

**KERNFORSCHUNGSZENTRUM
KARLSRUHE**

April 1975

KFK 2104

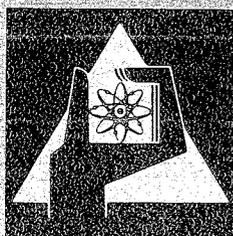
Abteilung Behandlung radioaktiver Abfälle

Die Fixierung radioaktiver Abfälle in Bitumen

Teil 1

**Die Betriebsanlage zur Fixierung
radioaktiver Verdampferkonzentrate in Bitumen
im Kernforschungszentrum Karlsruhe**

G. Meier, W. Bähr



**GESELLSCHAFT
FÜR
KERNFORSCHUNG M.B.H.**

KARLSRUHE

Als Manuskript vervielfältigt

Für diesen Bericht behalten wir uns alle Rechte vor

GESELLSCHAFT FÜR KERNFORSCHUNG M. B. H.
KARLSRUHE

Kernforschungszentrum Karlsruhe

KFK 2104

Abteilung Behandlung radioaktiver Abfälle

Die Fixierung radioaktiver Abfälle in Bitumen

Teil 1

Die Betriebsanlage zur Fixierung radioaktiver Verdampferkonzentrate
in Bitumen im Kernforschungszentrum Karlsruhe

G. Meier

W. Bähr

Gesellschaft für Kernforschung m.b.H., Karlsruhe

Zusammenfassung

Der Bericht über die Fixierung radioaktiver Abfälle in Bitumen ist in zwei Teile unterteilt.

Im Teil 1 wird über die in den ersten 3 Jahren gemachten Betriebserfahrungen berichtet. Teil 2 (in Vorbereitung) gibt eine Zusammenfassung aller aus den Forschungs- und Entwicklungsprogrammen resultierenden Ergebnisse.

Anfang des Jahres 1972 wurde im Kernforschungszentrum Karlsruhe eine Anlage zur Fixierung radioaktiver Verdampferkonzentrate in Bitumen in Betrieb genommen. Mit dieser Anlage ist es möglich, ein praktisch wasserfreies, für die Endlagerung im Salzbergwerk Asse geeignetes Produkt herzustellen, das bis zu 60 Gew% radioaktiver Salze enthalten kann.

Die Anlage und ihre einzelnen Komponenten werden ausführlich beschrieben. Über die Erfahrungen beim inaktiven Probetrieb und die daraus resultierenden Veränderungen an der Maschine wird berichtet. Die Betriebserfahrungen aus über zweijährigem aktiven Betrieb, die Eigenschaften des Produktes, sowie die ermittelten Dekontaminationsfaktoren werden dargestellt. Ebenfalls wird auf zwei Störfälle während des aktiven Betriebes eingegangen.

Abstract

The incorporation of radioactive wastes into bitumen.

Part 1

The Bituminization Plant for radioactive evaporator concentrates at the Karlsruhe Nuclear Research Center.

The report on the bituminization of radioactive waste is divided into two parts. Part 1 is a summary of the experience made during the first three years operation of the industrial bituminization plant. Part 2 (in preparation) gives a survey on the results obtained in the research and development program on bituminization of radioactive wastes.

At the beginning of 1972 a plant for the incorporation of radioactive evaporator concentrates into bitumen started operation in the Karlsruhe Nuclear Research Center. This plant allows the production of solidified waste that is suitable for the disposal in the salt mine Asse. Products of $\leq 0,5$ wt% residual H_2O and up till 60 wt% salts can be obtained.

A detailed description of the plant and its components is given. The experience of the cold test runs and the resulting modifications are reported together with the experience of more than two years hot operation. Decontamination factors and product properties are given. Two incidents that happened during hot operation are reported.

Inhaltsverzeichnis

1. Einleitung
2. Beschreibung der Anlage
 - 2.1 Anordnung
 - 2.2 Fließschema
 - 2.3 Komponenten
 - 2.3.1 Maschine
 - 2.3.2 Abfüllung und Transport
 - 2.3.3 Bitumensystem
 - 2.3.4 Konzentratsystem
 - 2.3.5 Destillatsystem
 - 2.3.6 Kühlsystem
 - 2.3.7 Heizsystem
3. Betriebserfahrungen
 - 3.1 Inaktiver Probetrieb
 - 3.1.1 Leistungsdaten der Maschine
 - 3.1.2 Verkrustung der Ausdampfstützen
 - 3.1.3 Veränderungen an der Maschine
 - 3.2 Aktiver Betrieb
 - 3.2.1 Bitumenlagerung
 - 3.2.2 Teerfilter
 - 3.2.3 Abfüllung
 - 3.2.4 Dosisleistung an der Maschine
 - 3.3 Produkt
 - 3.3.1 Bestandteile
 - 3.3.2 Qualität des Produktes
 - 3.3.3 Faßdurchsatz
 - 3.4 Dekontaminationsfaktoren
 - 3.5 Störfälle
 - 3.5.1 Verstopfung im Auslaß
 - 3.5.2 Brand in Abfüllzelle
4. Geplante Veränderungen
5. Schlußbemerkungen

1. Einleitung

Seit 1961 werden die im Kernforschungszentrum Karlsruhe anfallenden radioaktiven Abwässer durch Verdampfung aufbereitet. Die hierbei entstehenden radioaktiven Verdampferkonzentrate wurden bisher durch Vermischen mit Zement in einen festen, endlagerfähigen Zustand überführt. Der Nachteil dieses Verfahrens liegt jedoch in den großen Mengen der dabei entstehenden verfestigten radioaktiven Rückstände und der damit verbundenen hohen Kosten für Material, Fässer, Transport und Lagerung. Die ständig steigenden Mengen an radioaktiven Abwässern im Kernforschungszentrum Karlsruhe führten schon frühzeitig zu dem Beschluß diese Methode durch das wesentlich elegantere und wirtschaftlichere Verfahren der Bituminierung zu ersetzen. Hierbei können bis zu 60 Gew.-% Salz in Bitumen eingebracht werden, sodaß sich in einem 200 l Faß bis zu 160 kg radioaktives Salz unterbringen läßt, im Gegensatz zu den 20 kg Salz pro Faß beim Zementieren.

Die Anlage wurde in den Jahren 1970 und 1971 im Gebäude der Abwasserdekontaminationsanlage erstellt.

2. Beschreibung der Anlage

In einem Extruder werden Bitumen und Verdampferkonzentrat miteinander vermischt. Durch das Beheizen des Extruders wird erreicht, daß während des Verarbeitungsvorganges das im Verdampferkonzentrat noch vorhandene Wasser ausgetrieben wird, sodaß am Ende des Mischvorganges ein wasserfreies Bitumen-Salz-Gemisch vorliegt. Dieses wird in einer abgeschirmten Kabine in Blechtrommeln abgefüllt.

2.1 Anordnung

Der Verfahrensteil der Maschine sowie die Abfüllkabine sind räumlich vom Antriebsteil der Maschine, den Dosierpumpen und den Hilfssystemen sowie dem Bitumenvorrattank getrennt. Dadurch wird erreicht, daß bei Störfällen an der Maschine die anderen Anlagenteile der Maschine nicht beeinträchtigt werden und bei Reparaturen und Wartungsarbeiten am Antriebsteil bzw. den Hilfssystemen keine Strahlenbelastung des Personals durch das noch im Verfahrensteil befindliche Produkt auftritt.

2.2 Fließschema (Abb.1)

Das Bitumen wird einem beheizten Lagertank entnommen und in den Extruder gefördert. Gleichzeitig wird aus einer Vorlage Konzentrat als zweite Komponente der Bitumenmaschine zudosiert. Das im Extruder beim Einrühren des Konzentrates in Bitumen ausgedampfte Wasser wird in Kondensoren niedergeschlagen und das Destillat zur Entfernung mitgerissener Bitumenanteile über ein Teerfilter geleitet. Zur weiteren Reinigung wird es wieder dem Verdampfer zugeführt.

Der zum Beheizen des Bitumenvorratsbehälters, der Bitumenmaschine und anderer Anlagenteile erforderliche Dampf wird dem Betriebsnetz entnommen.

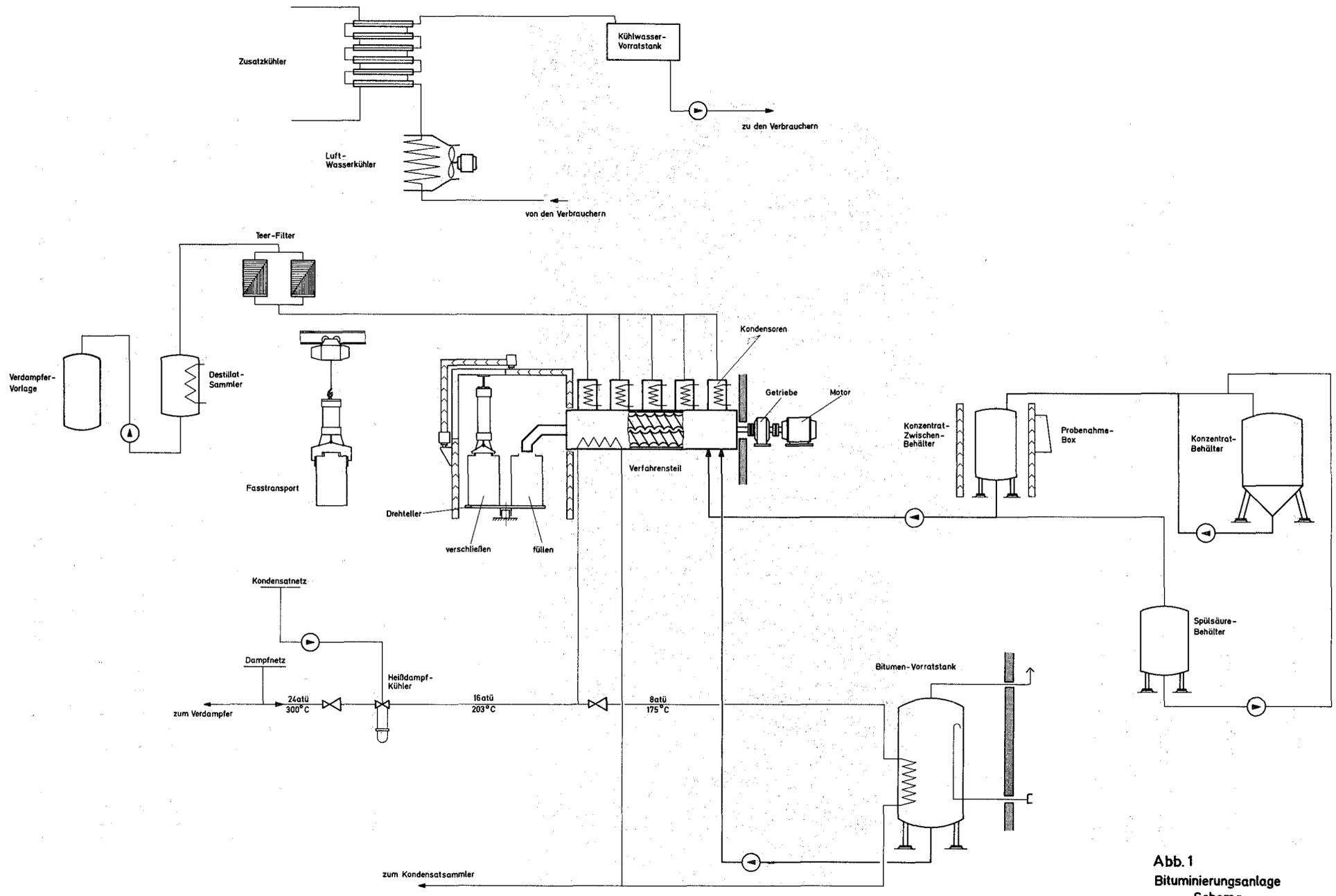


Abb. 1
Bituminierungsanlage
Schema

2.3 Beschreibung der Komponenten

2.3.1 Maschine

Die Bituminierungsmaschine ist ein in der Kunststoffindustrie üblicher Extruder, der für den vorliegenden speziellen Zweck modifiziert wurde. (Abb. 2).

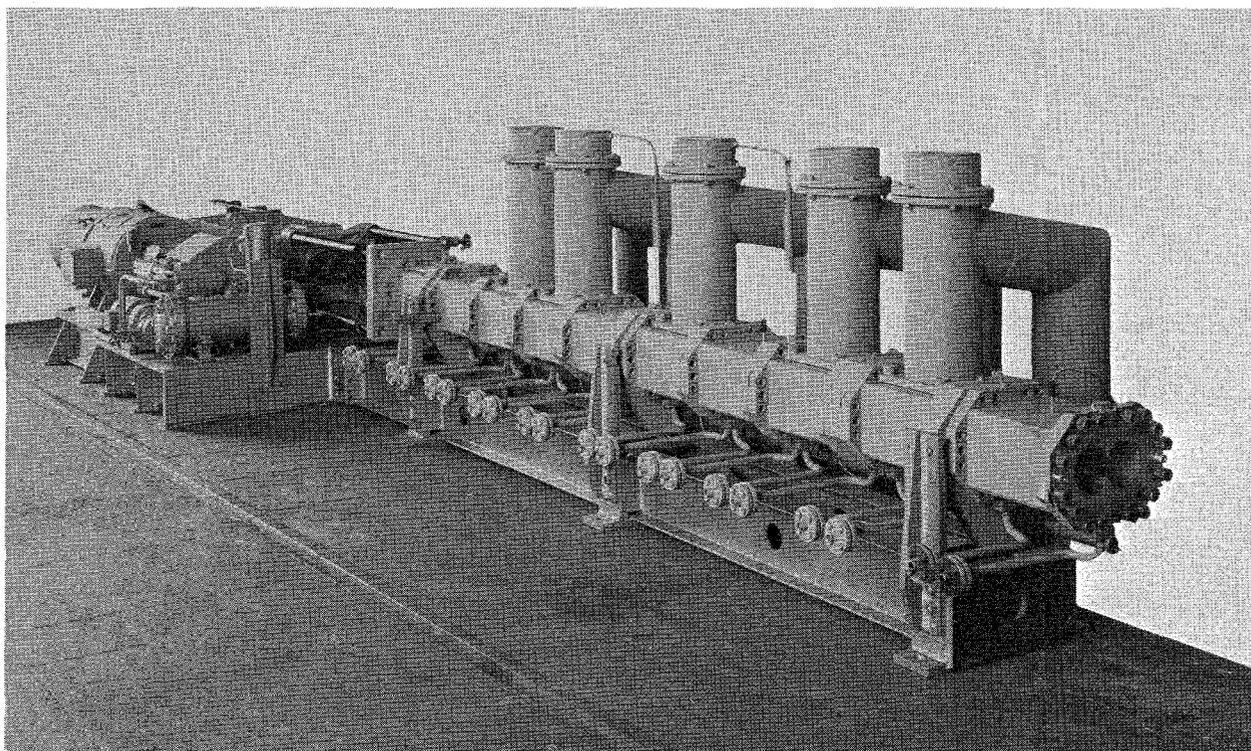


Abb. 2 Gesamtansicht der Maschine (Werksfoto der Fa. Werner und Pfleiderer, Stuttgart)

Der wirksame Teil besteht aus zwei nebeneinanderliegenden Wellen mit aufgezogenen Schneckenbüchsen verschiedener Steigungen und Längen. Die Gewinde der beiden Schnecken, welche Konzentrat mit Bitumen aufnehmen, greifen bei gleicher Drehrichtung ineinander und fördern das Produkt in achsialer Richtung. Eingebaute Knetscheiben sorgen für eine innige Durchmischung der beiden Komponenten. Der Maschinenkörper besteht aus 10 aneinander geflanschten Gehäuseteilen, in denen die Schnecken fliegend gelagert sind, einem Übergangs- und einem Auslaßstück. Das erste Gehäuseteil, in dem nacheinander die Komponenten Bitumen und

Konzentrat aufgegeben werden, ist gekühlt, um eine vorzeitige Ausdampfung von Wasser zu vermeiden. Die restlichen Gehäuseteile sind zu vier unabhängigen Heizzonen zusammengefaßt. Diesen Heizzonen sind fünf Ausdampfstutzen mit eingebautem Kondensator zugeordnet, in denen das abgedampfte Wasser wieder kondensiert wird. Im Oberteil dieser Stutzen befindet sich ein Fenster mit einer blendfreien Beleuchtungseinrichtung, die eine Kontrolle des Verfahrens von außen gestattet.

Zur Beheizung der Maschine wird Dampf verwendet, der durch die Heizkanäle der einzelnen Gehäuseteile geleitet wird.

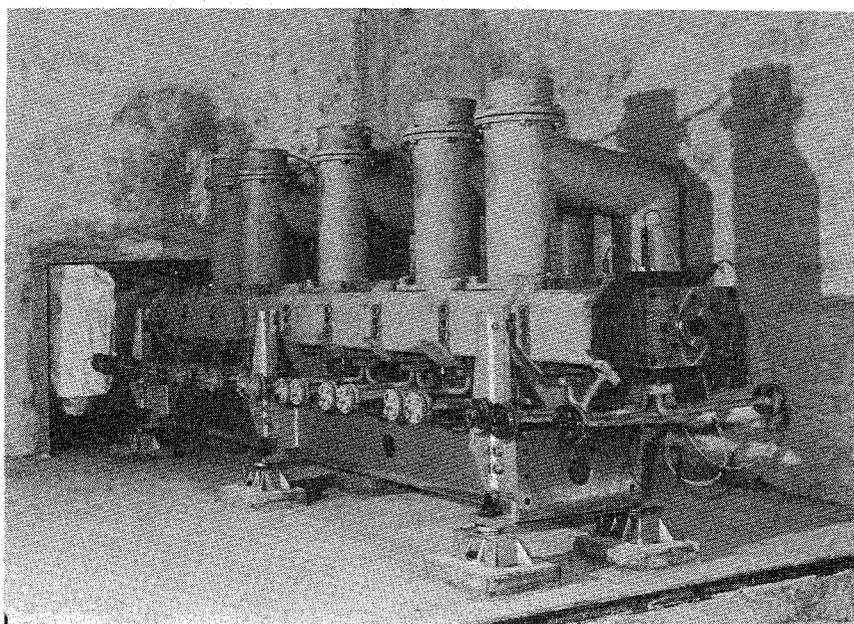


Abb. 3 Verfahrensteil der Maschine
während der Montage

Angetrieben wird die Maschine über ein Reduziergebrübe durch einen thyristorgesteuerten Gleichstrommotor mit einem Regelbereich von 1:10. Die gleichstromseitige Leistungsabgabe beträgt $N = 6 - 60 \text{ KW}$, die maximale Schneckenwellendrehzahl 300 Upm (Abb. 4).

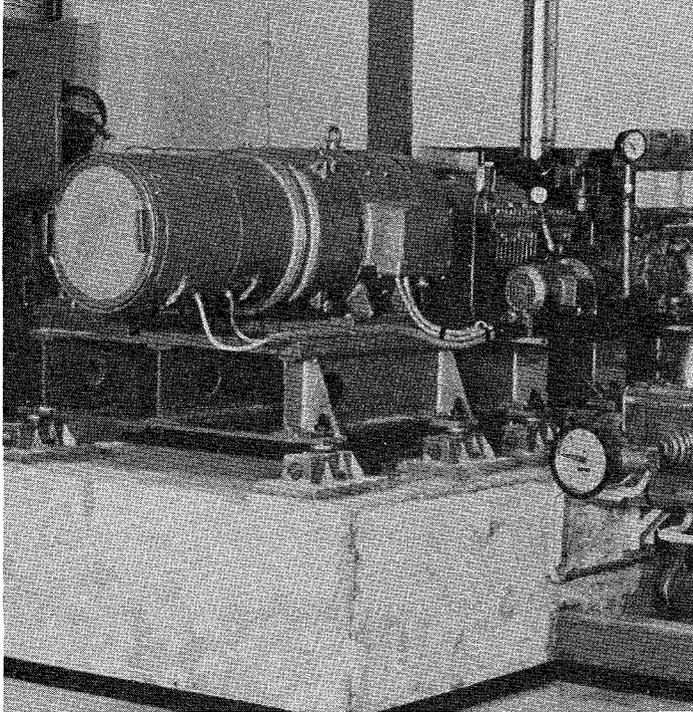


Abb. 4 Antriebsteil der Maschine
während der Montage.

Ein zentraler Bedienungsschrank enthält alle Steuer - und Anzeigegeräte, Lampen für Betriebsanzeigen und Störmeldungen sowie die Bedienungselemente.

2.3.2 Abfüllung und Transport

Das Auslaßmundstück der Maschine ragt in eine Abfüllkabine, die mit Bleiziegeln abgeschirmt ist. Die Wand auf der Bedienungsseite ist 15 cm stark, Seitenwände und Decke 10 cm stark ausgeführt. Ein Bleiglasfenster ermöglicht die Beobachtung der Vorgänge innerhalb der Kabine. Für das Ein- und Ausbringen der Fässer kann ein Teil der Decke und einer Seitenwand (Winkeltür) verfahren werden. Zur Ausstattung der Kabine gehören ein separates Be- und Entlüftungssystem sowie eine Feuerlöschanlage.

In dieser Kabine stehen auf einem Drehteller, der von außen mechanisch angetrieben wird, sechs 175 l-Blechtrommeln, die nacheinander unter das Auslaßstück der Maschine gefahren werden. Damit während eines Faßwechsels die Maschine nicht abgestellt werden muß, wird mittels eines Direktgreifers ein Gefäß unter den Auslaß gehalten und das Produkt aufgefangen. Nach vier bis fünf Faßwechseln ist ein solches Gefäß gefüllt und wird in das nächstfolgende Faß geworfen. Die Gefäße werden über eine Rutsche in die Kabine eingegeben.

Die Fässer können in der Abfüllkabine verschlossen werden. Über eine Rutsche werden Deckel in die Kabine eingegeben, mit einem Greifer auf die Faßöffnung gelegt und mit einer pneumatisch betätigten Vorrichtung verschlossen. Diese Verschließvorrichtung sowie das Bitumenauffanggefäß für den Faßwechsel sind auf Abb. 5 zu sehen.

Gefüllte Fässer werden mittels eines Hebezeuges und eines Faßgreifers aus der Kabine entnommen und je nach Strahlendosis an der Oberfläche in verlorene Betonabschirmungen oder in Rollreifenfässer, die in Stahl-Blei-Abschirmbehältern stehen, eingesetzt. Diese Manipulationen werden hinter einer Bleiwand ausgeführt und können über einen an der Decke angebrachten Spiegel beobachtet werden. (Abb. 6)

Die Fässer werden dann in das Zwischenlager für radioaktive Abfälle gebracht, in dem sie für den Transport zur Endlagerstätte im Salzbergwerk Asse hergerichtet werden.

2.3.3 Bitumensystem

Das Bitumen wird in flüssigem Zustand per Tankwagen angeliefert und mit ca. 180°C in einen stehenden 20 m³-Lagertank eingefüllt, in dem es ständig auf einer Temperatur von ca. 140°C gehalten wird. Über eine isolierte, mit Begleitheizung versehene Leitung wird das Bitumen mittels einer regelbaren Schraubenspindelpumpe der Maschine zudosiert. Ein Ovalradzähler dient zur Kontrolle der Durchflußmenge.

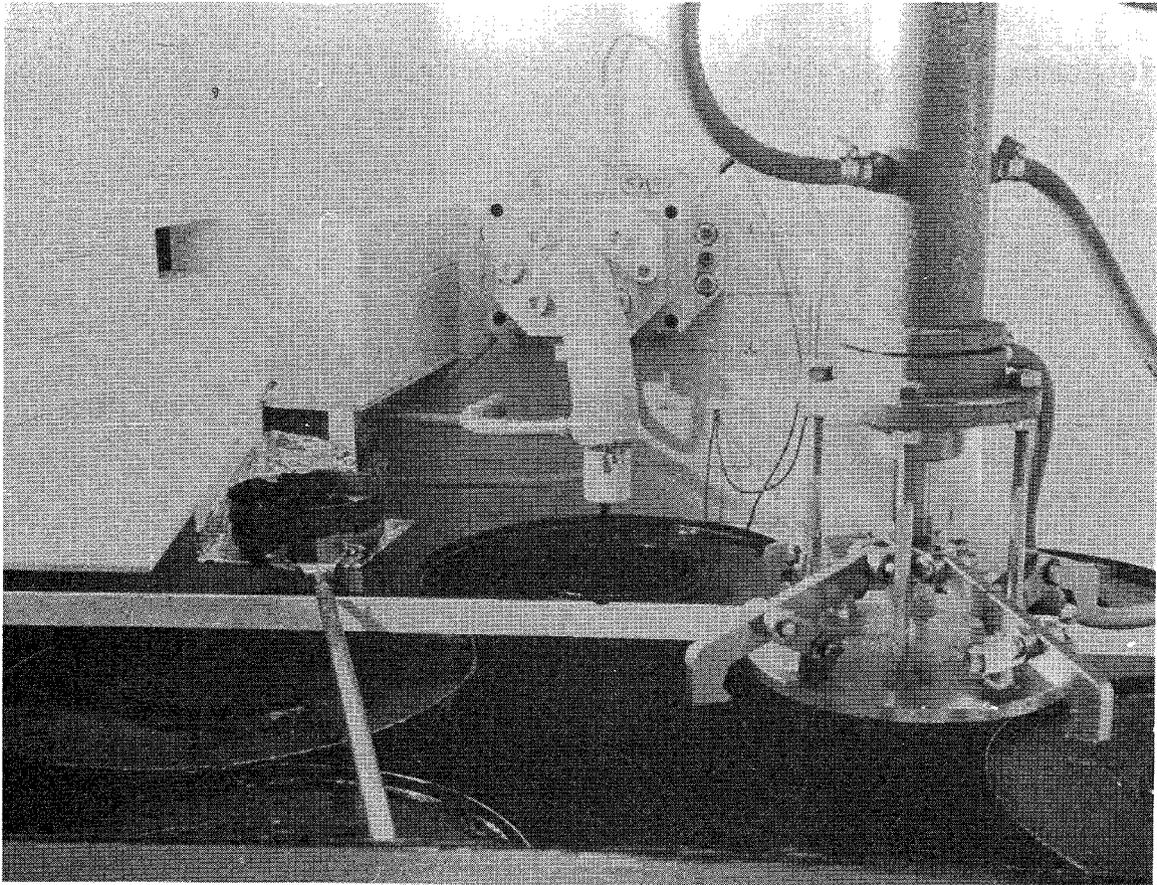


Abb. 5 Blick durch das Strahlenschutzfenster
in die Abfüllkabine

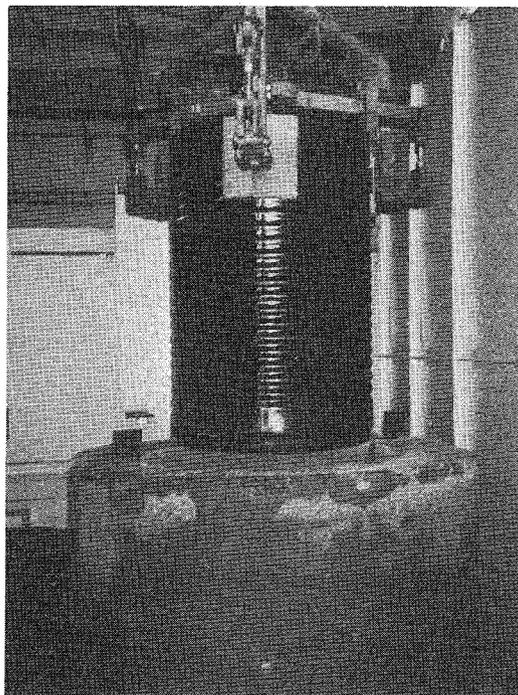


Abb. 6 Einsetzen eines Fasses in eine Betonabschirmung

Die Beheizung von Lagertank, Pumpe, Zähler und Leitung erfolgt durch Dampf.

2.3.4 Konzentratsystem

Aus den Konzentratbehältern der Verdampfungsanlage wird das zu verarbeitende Konzentrat chargenweise in einen 1m^3 - Vorlagebehälter abgefüllt, der mit 10 cm Blei abgeschirmt ist. Der Behälter ist mit einer Füllstandsmeßeinrichtung mit Maximalalarm, einem Turbinenrührwerk und einer Zugabemöglichkeit für Einstellchemikalien ausgestattet. Zu Reinigungszwecken ist der Behälter an das zentrale Spülsäurensystem der Verdampferanlage angeschlossen.

In einer Handschuhbox außerhalb der Abschirmung befindet sich ein Probenahmesystem.

Mittels einer regelbaren Verdrängerpumpe wird das Konzentrat in die Maschine eingespeist. Ein induktives Durchflußmeßgerät zeigt die eingespeiste Menge an.

2.3.5 Destillatsystem

Das aus der Maschine abfließende kondensierte Wasser wird über ein Teerfilter in einen Sammel-tank geleitet, von dem es wegen der noch vorhandenen Aktivität wieder in die Vorlagebehälter der Verdampferanlage gepumpt wird.

Im Teerfilter (Abb. 7) befindet sich ein Auffangraum für feste Bitumentteile und darunter zwischen Sieben ein handelsübliches Ölaufsaugemittel, das die öligen Bestandteile des Destillats zurückhält.

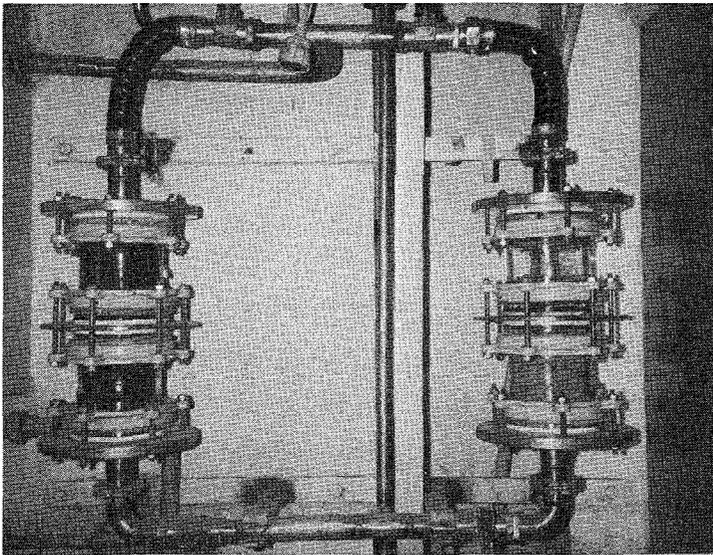


Abb. 7 Teerfilter
(links beladen, rechts unbeladen)

Der Sammelbehälter enthält eine Kühlmöglichkeit und ist außerdem mit einer Schwimmersteuerung für die Pumpe sowie einer Maximalwarnung ausgestattet.

2.3.6 Kühlsystem

Für die Versorgung der Kondensoren, des Einlaufstückes und des Getriebes der Maschine sowie des Destillatsammelbehälters mit Kühlwasser wurde ein geschlossener Kühlwasserkreislauf installiert. Die Rückkühlung erfolgt durch einen Luft-Wasser-Kühler und einen frischwasserversorgten Doppelrohr-Kühler für Spitzenbelastungen im Sommer. Da mit Ausnahme des Getriebe-kühlers bei allen Kühlwasser-Verbrauchern die Möglichkeit besteht, daß infolge Korrosion eine Verbindung zu aktiven Bereichen entstehen kann, wodurch radioaktive Stoffe in das Kühlmedium gelangen können, wurde auf die Verwendung eines Kühlturmes verzichtet.

2.3.7 Heizsystem

Um eine mögliche lokale Überhitzung in irgend einem System der Bituminierungsanlage mit Sicherheit auszuschließen, wurde als Heizmedium Dampf gewählt.

Aus dem zentralen Dampfversorgungsnetz wird überhitzter Dampf entnommen, der nach Kühlung und Sättigung in zwei Stufen reduziert wird.

Die erste Druckstufe mit 16 atü dient zur Beheizung des Maschinenkörpers, die zweite Druckstufe mit 8 atü versorgt das Bitumensystem mit Heißdampf.

Überdruckventile sorgen dafür, daß eine Maximaltemperatur auch bei Ausfall eines Temperaturreglers nicht überschritten werden kann. Dadurch wird erreicht, daß die maximal auftretende Temperatur weit unter dem Flammpunkt des Bitumen liegt.

3. Betriebserfahrungen

3.1 Inaktiver Probetrieb

Der inaktive Probetrieb der Bituminierungsanlage fand in der Zeit von Januar bis März 1972 statt.

3.1.1 Leistungsdaten der Maschine

Die Begrenzung der Maschinenkapazität ist durch die maximale Ausdampfleistung von 140 l/h Wasser gegeben, bezogen auf ein zu verarbeitendes Verdampferkonzentrat mit 20 Gew% Feststoffanteil. Dabei erwies es sich am günstigsten, mit der maximalen Schneckenwellendrehzahl von 300 Upm zu fahren, da hierbei der Produktfilm auf den Schnecken eine Minimalstärke erreicht, die ein leichteres Austreten der entstehenden Wasserdampfblasen aus dem Produkt erlaubt.

Die Auslastung der Maschine lag zwischen 10 und 20% des maximalen Drehmomentes, ein Wert, der auch beim späteren aktiven Betrieb nicht überschritten wurde.

3.1.2 Verkrustung der Ausdampfstutzen

Während des Probetriebes wurde festgestellt, daß sich in den Ausdampfstutzen Verkrustungen in verschiedenen Erscheinungsformen aufbauten. In Richtung des Produktflusses gesehen, hatten sie folgendes Aussehen:

- Stutzen 1 keine Verkrustungen oder Ablagerungen
- Stutzen 2 halbseitige ca 120 mm hohe und bis zu 30 mm starke Ablagerung, die auf der Wandseite des Stutzens aus einer ca 10 mm starken fast reinen Salzsicht, zum Stutzeninneren hin aus Bitumen-Salz-Gemisch bestand (Abb. 8).
- Stutzen 3 allseitige ca 100 mm hohe und ebenfalls ca 30 mm starke Ablagerung mit deutlicher Salzkuste an der Stutzenwand (Abb. 9).
- Stutzen 4 ca 20 mm starke, brückenartige Verkrustung über ca 60% des Stutzenquerschnittes ohne separate Salzablagerung (Abb. 10)
- Stutzen 5 geringe ringförmige Ablagerungen am unteren Rand des Stutzens (Abb. 11)

Um diese Verkrustungen während des aktiven Betriebes ohne Demontage der Ausdampfstutzen beseitigen zu können, wurde ein Reinigungssystem (DBP angem.) entwickelt und in die Stutzen eingebaut (Abb. 12). Mit diesem System, das nach dem Prinzip von Dampfzangen arbeitet, ist es möglich, alle oben geschilderten Verkrustungen völlig zu beseitigen.

3.1.3 Veränderungen an der Maschine

Die Konzentratzugabestelle im Einlaufstück mußte von der Unterseite der Maschine auf die Oberseite verlegt werden, da Bitumen in die Leitung eindrang und einen Propfen bildete, der sich nicht mehr aus dem Rohr schieben ließ und auch durch Kriechwärme nicht soweit erwärmt wurde, daß eine Konzentratzugförderung möglich war.

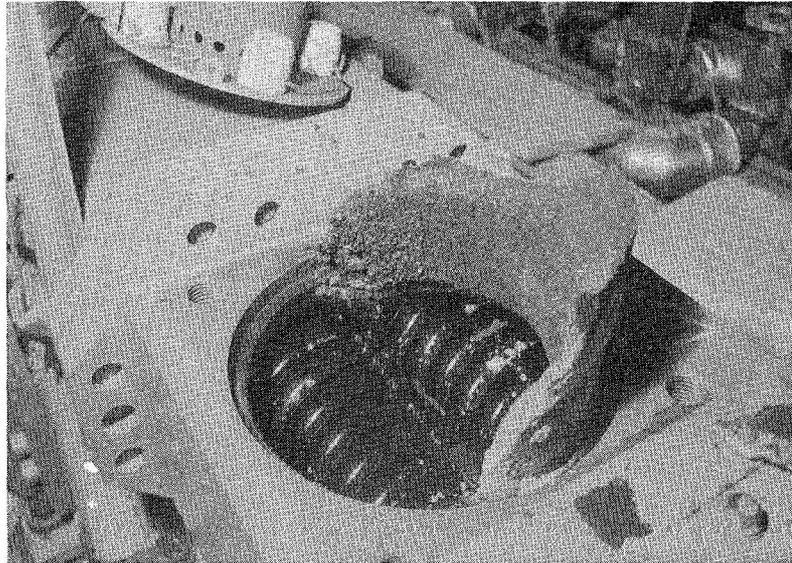


Abb. 8 Stutzen 2

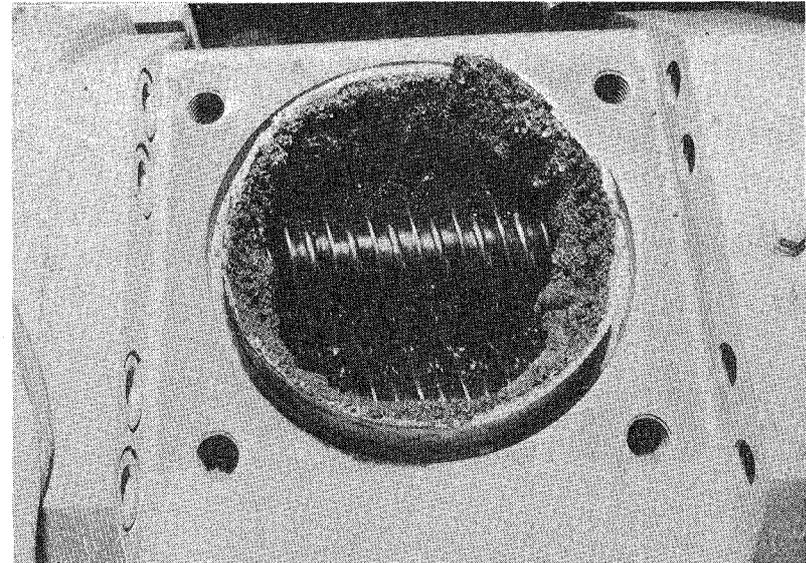


Abb. 9 Stutzen 3

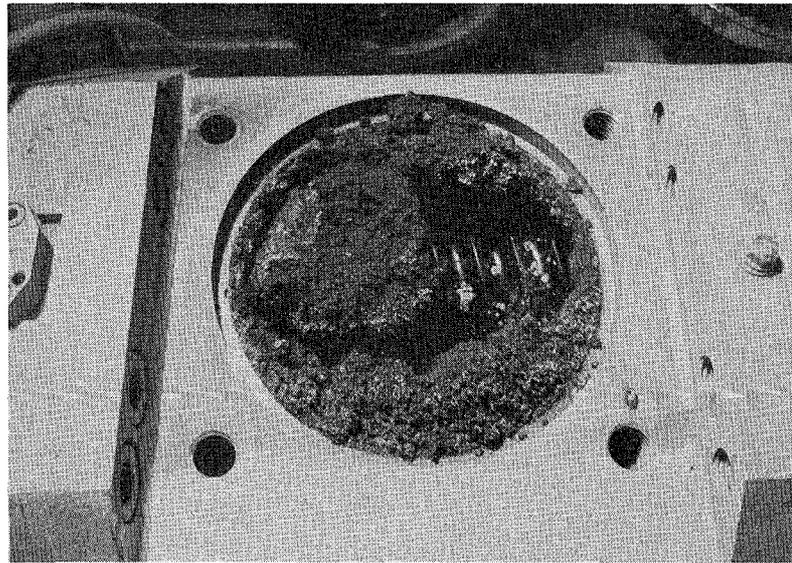


Abb. 10 Stutzen 4

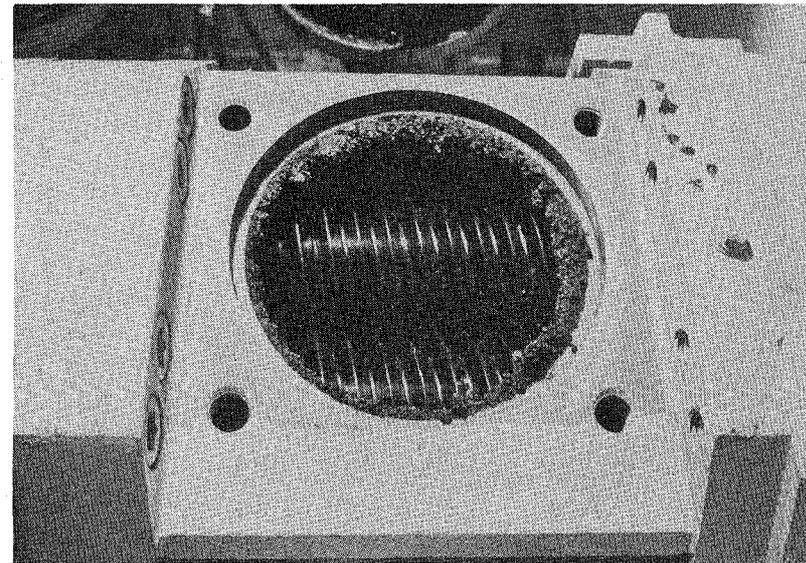


Abb. 11 Stutzen 5

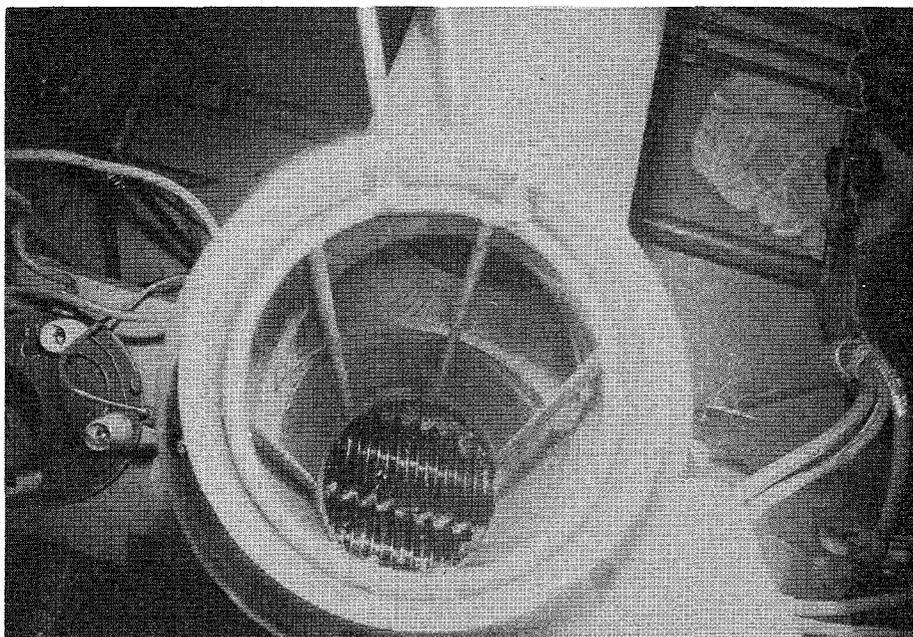


Abb. 12 Blick in einen Ausdampfstutzen
mit eingebautem Reinigungssystem

Ein ähnliches Problem ergab sich an der Zugabestelle für das Bitumen. Das Einlaufstück der Maschine hatte keine Beheizungs- sondern nur eine Kühlmöglichkeit. Die Bitumenleitung kann nur bis an die Eintrittsstelle in die Maschine durch die Begleitheizung erwärmt werden. Dadurch ergab sich innerhalb der Wand des Maschinengehäuses eine Strecke von ca 50 mm, in der das Bitumen bei Stillstandszeiten erhärtete. Beim Aufheizen der Maschine dauerte das Erweichen des Bitumenpfropfens durch Kriechwärme aus der benachbarten Heizzone mehrere Stunden.

Das Anbringen einer zusätzlichen Heizschlange an der Unterseite des Einlaufstückes und die Isolierung dieses Maschinenteils brachte Abhilfe. Die Zusatzheizung wird während des Stillstandes der Maschine eingeschaltet und bei Wiederinbetriebnahme erst dann abgestellt, wenn der Bitumenfluß in der Maschine in Gang gekommen ist.

3.2. Aktiver Betrieb

Die Bituminierungsanlage verarbeitet seit April 1972 die in der Abwasserdekontaminationsanlage des KFZ anfallenden Verdampferkonzentrate. Von diesem Zeitpunkt bis September 1974 war die Maschine ca 5000 Stunden im Einsatz.

3.2.1 Bitumenlagerung

Die Beheizung des Bitumentanks wurde seit dem Beginn des Probetriebes der Anlage im Januar 1972 nicht mehr unterbrochen. Der bei einer Langzeitlagerung von Bitumen bei höheren Temperaturen erwartete Destillationsverlust in Höhe von 1 bis 3% des Volumens konnte bisher nicht beobachtet werden.

Ebenfalls traten bisher keine wesentlichen Verkokungen des Behälters auf, die z.B. bei Raffinerien alle zwei Jahre umfangreiche und aufwendige Reinigungsarbeiten mit Preßluft-hämmern notwendig machen. Die Lagertemperaturen bei den Raffinerien liegen allerdings wesentlich höher ($> 200^{\circ}\text{C}$)

Ca. einen Tag nach jeder Auffüllung des Bitumentanks ist eine Verstopfung des Schmutzfängers vor der Bitumendosierpumpe mit Verkokungsprodukten zu beobachten. Zweimaliges Entleeren des Schmutzfängersiebes im Abstand von wenigen Stunden reicht aus, um die Verschmutzung zu beseitigen. Die Reinigungsdauer beträgt pro Arbeitsgang ca. 30 Minuten. Während dieser Zeit wird bei laufender Maschine lediglich die Einspeisung von Bitumen und Konzentrat unterbrochen.

Die Herkunft dieser Verschmutzung ist noch nicht geklärt. Denkbar sind die folgenden Möglichkeiten.

1. Das Transportieren verschiedener Bitumensorten im gleichen Tankwagen, zwischenzeitliches Abkühlen des Wagens bzw. beim Transport nicht völlig gefüllter Tankwagen können Verkrustungen und Ablagerungen bewirken, die beim Entleeren des Wagens ausgespült werden und sich im Lagertank absetzen, von wo sie dann in die Bitumenleitung geraten.
2. Durch das Absinken des Bitumenspiegels im Lagertank wird im oberen Teil des Tanks eine mit Bitumen benetzte, beheizte Fläche frei, auf der sich Ablagerungen und Verkrustungen bilden können. Beim Einfüllen des neuen Bitumens werden diese Ablagerungen gelöst und sinken im Bitumen nach unten.

3.2.2 Teerfilter

Die Standzeit einer Teerfilterfüllung wird durch Erschöpfung des Adsorbermaterials, Verstopfung des Durchlasses und Ansammlung zu großer Aktivität im Adsorbermaterial begrenzt.

Bei dem z.Zt. verwendeten Teerfilter wird lediglich die Füllung ausgewechselt, während das Gehäuse wiederverwendet werden kann. Die manuelle Tätigkeit des Füllungswechsels ist für das Betriebspersonal mit einer Strahlenbelastung verbunden, so daß bisher in fast allen Fällen die Dosisleistung des Adsorbermaterials das die Standzeit begrenzende Kriterium darstellte. In wenigen Fällen zwang eine Verstopfung zum Wechsel der Füllung. Aus diesem Grunde wurde ein anderes Adsorbermaterial eingesetzt, bei dem bisher keine Verstopfung aufgetreten ist.

3.2.3 Abfüllung

Beim Abkühlen des Bitumenproduktes in den Fässern ist eine Volumenkontraktion um bis zu 30% zu beobachten. Um das Faßvolumen optimal auszunutzen, wurde eine Gruppe von drei Fässern mehrfach (3 bis 4 mal) unter den Auslaß der Maschine gebracht und jedesmal bis zum Rand gefüllt.

Gefüllte Fässer werden frühestens 24 Std. nach Beendigung der letzten Füllung an das Zwischenlager für radioaktive Abfälle abgegeben. Die Temperatur im Zentrum der Fässer ist nach dieser Zeit auf ca. 110°C gesunken. Um diese Zentraltemperatur noch weiter zu senken, wurde der Befüllrhythmus geändert. Es werden jetzt alle sechs auf dem Drehteller befindlichen Fässer nacheinander jeweils ca. 30 min. lang befüllt und dann gewechselt. Auf diese Weise wird ein Faß in 9 bis 10 Schritten gefüllt.

Nach der Befüllung sind die Fässer außen kontaminiert. Die Hauptursache hierfür sind radioaktive Partikel, die sich in den beim Abfüllen auftretenden Dämpfen befinden und über die Fässer hinweg in die Kabinenentlüftung abgesaugt werden. Dabei lagert sich ein Teil dieser Partikel an der durch das Abfüllen erwärmten Teerfarbe der Fässer ab. Nach dem Erkalten der Fässer ist diese Kontamination sehr fest haftend.

Produktspritzer, die sich bei der Verarbeitung exotischer Abfälle nicht immer vermeiden lassen, tragen ebenfalls zur Kontamination der Faßoberfläche bei.

Durch das Einsetzen dieser kontaminierten Fässer in ein zweites Behältnis (Rollreifen -oder Betonfaß) erhält man, wie für die Einlagerung im Salzbergwerk Asse erforderlich, außen kontaminationsfreie Behältnisse, ohne daß die Blechtrommeln aufwendig dekontaminiert werden müssen.

In der geschlossenen Abfüllkabine betrug während des Verarbeitens eines Konzentrates mit ca. 15 Ci/m^3 die Kontamination der Luft das dreifache der MZK für β -Strahler, während keine α -Strahler nachweisbar waren. Bei der Verarbeitung eines Konzentrates mit ca. 90 Ci/m^3 betrug die Kontamination der Luft bei α -Strahlern das 10-fache und bei β -Strahlern das 50-fache der MZK.

Luftstaubmessungen an gefüllten Fässern ergaben, daß bereits kurz nach Beendigung der Abfüllung des Bitumenproduktes in die Blechtrommeln keine Aktivität mehr aus dem Produkt entweicht.

In der letzten Zeit wurde deshalb auf das Verschließen der Blechtrommeln verzichtet, da beim Einsetzen der Trommeln in Rollreifenfässer diese die dichte Einschließung der radioaktiven Abfälle gewährleisten. Beim Einsetzen in eine verlorene Betonabschirmung wird beim Ausgießen mit Beton auch der nach der Auskühlung entstandene Hohlraum im Faß ausgefüllt.

Die Deckelverschleißeinrichtung wurde daher nach dem in Punkt 3.5.2 geschilderten Zwischenfall nicht wieder montiert.

3.2.4 Dosisleistung an der Maschine

Die Dosisleistung an der Oberfläche der Maschine während der Verarbeitung von Konzentrat ist in Abb. 13 für zwei Konzentrate mit verschiedener spezifischer Aktivität dargestellt.

Dabei zeigt sich, daß die Dosisleistung direkt am Körper der Maschine nur einen Bruchteil der Dosisleistung des gefüllten Fasses beträgt. Das ist darauf zurückzuführen, daß im Arbeitsraum der Maschine ca. 5 l Produkt pro Meter vorhanden sind und die dicke Wandung der Maschine eine gute Abschirmung darstellt.

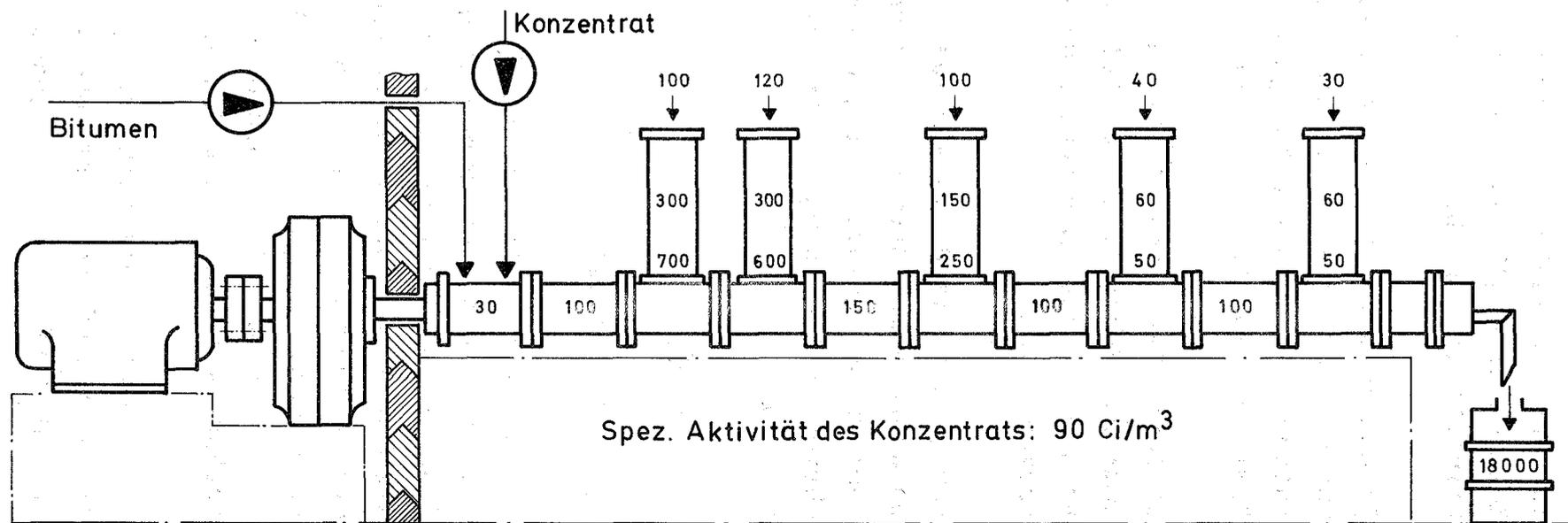
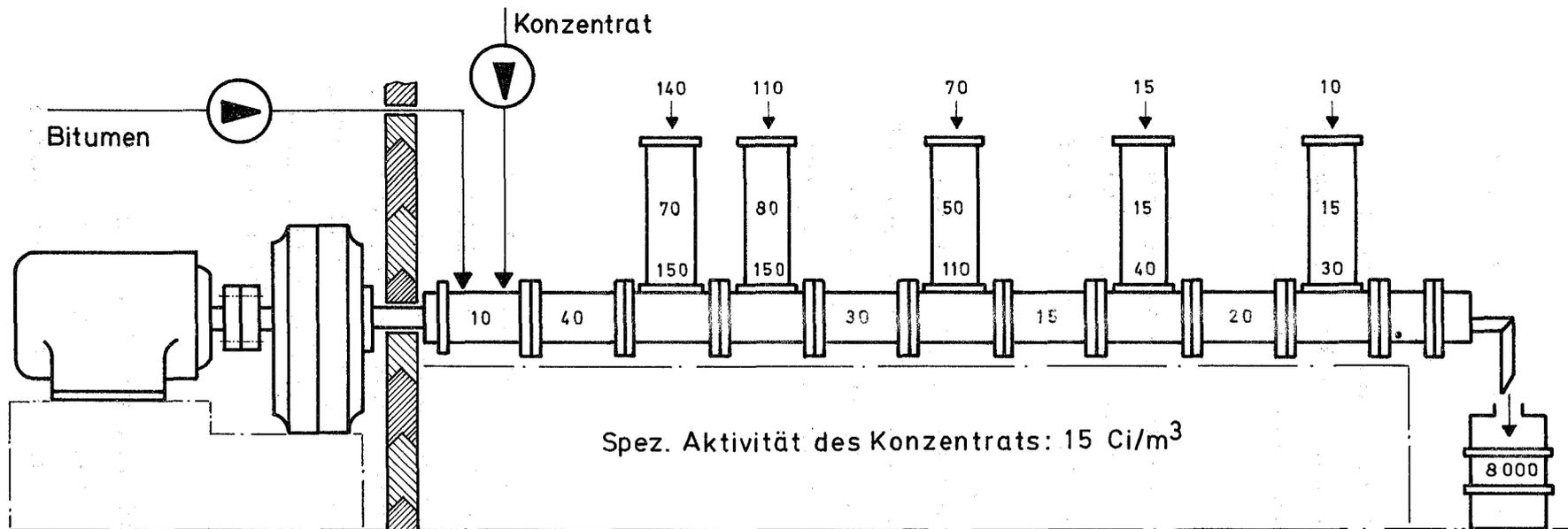


Abb. 13 Dosisleistung an der Oberfläche [mr/h]

Die stark schwankende Dosisleistung an den einzelnen Gehäuseteilen ergibt sich durch die momentane Verteilung der Aktivität im verarbeiteten Produkt.

Die höhere Dosisleistung am unteren Teil der Ausdampf-
stutzen rührt sowohl von der dünnen Wandstärke des Ausdampf-
stutzens als auch von hochgespritzten und über längere Zeit-
räume abgelagerten Salzpartikeln her.

Mit fortschreitender Einbettung der Salze in das Bitumen
nimmt das Verspritzen von Salzpartikeln in der Maschine ab,
was sich in der abnehmenden Dosisleistung an den Ausdampf-
stutzen zeigt.

Dennoch ist die Strahlenbelastung des Personals bei der
Beobachtung des Betriebsablaufes durch die Fenster der Aus-
dampfstutzen relativ hoch, was durch die in Punkt 4 be-
schriebene Ergänzung der Anlage (FS-Kamera) vermieden wer-
den soll.

3.3 Produkt

3.3.1 Bestandteile

Als Matrix für die Einbettung der Verdampferkonzentrate
wird im KFZK Normbitumen B 15 gemäß DIN 1995 verwendet.
Dieses Bitumen mit einer Penetration zwischen 10 und 20 und
einem Erweichungspunkt (Ring und Kugel) zwischen 67 und 72°C
wurde ausgewählt, da es innerhalb der Gruppe der Normbitumen
den höchsten Flammpunkt ($> 290^{\circ}\text{C}$) besitzt. Seine Eigenschaf-
ten kommen sowohl der Sicherheit, als auch der Verformungs-
beständigkeit des Endproduktes zugute.

Das Verdampferkonzentrat hat je nach Lagerzeit von Anfall
bis zur Verarbeitung Temperaturen zwischen 25 und 90°C.
Diese Schwankungen haben jedoch auf den Verarbeitungsprozeß

keinerlei Einfluß gezeigt. Die Eindampfung der radioaktiven Abwässer geschieht aus Korrosionsgründen im alkalischen Bereich bei ca. pH 10. Da auch das Einbetten der Konzentrate in Bitumen im Bereich zwischen pH 8 und pH 10 erfolgt, sind im Vorlagebehälter nur geringfügige Korrekturen des pH-Wertes notwendig. Der Feststoffgehalt des Verdampferkonzentrats beträgt 300 g/l.

3.3.2 Qualität des Produktes

Bei der Herstellung von Produkten verschiedener Zusammensetzung (bis zu 35 Gew.% Bitumen und 65 Gew.% Salz) zeigten sich deutliche Unterschiede an der Oberfläche des Produktes im Faß. Im Inneren dieser Produkte ist ein Unterschied jedoch nicht mehr erkennbar. Die Verteilung der Salze im Bitumen war immer homogen. Die Restfeuchte der Produkte lag mit 0,3 bis 0,5% deutlich unter dem garantierten Wert von 2%.

Abb. 14 und 16 zeigen Oberfläche und Bruchfläche eines Produktes mit 58 Gew.% Bitumen und 42 Gew.% Salz (Produkt A) und Abb. 15 und 17 zum Vergleich Oberfläche und Bruchfläche eines Produktes mit 35 Gew.% Bitumen und 65 Gew.% Salz (Produkt B).

Im aktiven Betrieb wird meist ein Produkt mit je 50 Gew.% Bitumen und Salz hergestellt.

3.3.3 Faßdurchsatz

In der Zeit von April 1972 bis September 1974 wurden in der Anlage insgesamt 1210 Fässer mit fixiertem Verdampferkonzentrat abgefüllt. Die Dosisleistung an der Oberfläche der Fässer lag dabei im Bereich zwischen 0,01 und 200 R/h. Abb. 18 zeigt die Verteilung der angefallenen Fässer auf die verschiedenen Dosisleistungskategorien.



Abb. 14 Oberfläche Produkt A



Abb. 15 Oberfläche Produkt B

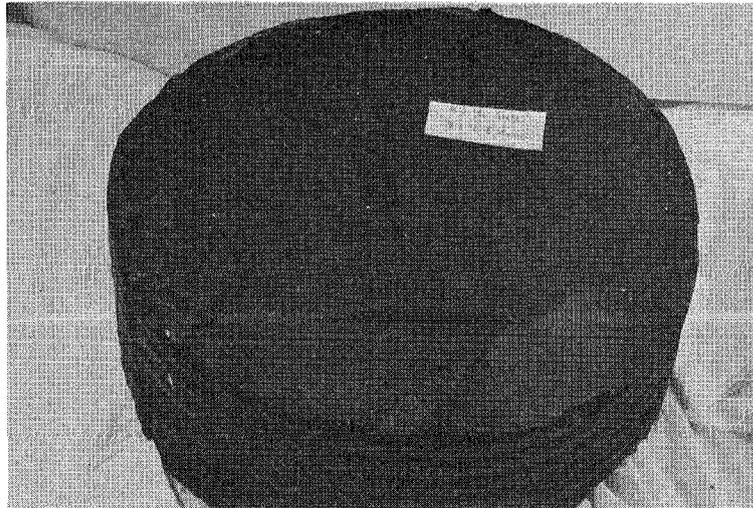


Abb. 16 Bruchfläche Produkt A

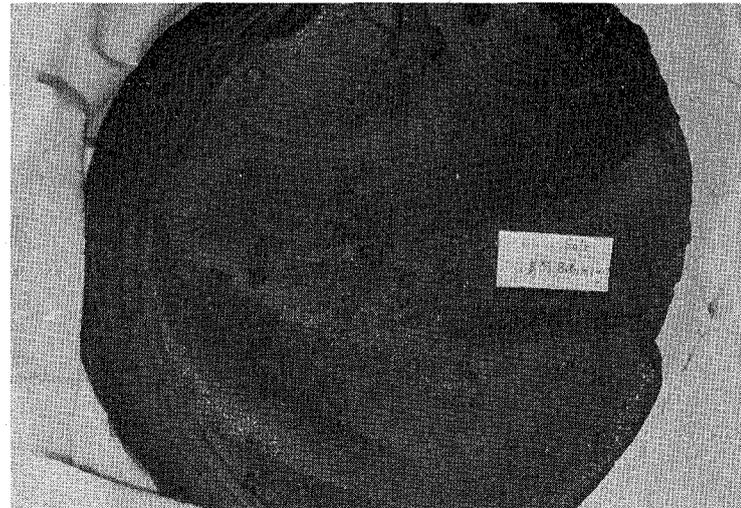


Abb. 17 Bruchfläche Produkt B

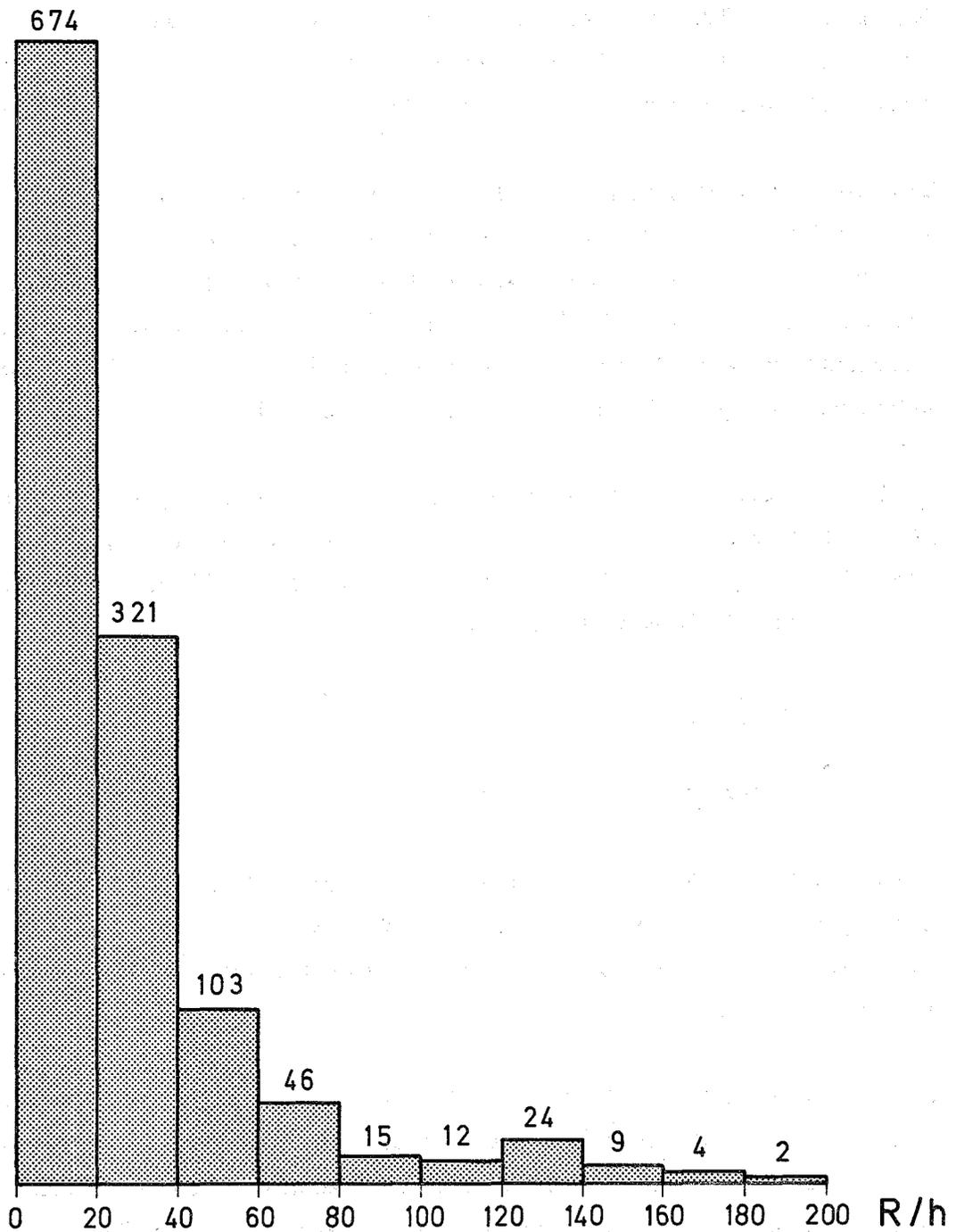


Abb.18

Verteilung der bis Sept.1974 angefallenen Fässer mit bituminiertem Abfall auf verschiedene Dosisleistungskategorien

3.4 Dekontaminationsfaktoren

Das beim Einbetten der Salze in Bitumen abgedampfte Wasser ist nicht frei von Aktivität und wird deshalb als schwach-radioaktiver Strom in die Verdampferanlage zurückgegeben.

Bei der Verarbeitung eines Konzentrates mit ca 90 Ci/m^3 Gesamtaktivität wurden im Destillat noch ca $1,5 \times 10^{-2} \text{ Ci/m}^3$ Restaktivität gefunden. Das entspricht einem Dekontaminationsfaktor von ca. 6×10^3 . Dieser Faktor zeigt sich auch bei der Bestimmung des DF für die einzelnen hauptsächlich gefundenen Nuklide Cs-137, Ru-106, Ce-134 und Sb-125.

Im Teerfilter findet keine weitere meßbare Dekontamination des Destillats statt. Im Laufe der Bearbeitungsperiode steigt jedoch die Aktivitätsmenge in der Füllung des Teerfilters durch Kummulation an.

3.5 Störfälle

3.5.1 Verstopfung im Auslaß

Einige wenige Male traten während des inzwischen über zweijährigen Betriebes der Maschine Ablagerungen im Auslaß der Maschine auf, die zur völligen Blockade des Produktstromes führten. (Abb. 19)

Durch Rückstau kommt es zum Aufsteigen des Produktes im letzten Ausdampfstutzen, wenn die Blockade nicht rechtzeitig bemerkt wird. Durch den weiterhin entstehenden Wasserdampf wird das Produkt schaumartig im Ausdampfstutzen hochgetrieben und gelangt auch in den Kondensor. Abb. 20 zeigt einen Blick in einen solcherart verstopften Stutzen.

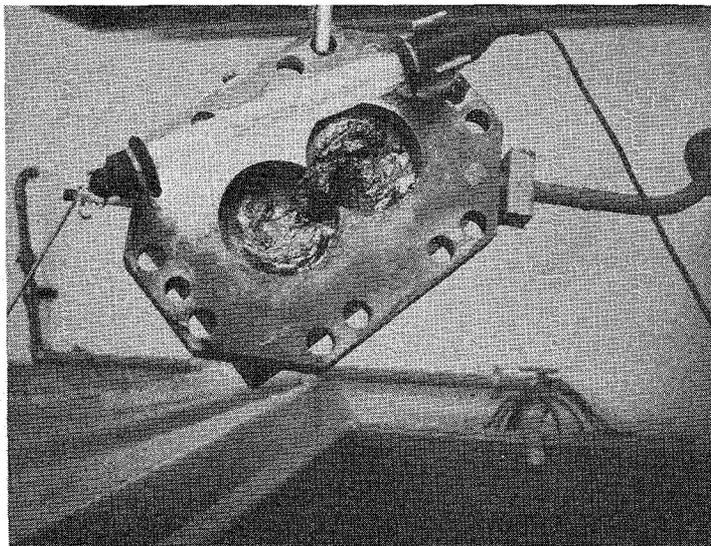


Abb. 19 Ablagerungen im demontierten Auslaßstück der Maschine

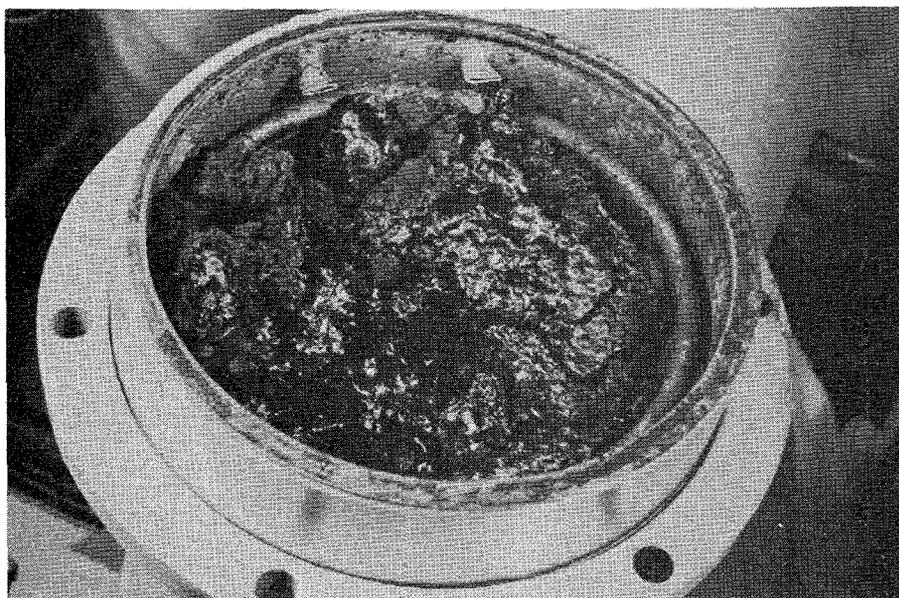


Abb. 20 Blick in einen geöffneten Ausdampf-
stutzen nach einem Rückstau

Zur Reinigung der Maschine muß in einem solchen Fall sowohl das Austragsmundstück als auch der Ausdampfstutzen demontiert werden, was je nach der spezifischen Aktivität des gerade verarbeiteten Konzentrates zu Strahlenbelastungen des Reparaturpersonals führt, da bei einem solchen Störfall keinerlei Reinigungsmöglichkeit für die Maschine mehr gegeben ist.

Die Ursache dieser Ablagerungen konnte bisher nicht restlos ermittelt werden.

3.5.2 Brand in der Abfüllzelle

Am 30.4.74 ereignete sich in der Abfüllzelle der Bitumenanlage eine Verpuffung mit einem anschließenden Brand.

Beim Abfüllen wurde bereits in der Nacht ein starkes Gasen des Bitumenendproduktes festgestellt. Da dieses jedoch häufiger vorkommt und in der Regel auf Wasserdampfeinschlüsse im Bitumen zurückzuführen ist, wurde lediglich die Einspeisung des Konzentrates reduziert.

Am frühen Morgen wurde ein bräunlich-gelber Rauch in der Abfüllzelle festgestellt und daraufhin die Konzentrateinspeisung gestoppt. Kurz darauf kam es zu einer Verpuffung in der Zelle, als deren Folge die beiden zuletzt befüllten Fässer zu brennen begannen.

Die brennenden Fässer wurden von der Feuerwehr mittels CO₂ gelöscht. In Abständen flackerte das Feuer wieder auf und wurde durch mehrmaliges Fluten der Abfüllkabine mit Leichtschaum endgültig gelöscht.

Durch die Verpuffung wurden die Abfüllzelle und der Abluftkanal beschädigt. Es entstand weder Personenschaden, noch traten erhöhte Strahlenbelastungen beim Betriebspersonal auf. Die Kontamination der näheren Umgebung der Abfüllzelle war gering; es gelangte keine Aktivität ins Freie.

Als wahrscheinliche Ursache dieses Störfalles ist der unbemerkte Ausfall des Rührwerkes im Konzentratvorlagebehälter mit den daraus entstandenen Folgen anzusehen.

So wurde wegen der fehlenden Durchmischung eine nicht repräsentative Probe gezogen, die normale Werte ergab, worauf die Maschine in der üblichen Weise betrieben wurde. Eine nach dem Zwischenfall gezogene repräsentative Probe ergab jedoch eine stark überhöhte Alkalität ($\text{pH} = 13.8$), die in Verbindung mit einer nicht ausschließbaren Anreicherung chemisch und thermisch instabiler organischer Substanzen im Verdampferkonzentrat für den Störfall verantwortlich sein dürfte.

4. Geplante Veränderungen

Die direkte visuelle Beobachtung des Mischvorganges in der Maschine durch die Scheiben in den Ausdampfstutzen ist besonders bei der Verarbeitung höher aktiver Konzentrate unbefriedigend, da das Bedienungspersonal dabei jedesmal einer erhöhten Strahlenbelastung ausgesetzt wird.

Es ist daher geplant, an einer über den Ausdampfstutzen verlaufenden Schiene eine fahrbare Fernsehkamera anzubringen, die eine Beobachtung aus dem Bedienungsraum ermöglicht. Da das an der Maschine vorhandene Beleuchtungssystem für den Einsatz einer FS-Kamera nicht ausreicht, soll ein separates Beleuchtungssystem installiert werden, das mit der Kamera verfahren werden kann. Hierbei sollen Lichtleiter verwendet werden, durch deren Einsatz es möglich ist, ein helles, kaltes Licht gezielt einzusetzen.

Mit dem vorhandenen Reinigungssystem ist es möglich, Beschläge an den Scheiben in den Ausdampfstutzen zu beseitigen. Durch Veränderungen am oberen Teil der Stutzen soll erreicht werden, daß die Scheiben beschlagfrei gehalten werden können.

Durch Umrüstung des Teerfilters auf Wegwerf-Patronen an Stelle der jetzt verwendeten wiederverwendbaren Filtergehäuse kann die Ausnutzungszeit pro Filterfüllung erhöht werden, da die Arbeitszeit pro Filterwechsel stark reduziert und dadurch eine höhere spezifische Aktivität der Adsorbersubstanz zugelassen werden kann. Es ist durch eine Wirtschaftlichkeitsbetrachtung zu überprüfen, ob die Ausnutzungszeit der Patronen durch Anbringung einer Abschirmung noch gesteigert werden soll.

Eine Änderung des Auslaßstückes der Maschine soll die verschiedentlich aufgetretenen Verstopfungen im Auslaß vermeiden. Durch Anbringen der Auslaßöffnung an der Unterseite der Maschine noch im Bereich der Schnecken wird das Produkt von den Schneckenwellen abgeschält und fällt direkt in die Fässer.

5. Schlußbemerkungen

In der beschriebenen Anlage wurden bisher nur Verdampferkonzentrate in Bitumen eingebettet. Das Verarbeiten von Schlämmen und Ionentauscherharzen ist möglich, erfordert jedoch zusätzliche Einspeisesysteme für diese Stoffe. Auf den Einbau dieser zusätzlichen Einrichtungen wurde bisher verzichtet, da die für den Umbau notwendige Zeit wegen der vorhandenen hohen Auslastung der Anlage nicht erübrigt werden kann.

Beim Neubau einer Bituminierungsanlage kann die Abfüllstation der Anlage so gestaltet werden, daß eine Kontamination der Faßoberfläche weitgehend ausgeschlossen wird. Dadurch wird der weitere Umgang mit den gefüllten Fässern erleichtert.

Beim Einsatz einer Bituminierungsanlage in einem Kernkraftwerk findet der Betreiber günstigere Betriebsbedingungen vor, als sie in einem Forschungszentrum gegeben sind.

Wegen der begrenzten Anzahl und der durchschnittlich gleichbleibenden Menge und Beschaffenheit der zu verarbeitenden Abwässer in einem Kernkraftwerk ist es leicht möglich, optimale Betriebsbedingungen herzustellen. Die ständig wechselnde und weitgehend unbekannte Zusammensetzung der in den Abwässern eines Forschungszentrums enthaltenen z.T. exotischen Chemikalien kann dagegen leichter zu Störungen Anlaß geben.

Für die Durchführung der radiochemischen Untersuchungen sind wir Herrn Dr. Wertebach zu Dank verpflichtet.