinsalzdome wie sie in der Bundesrepublik Deutschland in großer Zahl vorkommen /95/, oder ausgedehnte kristalline Granit- und Basaltformationen /96/.

In der internationalen Fachwelt besteht Einigkeit darüber, daß die Kategorien hochradioaktive Spaltprodukte aus der Wiederaufarbeitung und stark alpha-haltige Abfälle, vor allem aus der U/Pu-Mischoxidverarbeitung, nur im tiefen geologischen Untergrund endgelagert werden sollten. Dasselbe trifft auch für abgebrannte Brennelemente zu, falls sie ohne Wiederaufarbeitung direkt endgelagert werden sollten /97/. Für den Großteil schwachradioaktiver Abfälle und den Teil mittelradioaktiver Abfälle, der vorwiegend kurzlebige β/γ -Strahler, jedoch nur unbedeutende Mengen an α -Strahlern enthält, genügt zur Erfüllung des Schutzziels auch eine Unterbringung in speziell ausgewählten und ausgebauten Felskavernen oder sogar in oberflächennahen Deponien. Besonders empfehlenswerte Lagerformationen sind ton- und lehmartige Gesteinsschichten, da sie weitgehend wasserundurchlässig sind und gute Sorptionsfähigkeiten für die aus den Abfallbehältern bzw. -produkten eventuell ausgelaugten Radionuklide aufweisen /98, 99/. Eine mehrere Meter dicke Abdeckung bietet einen ausreichenden Strahlenschutz.

Bezüglich der betrieblichen Überwachung eines Endlagers bestehen keine grundsätzlichen Unterschiede für die verschiedenen Arten oberflächennaher oder unterirdischer Unterbringung. Auch ein oberirdisch angelegtes Zwischenlager stellt an die routinemäßigen Betriebs- und Strahlenschutzüberwachungsmaßnahmen vergleichbare Anforderungen. Die denkbaren Störfälle und deren Auswirkungen müssen sorgfältig analysiert werden. Durch Gegen- und Vorsorgemaßnahmen sind schädliche Auswirkungen zu vermeiden bzw. auf Strahlendosen unterhalb gesetzlich festgelegter Höchstwerte zu begrenzen /100/.

Endlagerbergwerke sind nach der Betriebsphase stillzulegen. Dazu gehört die Verfüllung der Endlagerungsräume, Strecken und Schächte mit geeigneten Materialien und Techniken. Ähnliches gilt für oberflächennahe Endlager. Endlager im tiefen geologischen Untergrund bedürfen nach einer ordnungsgemäßen Stilllegung keiner ständigen und gesonderten Überwachungsmaßnahmen mehr. Hier reichen die

über das gesamte Bundesgebiet routinemäßig durchgeführten Umweltschutzmessungen und Geländebeobachtungen aus. Unbeabsichtigte Einwirkungen auf das Endlager mit schädlichen Umwelteinflüssen sind nach menschlichem Ermessen auszuschließen. Anders ist die Sachlage bei oberflächennahen Endlagern. Hier bedarf es einer institutionell abgesicherten Sonderüberwachung bis zu dem Zeitpunkt, an dem das Radioaktivitätsinventar auf ein unbedenkliches Niveau abgeklungen ist. Aufgrund der Spezifikationen für ein derartiges Lager müssen dabei Zeiträume von etwa 100 Jahren in Betracht gezogen werden.

Einer Beseitigung radioaktiver Abfälle über die Versenkung in der Tiefsee kann nicht generell das Wort geredet werden /101/. Für bestimmte Abfallarten, in erster Linie trifft dies für T, C-14 und Kr-85 zu, dürfte die Versenkung im Meer die risikoärmste Entsorgungsmethode sein /102/. Auch für schwachradioaktive Stilllegungsabfälle empfiehlt sich der Weg der Versenkung in die Tiefsee. Einer verbreiteten Ableitung radioaktiver Abfallstoffe aus Wiederaufarbeitungsanlagen durch Verdünnung und Dispersion ist auf internationaler Ebene Einhalt zu gebieten. Der Schritt in die richtige Richtung ist durch die sogenannte Londoner Konvention getan /103/.

Die wiederholt propagierte Methode des Vergrabens hochradioaktiver Abfälle im Sockel des Meeresbodens erscheint vorläufig kein brauchbarer Weg zu sein. Hier wäre zuvor noch viel technischer Entwicklungsaufwand zu treiben /104/.

Seit der Entwicklung der Weltraumfahrt wird auch die Lagerung von radioaktiven Abfallstoffen im Weltraum diskutiert. Nach Untersuchungen der NASA /105/ erscheint hierbei die Sonnensystem-Flucht als aussichtsreichster Weg. Da jedoch die Spaltprodukte wegen der notwendigen Abschirmmethoden einen extrem hohen Startaufwand erfordern, käme eine Weltraumablagerung praktisch nur für die langlebigen Aktiniden in Frage, die zuvor durch aufwendige Verfahren von den Spaltprodukten abgetrennt werden müßten.

Für jedes die Kernenergie nutzende Land gibt es akzeptable Endlagermöglichkeiten. Wegen der vorherrschenden unterschiedlichen geologischen Randbedingungen müssen für das Gesamtsystem: Abfallform und -gebilde, Endlager und Geologie des Deckgebirges und Nebengesteins jeweils maßgeschneiderte Lösungen erarbeitet werden, denen ein vergleichbar wirksames Mehrfachbarrierenkonzept zugrunde liegt /106/.

Die von Gegnern der Kernenergie immer wieder ins Feld geführte Argumentation,

bei der Endlagerung handle es sich weltweit gesehen um ein ungelöstes Problem, bedarf einer Klarstellung. Die Tatsache, daß noch kein Land der Welt ein umfassendes Konzept für die Endlagerung aller Kategorien radioaktiver Abfälle realisiert hat, ist kein Beweis für dessen Unlösbarkeit. Brauchbare Lösungswege sind inzwischen erarbeitet /107,108/. Sie haben hinsichtlich der Sicherheit einen technischen Stand erreicht, der eine zügige Umsetzung in die Praxis zuläßt. Ohne Zweifel können in den nächsten 10 - 20 Jahren überall dort, wo Sachzwänge für eine Verwirklichung bestehen, die notwendigen Endlager errichtet und betrieben werden. Eine sorgfältige Vorbereitung und stufenweise Erprobung darf nicht durch polemische Auslassungen der Atomgegner unter Zugzwang gebracht werden. In der Bundesrepublik Deutschland wird Vorsorge für die Endlagerung durch die folgenden Programme getroffen /109/:

- a. Durchführung von Forschungs- und Entwicklungsarbeiten im Versuchsbergwerk ASSE-II. Für Schwach- und Mittelaktivabfälle ist in Langzeitversuchen die Eignung und Durchführbarkeit der angewandten Methoden und Verfahren erwiesen. Nach erfolgreichem Abschluß eines Planfeststellungsverfahrens kommt dieses Bergwerk eventuell auch als Endlager in Frage.
- b. Durchführung des Planfeststellungsverfahrens für ein Endlager für schwachradioaktive Abfälle und Stilllegungsabfälle kerntechnischer Anlagen im ehemaligen Eisenerzbergwerk Konrad bei Salzgitter. Bei günstigem Verlauf kann mit der Inbetriebnahme 1988/89 gerechnet werden.
- c. Erkundung des Salzstocks Gorleben als Endlagerstätte für Abfälle aus der Wiederaufarbeitung. Bei Eignung könnte ein Endlager etwa ab 1995 betriebsbereit sein.
- d. Forschungs-, Entwicklungs- und Demonstrationsarbeiten zur Sicherstellung und Beseitigung von Sonderabfällen aus der Wiederaufarbeitung (T, C-14, Kr-85, I-129).
- e. Beteiligung an internationalen Vorhaben zur Endlagerung in alternativen geologischen Formationen. Initiierung nationaler alternativer Endlagermöglichkeiten.

- f. Errichtung eines Zwischenlagers für konditionierte radioaktive Abfälle aus der Wiederaufarbeitung, insbesondere für die ab 1990 aus dem Ausland zurückzunehmenden Abfälle.

Mit diesen umfassenden Aktivitäten ist sichergestellt, daß allen künftigen Anforderungen Rechnung getragen werden kann, und zwar ohne unnötigen Zeitdruck. Voreilig und häufig unqualifizierte Schlußfolgerungen aus Zwischenergebnissen laufender Untersuchungsprogramme nützen niemandem; sie verunsichern jedoch eine breite Öffentlichkeit und stiften Unfrieden. Sollten tatsächlich Umstände zutage treten, die etwa den Salzstock Gorleben doch noch als ungeeignet erscheinen lassen, bleibt trotz gegenteiliger Behauptungen noch genügend Zeit, Ersatz zu finden. Wichtige Voraussetzung ist, daß rechtzeitig ein gegen Umwelteinflüsse geschütztes oberirdisches Zwischenlager für hochradioaktive Wiederaufarbeitungsabfälle errichtet und in Betrieb genommen werden kann. Die oberirdische Lagerung von hochradioaktiven Abfällen über viele Jahrzehnte in geeigneten Bauwerken und geeigneter Konditionierung stellt keine sicherheitstechnische Probleme dar. Selbstverständlich müssen auch die anderen aufgeführten Programmpunkte weiterverfolgt werden.

6. Entwicklungschancen des PUREX-Prozesses, Optimierung und neue Wege

Der Wiederaufarbeitungsprozeß nach dem PUREX-Verfahren kann heute auf eine dreißigjährige Erfahrung im großtechnischen Bereich zurückblicken. 1952 nahm die Wiederaufarbeitungsanlage in Savannah River, USA, ihren Testbetrieb auf. 1954 wurden dort die ersten bestrahlten Kernbrennstoffe aus militärischen Reaktoren aufgearbeitet. Diese Wiederaufarbeitungsanlage ist heute noch in Betrieb.

In Westeuropa wird das PUREX-Verfahren seit 1958 (UP1, Marcoule, Frankreich) industriell betrieben. Diese Anlage wird ebenfalls noch heute sowohl militärisch als auch zivil genutzt.

In einem vorhergehenden Beitrag ist aufgezeigt, wie umfangreich die weltweiten technischen Erfahrungen mit dem PUREX-Verfahren sind, daß die Gesamtmenge des bisher aufgearbeiteten Brennstoffs viele hunderttausend Tonnen beträgt und daß die Aufarbeitung militärischen Brennstoffs der LWR-Brennstoff-Wiederaufarbeitung, entgegen einer seit Jahren immer wieder geäußerten Behauptung, durchaus vergleichbar ist.

Nun ist aus Kreisen, die der Wiederaufarbeitung von Kernbrennstoffen und den diesbezüglichen Projekten in der Bundesrepublik Deutschland skeptisch gegenüberstehen, die Meinung gekommen, das PUREX-Verfahren sei technisch nicht machbar, die bisherigen weltweiten Erfahrungen seien denkbar schlecht und wenn überhaupt Wiederaufarbeitung, müsse man erst einmal ein alternatives, gut funktionierendes Verfahren neu entwickeln.

Hierzu wurde bereits festgestellt, daß im Laufe der Entwicklung eines geeigneten Wiederaufbereitungsverfahrens die verschiedenen chemischen Möglichkeiten; wie Fällungs-, Verflüchtigungs-, pyrometallurgische und Extraktionsverfahren auf ihre Eignung untersucht wurden und sich schließlich die Extraktionsverfahren und von diesen der PUREX-Prozeß als günstigstes Verfahren herausgestellt haben /110/. Die erwähnten weltweiten Durchsatzmengen sprechen hier eine deutliche Sprache.

Gibt es nun trotz der positiven Erfahrungen mit dem PUREX-Prozeß weitere Entwicklungsnotwendigkeiten und sollte hierfür F+E-Arbeit geleistet werden? Reicht das in der Bundesrepublik Deutschland vorhandene Know-how für den Bau von Wiederaufarbeitungsanlagen?

Grundsätzlich sollte hier einmal gesagt werden, daß es kein technisches Verfahren gibt, das nicht noch Verbesserungsmöglichkeiten enthält, und sei es "nur", um das Verfahren kostengünstiger zu machen. Dies ist ein völlig normaler Vorgang in der gesamten Technik.

In einer von Häfele durchgeführten Studie /2/ wird gezeigt, daß in der Bundesrepublik genügend Kenntnisse vorhanden sind, um eine größere Wiederaufarbeitungsanlage zu bauen. Die Planung für eine solche Anlage kann auf zahlreiche Verbesserungen im Prozeßablauf sowie auf die Ergebnisse der F+E-Arbeiten zurückgreifen, die in den vergangenen Jahren auf diesem Gebiet gemacht wurden und weiterhin gemacht werden /111, 112, 113/.

Diese Entwicklungen sind sowohl unter sicherheitstechnischen als auch wirtschaftlichen Gesichtspunkten zu sehen. Eine verfahrenstechnische Optimierung bringt in vielen Fällen auch sicherheitstechnische Vorteile mit sich.

Die zur Wiederaufarbeitung durchgeführten F+E-Arbeiten lassen sich in sechs Schwerpunkten zusammenfassen:

- Abgasbehandlung
- Fließschemaoptimierung
- Einsatz elektrolytischer Verfahren
- Extraktionsapparateentwicklung
- Prozeßkontrolle
- Instandhaltungstechniken

Dazu kommen noch Arbeiten zur betrieblichen Verfügbarkeit.

Zur Wiederaufarbeitung gehört auch die Behandlung und Konditionierung radioaktiver Abfälle. Dabei kann die Optimierung der Wiederaufarbeitung Einfluß auf die Zusammensetzung der verschiedenen Abfallströme haben, was wiederum die anzuwendenden Konditionierungstechniken beeinflussen kann. Wenn auch festgestellt werden kann, daß die sachgerechte Konditionierung der verschiedenen radioaktiven Abfälle seit Jahren in technischem Maßstab betrieben wird, laufen hier doch weiter intensive Forschungs- und Entwicklungsarbeiten zur Optimierung, besonders im Hinblick auf die Verringerung der Abfallvolumina. Auch die Produktoptimierung für spezielle Abfälle ist Gegenstand von Entwicklungsarbeiten.

Die Weiterentwicklung bei der Abgasbehandlung (vgl. hierzu die Ausführungen in Abschnitt 2.6) dient einer weiteren Minimierung der Freisetzungen.

Von Interesse sind die Untersuchungen zur Optimierung des chemischen Fließschemas, da sie schließlich die Basisdaten für die Optimierung der gesamten Prozeßführung zu liefern haben. Hierher gehört die Ermittlung von Gleichgewichtsdaten bei der Extraktion, die eine mathematische Vorausberechnung des Extraktionsverhaltens erlauben. Das Fließschema soll z. B. hinsichtlich der Bildung von Crud und der Plutoniumverluste optimiert werden.

Die Einführung elektrolytischer Methoden /114/ in den PUREX-Prozeß erlaubt eine einfachere Prozeßführung. Durch die elektrolytische Reduktion des Plutoniums kann eine Verminderung der Massenströme erreicht werden. Die Extraktionsmittelwäsche mit Hydrazin und dessen nachfolgende elektrolytische Oxidation hat den gleichen Wascheffekt wie das bisher angewandte Natriumkarbonat, der Anteil an MAW kann dadurch drastisch reduziert werden /115, 116/.

Die Extraktionsapparateentwicklung hat zum Ziel, die bei der Fließschemaoptimierung und den verbesserten Verfahren, gewonnenen Erkenntnisse in großtechnische Apparate umzusetzen, z. B. in elektrolytische Pulskolonnen. Hier werden auch Grundlagenuntersuchungen zum besseren mathematischen Verständnis der Vorgänge in Extraktionskolonnen für ihre rechnerische Auslegung gemacht. Ebenfalls wird die Einsatzmöglichkeit von Hafnium, einem neutronenabsorbierenden Metall, für kritisch sichere Apparate untersucht.

Die Forschungs- und Entwicklungsarbeiten zur Prozeßkontrolle zielen auf die Verbesserung von Funktionsfähigkeit und Schnelligkeit der Analytik durch weitgehende Automatisierung einzelner Analysenverfahren und deren Vorbereitung ab. In Verbindung mit den Meßwerten von In-line-Instrumenten dienen die Daten der Prozeßanalytik der Verbesserung der Betriebssicherheit (u. a. Kritikalitätssicherheit, Kernmaterialüberwachung, Fehlchargenverminderung). Außerdem kann die Prozeßanalytik in die Überwachung des Spaltstoffes einbezogen werden.

Die umfangreichen Entwicklungsarbeiten zu den Interventions- und Hantierungstechniken sollen zu einer wesentlichen Erhöhung der Anlagenverfügbarkeit bei gleichzeitiger Verminderung der Strahlenbelastung des Wartungspersonals führen. Es handelt sich hier vor allem um die sogenannte Fernhantierungstechnik, die es gestattet, defekte Anlagenteile fernbedient auszutauschen.

Viele der erwähnten Arbeiten sind auch von Wichtigkeit hinsichtlich der Wiederaufarbeitung von Schnellbrüter-Brennstoffen, die in Zukunft verstärkt ent-

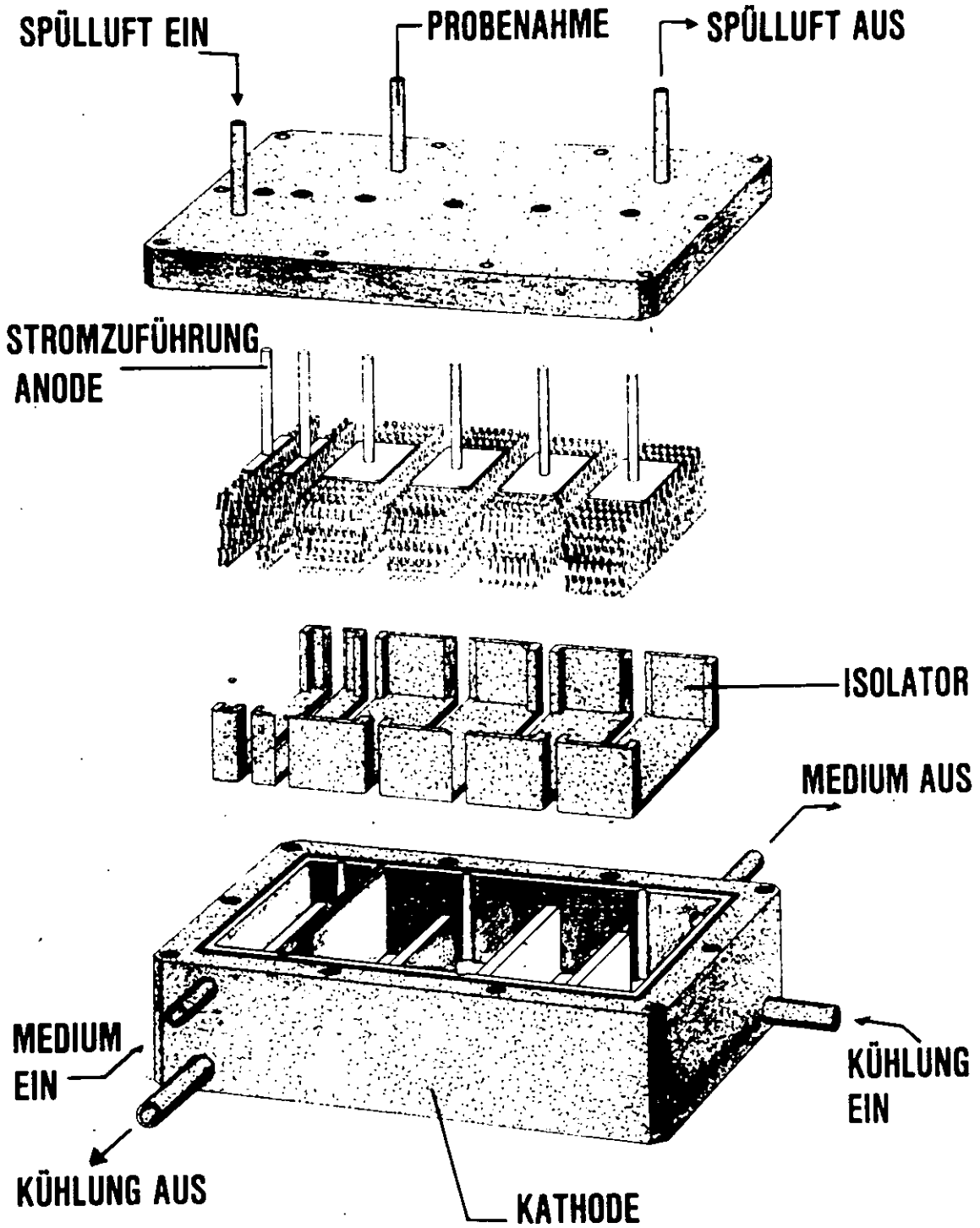


Abb. 6.1: Elektro-Oxidationszelle

wickelt werden soll, da der spätere großtechnische Einsatz von Brutreaktoren die Wiederaufarbeitung von hochabgebranntem, möglichst kurz gekühltem Brennstoff erfordert. Auch hier bietet das PUREX-Verfahren gute Entwicklungsmöglichkeiten. In Großbritannien und Frankreich ist bereits Brennstoff aus Brutreaktoren im Tonnenmaßstab aufgearbeitet worden /117/.

Anhang

Fachwörter-Erläuterungen

Abbrand	Maß für die Energie, die aus einer Kernbrennstoffmenge während des Reaktorbetriebs gewonnen wurde. Angabe in Megawatttagen pro Tonne eingesetzten Kernbrennstoffs (MWd/tU).
Abklingzeit	Lagerzeit der Brennelemente nach der Entladung aus dem Reaktor.
Abschirmung	Schutzeinrichtung um radioaktive Quellen bzw. kerntechnische Anlagen, um deren Strahlung nach außen den Erfordernissen entsprechend zu verringern.
Alpha-Strahlung	(α -Strahlung) Abspaltung eines Teilchens, bestehend aus 2 Neutronen und 2 Protonen (Heliumkern), von einem instabilen Atomkern. Der Atomkern wandelt sich dabei in einen Atomkern niedrigerer Massen- und Kernladungszahl um.
Aerosol	Schwebfähige, feinste Verteilung eines flüssigen oder festen Stoffes in gasförmige Medien.
Aktivität	Anzahl der Zerfallsakte in einer Zeiteinheit; s. Radioaktivität.
Angereichertes Uran	Natürliches Uran besteht etwa zu 99,3 % aus Uran-238 und 0,7 % aus Uran-235. Da nur das Isotop Uran-235 in Leichtwasser-Reaktoren spaltbar ist, wird der Uran-235-Anteil auf etwa 3 % im Brennstoff angereichert.
Äquivalenzdosis	Strahlendosis. Sie ist ein Maß für die biologischen Veränderungen einer Substanz durch Bestrahlung. Dabei geht zunächst ein, wieviel Energie pro Mengeneinheit eine Substanz aufnimmt (Energiedosis). Zusätzlich wird berücksichtigt, daß die verschiedenen Strahlungsarten sich durch ihre biologische Wirksamkeit unterscheiden. Um dieser unterschiedlichen Wirksamkeit Rechnung zu tragen, multipliziert man Energiedosis mit dem Faktor für die relative biologische Wirksamkeit (RBW-Faktor) und erhält so ein neues Maß für die Dosis, die man als Röntgenäquivalent für den Menschen bezeichnet: "rem"="roentgen equivalent man".
AVM	Atelier Vitrification Marcoule.
Brennstoffkreislauf	Eine Reihe von Verfahrensstufen bei der Versorgung von Kernreaktoren mit Kernbrennstoff. Dazu gehören der Uranbergbau, die Brennstoffanreicherung, die erstmalige Fabrikation der Brennelemente, ihre Verwendung in einem Reaktor, die chemische Wiederaufarbeitung zur Rückgewinnung der im bestrahlten Brennstoff verbleibenden Spaltstoffe, die Verarbeitung zu neuen Brennelementen und Endlagerung der radioaktiven Abfälle.

Brüten	Umwandlung von nichtspaltbarem in spaltbares Material, z. B. Uran-238 in Plutonium-239.
Brutstoff	Nicht spaltbarer Stoff, aus dem durch Neutronenabsorption und nachfolgende Kernumwandlungen spaltbares Material entsteht. Ein Brutstoff ist z. B. U-238, das in spaltbares Pu-239 umgewandelt wird: $\text{U-238} + \text{n} \rightarrow \text{U-239} \rightarrow \text{Np-239} \rightarrow \text{Pu-239}$
Beta-Strahlung	(β -Strahlung). Aussendung eines negativ geladenen Elektrons oder eines positiv geladenen Elektrons (Positron).
Brennelement	Ein Brennelement ist ein Spaltstoff enthaltendes Bauteil, das beim Be- und Entladen eines Reaktors eine Einheit bildet. Brennelemente sind z. B. Brennstab-bündel oder Spaltstoff enthaltende Kugeln.
Brennstab	Ein Brennstab ist ein Spaltstoff enthaltendes kleinstes konstruktiv selbständiges Teil eines Brennelements in Form eines Stabes.
Brennstoffhülse	Dichte und formfeste Hülse zur Aufnahme des Kernbrennstoffes, die diesen gegen eine chemisch aktive Umgebung (Kühlmittel) schützt und den Austritt von Spaltprodukten in das Kühlmittel verhindert.
Dekontamination	Säuberung der Oberfläche von Gegenständen, die mit radioaktiven Teilchen behaftet sind, mit chemischen oder physikalischen Verfahren, z. B. Abwaschen oder Reinigen mit Chemikalien. Der Gegenstand selbst ist nicht radioaktiv. Eine Dekontamination von Stoffströmen, wie Luft und Wasser, wird mit Filtern bzw. Verdampfern und Ausfällern durchgeführt.
Dodekan	Organische Kohlenwasserstoff-Verbindung
Emission	Freisetzung von Luftverunreinigungen, Geräuschen, Wärme, Strahlen und ähnlichen Umwelteinwirkungen.
Euratom	Europäische Atomgemeinschaft zur Förderung der friedlichen Nutzung der Kernenergie. Mitgliedsstaaten: Belgien, Bundesrepublik Deutschland, Dänemark, Frankreich, Griechenland, Großbritannien, Irland, Italien, Luxemburg und Niederlande.
EVA	Einwirkung von außen; im Rahmen des atomrechtlichen Genehmigungsverfahrens für kerntechnische Anlagen muß nachgewiesen werden, daß die Anlage spezifizierten Lastfällen wie z. B. Erdbeben, Flugzeugabsturz und Explosionsdruckwellen standhält.
Gamma-Strahlung	(γ -Strahlung. Aussendung von Energie durch Strahlung aus einem instabilen Atomkern. γ -Strahlung ist elektromagnetische Strahlung mit äußerst kurzer Wellenlänge.

geometrisch sicher	bezeichnet ein Spaltstoff enthaltendes System, in dem aufgrund seiner geometrischen Anordnung oder Form keine sich selbst erhaltende Kettenreaktion auftreten kann.
Halbwertszeit	Die Zeit, in der die Hälfte der Kerne eines Radionuklids zerfällt. Die Halbwertszeiten bei den verschiedenen Radionukliden sind sehr unterschiedlich, z. B. $2 \cdot 10^{18}$ Jahre (Bi-209) und $3 \cdot 10^{-7}$ Sekunden (Po-211).
HAW	high active waste; hochradioaktiver Abfall
HEU	high enriched uranium; hochangereichertes Uran
Iod	Chemisches Element (I), dessen radioaktive Isotope I-129 mit einer Halbwertszeit von $1,7 \cdot 10^7$ Jahre und I-131 mit einer Halbwertszeit von 8,04 Tagen zerfallen.
Isotope	Atomarten, die gleiche Kernladungszahl (Protonenzahl) besitzen und daher zum gleichen Element gehören (isos = gleich; topos = Ort). Alle Isotope eines Elements haben die gleichen chemischen Eigenschaften.
Kernbrennstoff	Material, das spaltbare Nuklide - z. B. Uran-235 oder Plutonium-239 - in ausreichender Menge enthält, um im Reaktor eines Kernkraftwerkes eine Kettenreaktion aufrechtzuerhalten.
Kerosin	Gemisch aus verschiedenen Kohlenwasserstoff-Verbindungen. Hauptanteil ist Dodekan.
Kontamination	Verunreinigung von Arbeitsflächen, Geräten, Räumen, Wasser, Luft usw. durch radioaktive Stoffe.
Kritikalität	Zustand eines Systems von Nukliden, die bei der Absorption von Neutronen gespalten werden, wobei bei jedem Spaltvorgang neue zur Spaltung fähige Neutronen entstehen können. Die Zahl der durch Spaltung erzeugten Neutronen wird durch den Multiplikationsfaktor k charakterisiert. Man unterscheidet folgende Möglichkeiten: $k < 1$: das System ist unterkritisch, d. h. es entstehen weniger Neutronen, als zur Erhaltung der Kettenreaktion notwendig sind; $k = 1$: das System ist kritisch, d. h. die Kettenreaktion läuft unter konstanten Bedingungen; $k > 1$: das System ist überkritisch, d. h., die Zahl der pro Zeiteinheit stattfindenden Kernspaltungen nimmt zu.
Krypton	Chemisches Element (Kr) und Edelgas, dessen radioaktives Isotop Kr-85 mit einer Halbwertszeit von 10,76 Jahren zerfällt.
Kritisches Organ	Das Organ oder Organsystem des menschlichen Körpers, das bei einer Schädigung durch ein gegebendes Radionuklid zur größten Beeinträchtigung der Gesamtfunktion des Körpers beiträgt (Beispiel Iod-129 - Schilddrüse).

Lagerbecken	Quaderförmige Becken mit Einrichtungen zur Lagerung von ausgedienten Brennelementen. Sie sind zur Kühlung der Brennelemente und zum Strahlenschutz mit Wasser gefüllt.
Leichtwasser-Reaktoren	Kernreaktoren, die natürliches Wasser H_2O zur Bremsung (Moderierung) von schnellen Neutronen und zur Wärmeabfuhr benutzen.
Magnox	Hüllrohrmaterial in graphitmoderierten, gasgekühlten Reaktoren. Magnox (magnesium non oxidizing) ist eine Legierung aus Al, Be, Ca und Mg.
MAW	medium active waste (mittelaktiver Abfall)
Nachzerfallswärme	Wärme, die auch nach Abschaltung eines Kernreaktors oder Auslagerung von Brennelementen durch den weiteren Zerfall radioaktiver Spaltprodukte entsteht.
Nuklid	Atomkernart, die im wesentlichen durch Protonenzahl und Neutronenzahl charakterisiert ist. Es sind etwa 1500 verschiedene Nuklide bekannt, die sich auf 107 Elemente verteilen. Davon sind etwa 1200 Radionuklide.
Purex	Plutonium (and Uranium) Recovery by Extraction; Plutonium- und Uranrückgewinnung durch Extraktion.
Radioaktivität	Spontaner Zerfall von instabilen Atomkernen, sogenannten Radionukliden. Sie wandeln sich unter Aussendung einer radioaktiven α , β - oder γ -Strahlung in andere Nuklide um.
Radionuklid	Ein Nuklid, das sich unter Aussendung einer charakteristischen α -, β - oder γ -Strahlung entsprechend seiner Halbwertszeit in andere Nuklide umwandelt. Es gibt sowohl in der Natur vorkommende, als auch durch kernphysikalische Prozesse künstlich erzeugte Radionuklide.
Schneller Brutreaktor	Kernreaktor, dessen Kettenreaktion durch schnelle Neutronen aufrechterhalten wird und der mehr spaltbares Material erzeugt als er verbraucht. Der Brutstoff U-238 wird unter Neutroneneinfang und nachfolgende Beta-Zerfälle in den Spaltstoff Pu-239 umgewandelt.
Spaltprodukte	Chemische Elemente, die bei der Spaltung, z. B. von Uran, entstehen.
Strahlenbelastung	Einwirkung ionisierender Strahlen auf den menschlichen Körper (Maßeinheit: $\mu J kg^{-1}$ ($\mu J kg^{-1}$ = mikro-Joule pro kg), $1 \mu J kg^{-1} = 0,1 mrem$).
Strahlenexposition	Strahlenbelastung des Menschen.
Strahlenschutz	Maßnahmen zum Schutz des Menschen vor schädlichen Wirkungen ionisierender bzw. radioaktiver Strahlen.

Maßeinheiten

a	annum	Jahr
Ci	Curie	Maßeinheit für die Aktivität eines radioaktiven Stoffes: $1 \text{ Ci} = 3,7 \cdot 10^{10} \text{ s}^{-1}$ (Zerfälle/Sekunde)
d	dies	Tag
h	hora	Stunde
mrem	Millirem	$1 \text{ mrem} = 10^{-3} \text{ rem}$.
MW	Megawatt	Maß für Leistung: $1 \text{ MW} = 10^3 \text{ kW} = 10^6 \text{ W} = 10^6 \text{ J/s}$
MWd/t		Megawatttage pro Tonne eingesetzten Kernbrennstoffes- Maß für den Abbrand.
rem		Äquivalentdosis: Maß für die biologische Wirkung radioaktiver Strahlen.
s		Sekunde.
t		Tonne = 10^3 kg

Literatur:

- /1/ Deutscher Bundestag: 8. Wahlperiode, Drucksache 8/4341 (1980) 155 ff
- /2/ W. Häfele: Untersuchungen zur Größe einer Demonstrations-Wiederaufarbeitungsanlage für bestrahlte Kernreaktorbrennelemente im Hinblick auf die Demonstration der dabei erforderlichen Technologien.
Gutachten im Auftrage des BMFT, Bonn (Mai 1981) 30 S.
- /3/ Deutscher Bundestag: 9. Wahlperiode, Drucksache 9/1147 (1981) 42 S.
- /4/ B. Fischer, H. Hirsch, L. Ellerbroek: Untersuchungen zur Zweckmäßigkeit und Erfolgchancen der Weiterentwicklung des PUREX-Prozesses für die Wiederaufarbeitung von abgebranntem Leichtwasserreaktorbrennstoff sowie zu Notwendigkeit, Nutzen und Größe einer Demonstrations-Wiederaufarbeitungsanlage.
Institut für ökologische Forschung und Bildung Hannover, Gruppe Ökologie (Dezember 1981) 63 S.
- /5/ Siehe z. B.:
- E. Merz: Technik von Wiederaufarbeitungsanlagen und Erfahrungen mit Prototypenanlagen.
Anhörverfahren vor dem Landtag von Rheinland-Pfalz zu den Problemen der Sicherheit sowie der Kriterien für Standorte möglicher Anlagen zur Wiederaufarbeitung. Mainz (März 1982) 20 S.
J. Rehnelt, E. Robinson: Vom Stand der Wiederaufarbeitung.
Stellungnahme zur "Hirsch-Studie". Hannover (Mai 1982) 47 S.
H. Stöber, G. Baumgärtel: Stellungnahme zur "Hirsch-Studie". Karlsruhe (März 1982) 23 S.
- /6/ K.D. Closs et al.: Vergleich der verschiedenen Entsorgungsalternativen und Beurteilung ihrer Realisierbarkeit. Studie "Entsorgungsalternativen". Bericht KfK-3000 (1980)
- /7/ Bulletin der Bundesregierung, Nr. 122 vom 11.10.1979, S. 1133 ff
- /8/ W. Heinz, K. L. Huppert: Der Beitrag des WAK-Betriebes zur Konzeptfindung und Auslegung einer Produktionsanlage.
PWA-Statusbericht Projekt Wiederaufarbeitung und Abfallbehandlung 1979 KfK-2940 (1980) 44 S.

- /9/ DWK-Broschüre "Transportbehälterlager - Die trockene Lagerung von ausgedienten Brennelementen"
- /10/ H. Kleykamp: "Untersuchungen zur Zusammensetzung von Lösungsrückständen aus der Wiederaufarbeitung bestrahlter LWR-Brennelemente",
KfK - 2665 (1978)
sowie
H. Kleykamp: "Zusammensetzung von Rückständen aus der Auflösung von bestrahltem LWR- (U-, Pu) O₂ mit rückgeführtem Plutonium",
Atomwirtschaft (Juli 1982) 385
- /11/ NN: WAK Returns To Operation,
Nuclear Engineering International, Vol. 27, Nr. 335 (Dez. 1982)
- /12/ E. B. Sheldon: "Experience with Processing irradiated Fuel at the Savannah River Plant"
DP 1467 (1977)
- /13/ F. Baumgärtner: "Chemie der nuklearen Entsorgung"
Thiemig Taschenbücher Bd. 65, 66, 91
- /14/ Reactor Handbook, Vol. II Fuel Reprocessing, New York, 1961
- /15/ F. Baumgärtner und H. Philipp: "Die Wiederaufarbeitung von Uran-Plutonium-Kernbrennstoffen" in Fortschritte der chemischen Forschung, Bd. 12, Heft 4;
Springer-Verlag Berlin-Heidelberg-New York (1969)
- /16/ L. Stieglitz und R. Becker: "Die Radiolyseprodukte des PUREX-Prozesses und ihre verfahrenstechnische Bedeutung"
KfK-Nachrichten 11, 3/79
- /17/ K. L. Huppert: "Auswirkungen hoher Abbrände auf die Wiederaufarbeitung nach dem PUREX-Verfahren"
in Techn. Wiss. Colloquium, GWK 1978
- /18/ K. H. Lieser, A. Krüger, R. N. Singh: "Das Verhalten von Technetium im PUREX-Prozeß" in Nukleare Entsorgung,
Bd. 1, 1981, Verlag Chemie 1981
- /19/ W. Wagner und W. Ochsenfeld: "Optimierung des zweiten Uranzyklus im Hinblick auf eine gute Neptunium-Abtrennung"
in Nukleare Entsorgung, Bd. 1, 1981, Verlag Chemie 1981

- /20/ F. Baumgärtner: "Chemie der Nuklearen Entsorgung", Teil I und II, Thiemig Taschenbücher (1978)

- /21/ W. Hübschmann et al: Kosten-Nutzen-Analyse der Kr-85-Rückhaltung in einer Kernbrennstoff-Wiederaufarbeitungsanlage, KfK 3044, Karlsruhe (1980)

- /22/ Sammlung der Vorträge anlässlich des 3. Statusberichtes des Projektes Wiederaufarbeitung und Abfallbehandlung am 08. 11. 1979, 163, KfK 2940, Karlsruhe (1980)

- /23/ Sammlung der Vorträge anlässlich des 4. Statusberichtes des Projektes Wiederaufarbeitung und Abfallbehandlung am 05. 11. 1981, 119, KfK 3290, Karlsruhe (1982)

- /24/ Seminar on Radioaktive Effluents from Reprocessing Plants, Karlsruhe (Nov. 1977)

- /25/ 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)

- /26/ J. Bohnenstingl et al: Cryogenic Separation of Krypton and Xenon from Dissolver Off-Gas, IAEA-SM-207/20, 324, Wien (1977)

- /27/ D. Niephaus, O. Nommensen, H. Brücher: Langfristige Lagerung von radioaktivem Krypton in Druckbehältern, EUR 7771 (1982)

- /28/ Methods and Techniques for Radioiodine Removal in Nuclear Facilities, including Emergency Situations, IAEA, Wien (1978)

- /29/ J. G. Wilhelm, J. Furrer, E. Schultes: Head-End Iodine Removal from a Reprocessing Plant with a Solid Sorbent, CONF-760822, 447 (1977)

- /30/ H. Krause: Forschungs- und Entwicklungsarbeiten im KfK zur Behandlung radioaktiver Abfälle aus dem Brennstoffkreislauf, Bericht KfK 2940 (1980) S. 94 - 117

- /31/ H. Eschrisch, J. van Geel, E. Detilleux: Management of Fuel Reprocessing Waste at Eurochemic, Eurochemic Technical Report ETR-278
- /32/ R. E. Burns: High-level waste concentration and storage - An overview, BNWL-SA-5477 (1975)
- /33/ B. F. Warner, A. S. Davidsen, M. J. Larkin, A. Naylor: Operational Experience in the evaporation and storage of highly-active fission-product wastes at Windscale, Proceedings of OECD/IAEA-Symposium on the management of radioactive wastes from fuel reprocessing, Paris 1972
- /34/ H. W. Godbee, J. T. Roberts: Laboratory development of a pot calcination process for converting liquid wastes to solids, USAEC Rep. ORNL-2986, Oak Ridge National Laboratory, 1961
- /35/ A. Abriss, J. J. Reilly, E. J. Tuthill: Separation of cesium and strontium from calcined metal oxides as a process in disposal of high level wastes, USAEC Report TID-7550, pp. 17 - 33 (1958)
- /36/ J. Saidl. L. Kahl: Die Aufnahmefähigkeit des Borosilikatglases VG 98/12 für die Bestandteile des hochradioaktiven Abfalls, Proceedings of the International Seminar on Chemistry and Process Engineering for High-Level Liquid Waste Solidification, 1 - 5 June 1981, Jül-Conf-42 (Vol. 2) 1981; ISSN 0344-5798
- /37/ A. E. Ringwood: Safe disposal of high level nuclear reactor wastes: A new strategy, Australian National University Press, Canberra, Australia and Norwalk, Com., USA, 1978
- /38/ A. R. Hall: Development and radiation stability of glasses for highly radioactive wastes. Management of Radioactive Wastes from the Nuclear Fuel Cycle (Proc. Symp. Vienna, 1976) 2, IAEA, Vienna (1976) 3

- /39/ L. Kahl, M. C. Ruiz-Lopez, J. Saidl, Th. Dippel: Herstellung und Charakterisierung eines verbesserten Borosilikatglases zur Verfestigung von hochradioaktiven Spaltproduktlösungen (HAW), KfK-Bericht 3251, Februar 1982
- /40/ K. Scheffler et al.: Zur Problematik der sicheren Beseitigung α -haltiger Abfälle aus Wiederaufarbeitung und Brennelementfertigung am Beispiel des Langzeitverhaltens hochaktiver Gläser, KfK-2170 (1975) Energiespeicherung in Borosilikatgläsern, KfK-2333 (1976)
- /41/ F. Baumgärtner, Hrsg.: Chemie der Nuklearen Entsorgung, Teil III, Verlag Karl Thieme, München, Band 91, 1980, Beitrag: P. Zühlke, W. Heimerl: Konzept und Entwicklungsstand der HAW-Verfestigung in der Bundesrepublik Deutschland, S. 186 - 195
- /42/ S. Halaszovich, et al.: A process for solidification of fission product solutions using a drum driver. Management of Radioactive Wastes from the Nuclear Fuel Cycle, Proc. Symp. Vienna, 1976, STI/PUB/433, Vol. I (1976)
- /43/ *ibid.*
Beitrag: R. Köster, G. Rudolph: Stoffliche Untersuchungen zu zementierten Abfallprodukten, S. 287 - 296
- /44/ V. W. Schneider, W.-G. Druckenbrodt: Recent operating experience with the AUPUC-Co conversion Process. Trans. Am. Nucl. Soc. 40 (1982); TANSO 40, 1 - 273 (1982); ISSN 0003-018 X. pp. 50 - 52
- /45/ R. Gilissen et al.: The fabrication of (U, Pu) O₂ Fuel Pellets from Gel Microspheres.
ibid; pp. 52 - 54
- /46/ L. Finsterwalder: "Der gegenwärtige Kenntnisstand der nuklearen Entsorgung" in Haus der Technik, Vortragsveröffentlichungen 400 (1977)

- /47/ G. Baumgärtel: "Erfahrungen mit der Wiederaufarbeitung bestrahlter Kernbrennstoffe und das F+E-Programm des Projektes Wiederaufarbeitung und Abfallbehandlung (PWA)"
in KfK-Nachrichten 14, 3/82
- /48/ Rede - Gegenrede, Symposium der Niedersächsischen Landesregierung zur grundsätzlichen sicherheitstechnischen Realisierbarkeit eines integrierten nuklearen Entsorgungszentrums, Hrg. Deutsches Atomforum e. V. 1979, Seiten 32/33
- /49/ G. Koch: "Existierende und geplante Wiederaufarbeitungsanlagen" in Chemie der nuklearen Entsorgung Bd. III,
Thiemig-Taschenbuch 91 (1980)
- /50/ M. Mégy: "Le retraitment des combustibles irradiés",
Colloque Energie et Société a la Unesco, Paris, 1981
- /51/ Nuclear Europe 6, 1982, S. 11 - 13
- /52/ Zitat (1) aus Kapitel 2.5
- /53/ Rede - Gegenrede, Symposium der Niedersächsischen Landesregierung zur grundsätzlichen sicherheitstechnischen Realisierbarkeit eines integrierten nuklearen Entsorgungszentrums, Hrg. Deutsches Atomforum e. V. 1979, Seiten 26/27
- /54/ C. J. Joseph, J. van Geel, E. Detilleux u. J. Centeno:
"Technological experience with extraction equipment at Eurochemic"
in Proceedings of the International Solvent Extraction Conference,
The Hague, 1971, Vol. I, S. 593 - 600
- /55/ O. v. Busekist: "Der Werdegang der Eurochemic - eine Bilanz",
Atomwirtschaft 5 (1980) S. 258 - 265
- /56/ E. Detilleux u. L. Geens: "Reprocessing Activities at Eurochemic,
A General Review", Proceedings of a tripartite symposium, held at
Mol on Reprocessing of spent nuclear Fuel, R 2604, S. 176 - 214,
Mol (1981)

- /57/ R. R. Boussard, M. Delange u. M. Chambou: "Le centre de la Hague pour le traitement des combustibles irradiés",
Industrie Atomiques 9110 (1968) S. 47
- /58/ G. Lurf: "Die französischen Aktivitäten im Brennstoffkreislauf",
Atomwirtschaft, 2 (1979) S. 76/82
- /59/ K. Nakajima: "The PNC-Reprocessing Plant Construction and Operation",
Annual Conf. of the Japan Atomic Industrial Forum,
Tokyo 1975, 67/82
- /60/ Atomwirtschaft 1 (1982) 9
- /61/ K. Nakajima: "Present Status and Prospects of Reprocessing",
International ENS/ANC Conference, Brüssel 1982, Proceedings of the
Plenary Sessions, s. 201/203
- /62/ T. G. Hughes: Criticality Incident at Windscale, Nuclear Engineering
International, February 1972
- /63/ W. W. Schulz, F. A. Scott, E. E. Violand: Explosive hazards in the
nitric acid dissolution of Uranium-Zirconium alloy fuel elements,
HW-32365 (1954)
- /64/ Department of Energy: "Report by the Chief Inspector of Nuclear
Installations on the incident in Building 204 at the Windscale Works
of British Nuclear Fuels Limited on September 26, 1973", July 1974
- /65/ T. J. Colvin, G. M. Nichols, T. H. Siddall: TNX evaporator incident
January 13, 1953,
USAEC-Report DP-25 (1953)
- /66/ Port-Hope-Bericht (1980)
- /67/ H. W. Beaujean, G. Kraft, H. Wiese, R. Becker, H. G. Burkhardt:
Messung des Radiolysewasserstoffs im Hochaktivwastelager der WAK
sowie Abschätzung der Wasserstoff-Freisetzungsrates,
Technischer Bericht der GWK, Nr. 248, Teile A und B, Oktober 1978

- /68/ H. W. Beaùjean, K. I. Birringer, G. Kraft, W. Wagner: Messung des Radiolysewasserstoffs im Hochaktivwastelager der WAK (2. Meßreihe), Technischer Bericht der GWK, Nr. 259, Mai 1979

- /69/ H. W. Beaùjean, G. Kraft, W. Weishaupt: Messung der Belüftungsrate des HAWC-Lager-Tanks der WAK, GWK-271 (1979)

- /70/ Gesetz über die friedliche Verwendung der Kernenergie und den Schutz gegen ihre Gefahren (Atomgesetz) vom 23. Dezember 1959, in der Fassung der Bekanntmachung vom 31. Okt. 1976 (BGBl. I S. 3055, 1976)

- /71/ Gründungsvertrag der Europäischen Atomgemeinschaft (EURATOM) vom 25. März 1957 (BGBl. II, S. 1014, 1957)

- /72/ Gesetz zum Verifikationsabkommen vom 5. April 1973 (BGBl. II, S. 794, 1974)

- /73/ Chr. Brückner: Die Kernmaterialüberwachung in der Bundesrepublik Deutschland durch EURATOM und IAEA, Atom und Strom 25, 4, S. 106, 1979

- /74/ TASTEX, Tokai Advanced Safeguards Exercise - IAEA Technical Reports Series Nr. 213 (STI/DOC/10/213, April 1982)

- /75/ Reprocessing, Plutonium, Handling, Recycle - Report of INFCE Working Group 4 (STI/PUB/534, IAEA, Vienna, 1980)

- /76/ W. Schüller: Der sicherheitstechnische Stand der Entsorgung, Atomwirtschaft (Juli 1980) 359 - 367

- /77/ BMI, Allgemeine Berechnungsgrundlagen für die Bestimmung der Strahlenexposition durch Emission radioaktiver Stoffe,
I Abluft, Bonn 1977
II Abwasser, Bonn 1977

- /78/ H. Schüttelkopf, Berichtsband Fachtagung Radioökologie, Bonn, 2. - 3. Okt. 1979

- /79/ P. Handge, H. Biesold und G. Meurin, Berichtsband
Fachtagung Radioökologie, Bonn, 02. bis 03. Okt. 1979
- /80/ F. Führ, Berichtsband Fachtagung Radioökologie,
Bonn, 02. bis 03. Okt. 1979
- /81/ I. Gans und J. Arndt, Endbericht zu Teilstudie 6,
Modellstudie Radioökologie Biblis, 1980
- /82/ O. Huber und H. G. Paretzke, Radioökologiesymposium,
Stuttgart, 1981
BMI, Arbeitsgemeinschaft Umweltfragen
- /83/ H. D. Brenk und K. J. Vogt, 12. Jahrestagung Fachverband
Strahlenschutz, Norderney, 1978
- /84/ W. Feldt, Berichtsband Fachtagung Radioökologie,
Bonn, 02. bis 03. Okt. 1979
- /85/ J. O. Blomeke, J. P. Nichols, W. C. McClain: Managing radioactive
wastes. *Physics Today* 26, 1973; 36 - 42
- /86/ J. J. Cohen, H. A. Tewes: Development of Radiological Criteria
for Nuclear Waste Management. IAEA-SR-36/22, 1979
- /87/ IAEA-Vienna: IAEA Safety Series No. 54: Recommendations on Underground
Disposal of Radioactive Wastes, Basic Guidance.
IAEA-Vienna, 1981
- /88/ M. J. Clark, A. B. Fleischmann, G. A. M. Webb: Optimisation of
the Radiological Protection of the Public. Report NRPB-R 120,
HMSO, London, 1981
- /89/ J. W. Bartlett, H. C. Burkholder, W. K. Winegardner: Safety
Assessment of Geologic Repositories of Radioactive Waste.
Report BNWL-SA-6068, 1977

- /90/ H. Röthemeyer: Konzepte zur Endlagerung in geologischen Formationen. Int. Seminar über Chemie und Verfahrenstechnik bei der Verfestigung flüssiger hochradioaktiver Abfälle, KFA-Jülich, 1. - 5. 6. 1981, JÜL-Conf-42 (Vol. 2), 1981, 767 - 783
- /91/ P. D. Johnston: Considerations for waste conditioning associated with near field phenomena and geochemical processes in a geological disposal environment. Int. Symp. on the Conditioning of Radioactive Wastes for Storage and Disposal, Utrecht, The Netherlands, 21. - 25. 6. 1982, IAEA-SM-261/5
- /92/ G. Memmert: Zur Beurteilung der Barrieren in einem Endlager für radioaktiven Abfall. Int. Seminar über Chemie und Verfahrenstechnik bei der Verfestigung flüssiger hochradioaktiver Abfälle. KFA-Jülich, 1. bis 5. 6. 1981; JÜL-Conf-42 (Vol. 2), 1981, 873 - 890
- /93/ F. Girardi, A. Avogadro, G. Bertozzi, M. D'Alessandro, F. Lanza, N. C. Murray: A risk analysis methodology for deep underground radioactive waste repositories and related experimental research. Proc. IAEA Symp. Underground Disposal of Radioactive Wastes, Otaniemi, Finland 1979, IAEA Vienna, 1980, 407
- /94/ J. Hamstra: Radiotoxic hazard measure for buried solid radioactive waste. *Nuclear Safety* 16, 1975, 180 - 89
- /95/ E. Hofrichter: Probleme der Endlagerung radioaktiver Abfälle in Salzformationen. *Z. dt. geol. Ges.* 131, 1980, 409 - 430
- /96/ US-NRC: NRC publishes criteria for geological disposal of high level waste. *Radwaste News* 1, No. 11, 1980
siehe auch: NWTS program criteria for geological disposal of nuclear waste. Site performance criteria, US-DOE/NWTS-33 (2), 1981
- /97/ B. Verkerk: Comparison of Long-Term Release Consequences for Spent Fuel and Vitrified Waste Repositories in a Salt Formation. *Radioactive Waste Management* 1, 1981, 337

- /98/ J. R. Grover, N. J. Keen: Factors influencing the choice of process for the treatment of intermediate level wastes. IAEA/CEC/OECD/NEA Int. Symp. on the Conditioning of Radioactive Wastes for Storage and Disposal, Utrecht, The Netherlands, 21. - 25. 6. 1982, IAEA-SM-261/28
- /100/ US-Department of Energy: NWTS Program Office. NWTS Program Criteria for Mined Geologic Disposal of Nuclear Waste. Program Objectives, Functional Requirements and System Performance Criteria. Report DOE/NWTS-33 (1), 1981
- /101/ OECD: Decision of the OECD-Council of 22nd July 1977 establishing a "Multilateral Consultation and Surveillance Mechanism for Sea Dumping of Radioactive Waste". OECD, C (77) 115, Paris, 1977
- /102/ Der Bundesminister des Innern: Expertenbericht der NEA (deutsche Übersetzung). Die radiologische Bedeutung und Beseitigung der im nuklearen Brennstoffkreislauf anfallenden Radionuklide Tritium, Kohlenstoff-14, Krypton-85 und Iod-129, Bonn, April 1980
- 103/ Convention on the Prevention of Marine Pollution by Dumping of Wastes and Other Matter, drawn up at the Inter-Governmental Conference on Dumping of Wastes at Sea, held in London from 30th October to 10th November 1972. Reproduced in IAEA document INFCIRC/205, Wien, 1957 (INFCIRC/205/Add. 1, and INFCIRC/205/Add. 1, Rev. 1)
- /104/ M. Laser (Hrsg.): Versenkung spezieller radioaktiver Abfälle in der Tiefsee. KFA-Jülich, Seminarbericht JÜL-Conf-40, 1980
- /105/ Feasibility of Space Disposal of Radioactive Nuclear Waste, NASA-TM-X 2911, Ohio 1973
- /106/ U. S. Department of Energy: Management of Commercially Generated Radioactive Waste, Final Environmental Impact Statement. DOE EIS-0064 F, Volumes 1 - 3, October 1980

- /107/ J. L. McElroy, R. E. Burns: Nuclear Waste Management Status and Recent Accomplishments. EPRI-NP-1087, May 1979
- /108/ E. Merz: Produktformen - eine Übersicht. Int. Seminar über Chemie und Verfahrenstechnik bei der Verfestigung flüssiger hochradioaktiver Abfälle. KFA-Jülich, 1. - 5. 6. 1981, JÜL-Conf-42 (Vol. 2), 1981, 540 - 557
- /109/ E. Merz: Realisierung der geologischen Endlagerung radioaktiver Abfälle. Energiewirtschaftliche Tagesfragen 32, 1982, 156 - 161,
- /110/ G. Koch: "Chemische Aufarbeitung der bestrahlten Kernbrennstoffe" in "Kernbrennstoffkreislauf Band II", A. Hüthig Verlag, Heidelberg (1978)
- /111/ Sammlung der Vorträge anlässlich des 3. Statusberichtes des Projektes Wiederaufarbeitung und Abfallbehandlung am 8. 11. 1979, KfK 2940, Karlsruhe (1980)
- /112/ Sammlung der Vorträge anlässlich des 4. Statusberichts des Projektes Wiederaufarbeitung und Abfallbehandlung am 5. 11. 1981, KfK 3290, Karlsruhe (1982)
- /113/ W. Schüller: Der sicherheitstechnische Stand der Entsorgung, Atomwirtschaft 25, 359 (Juli 1980)
- /114/ H. Schmieder et al.: Elektrolysemischabsetzer (2B-EMMA) und Elektrooxidationszelle (ROXI) für den 2. Pu-Zyklus der WAK, KfK 2957, Karlsruhe (1981)
- /115/ R. Kroebel: Forschungs- und Entwicklungsarbeiten in der Bundesrepublik Deutschland zur Wiederaufarbeitung und Abfallbehandlung von LWR-Brennelementen - Erreichtes und Geplantes, Vulkan-Verlag, Essen (1978)

/116/ H. Schmieder, H. Goldacker, M. Heilgeist, M. Kluth:
Neue Verfahrensschritte für die Wiederaufarbeitung,
Atomwirtschaft, 304, (Juni 1982)

/117/ M. Rapin. Cycle du combustible des réacteurs rapides.
Perspectives dans le monde et en France.
CEA, Notes d'information, Nr. 12 (Dez. 1981)