

12

EUROPÄISCHE PATENTANMELDUNG

21 Anmeldenummer: 89114316.6

51 Int. Cl. 4: G21F 9/08

22 Anmeldetag: 03.08.89

30 Priorität: 17.08.88 DE 3827897

43 Veröffentlichungstag der Anmeldung:
28.02.90 Patentblatt 90/09

84 Benannte Vertragsstaaten:
AT BE CH DE ES FR GB GR IT LI LU NL SE

71 Anmelder: Nukem GmbH
Rodenbacher Chaussee 6 Postfach 11 00 80
D-6450 Hanau 11(DE)

72 Erfinder: Feyerbacher, Dieter, Dipl.-Ing.
Amselweg 4a
D-6368 Bad Vilbel(DE)
Erfinder: Rosenberger, Stefan, Dipl.-Ing.
Pfarrgraben 9
D-8752 Mömbris(DE)

54 Verfahren zum Konditionieren von radioaktiven Verdampferlaugen aus kerntechnischen Anlagen.

57 Radioaktive Verdampferlaugen aus kerntechnischen Anlagen werden zur Endlagerung in beheizbaren Endlagerbehältern konditioniert. Dazu wird zuerst in einem Verdampfer auf 60 bis 85 Gew. % Trockensubstanzgehalt aufkonzentriert und dann im Endlagergefäß bei einer Temperatur, die mindestens der maximal im Endlager auftretenden Temperatur entspricht, solange Wasserdampf abgesaugt, bis ein fester Bodenkörper mit glatter Oberfläche entsteht.

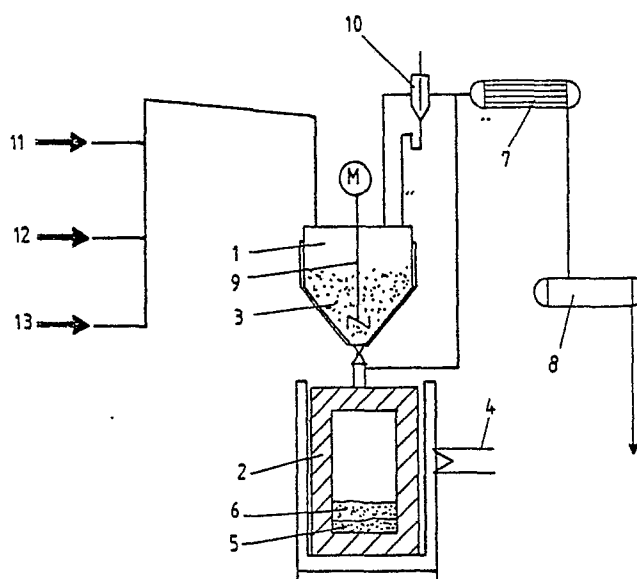


Fig.

EP 0 355 514 A2

Verfahren zum Konditionieren von radioaktiven Verdampferlaugen aus Kernkraftwerken

Gegenstand der vorliegenden Erfindung ist ein Verfahren zum Konditionieren von radioaktiven Verdampferlaugen, gegebenenfalls zusammen mit Kugelharzen, Kieselgur und Filterhilfsmitteln aus kerntechnischen Anlagen zum Zweck der endlagerfähigen Einschließung durch Eindampfen in einem beheizbaren Endlagergebinde.

Radioaktive Verdampferlaugen bzw. Gemische aus Verdampferlaugen mit Kugelharzen, Kieselgur und Filterhilfsmitteln werden üblicherweise bereits in den kerntechnischen Anlagen, z.B. in Kernkraftwerken, auf einen Trockensubstanzgehalt von ca. 20-25 Gew. % eingeeengt. Sie müssen durch Eindampfen weiter konzentriert werden, um sie endlagerfähig in entsprechenden Gebinden aufzubereiten.

Bis auf 10-40 Gew. % Restwasser eingedampfte Konzentrate weisen bei Raumtemperatur eine monolithische Struktur auf, bei der das Restwasser im wesentlichen als Kristallwasser in der Masse gebunden ist. Bei höheren Temperaturen, z.B. bei einer Endlagertemperatur bis etwa 70° C (Nachbetriebsphase in der Endlagerstätte) werden die festen Salzblöcke jedoch durch das freiwerdende Kristallwasser wieder zähflüssig. Die Endlagerung solcher flüssigwerdenden Salzblöcke ist jedoch nicht zulässig.

Zur weiteren Einengung von in Kernkraftwerken aus Sumpf-, Wasch-, Deko- und Laborabwässern anfallenden Verdampferkonzentraten sind mehrere einstufige Verfahren bekannt. So gibt es beispielsweise Verfahren, bei denen die Konzentrate in einem geeigneten Verdampfer zur Trockne eingedampft werden. Verwendet werden dazu beispielsweise Rührkesselverdampfer, Sprühtrockner, Walzentrockner und Dünnschichtverdampfer. Das dabei entstehende Produkt mit minimalen Kristallwasserwerten fällt weitgehend pulverförmig an. Das hat zum einen den Nachteil, daß der Umgang mit derartig staubenden Pulvern besondere Schutzmaßnahmen erforderlich machen, um Inkorporationen zu vermeiden; zum anderen folgt aus den niedrigen Schüttdichten von Pulvern, daß das Endlagergebindevolumen nur schlecht ausgenutzt wird. Das Vermischen dieser Pulver mit Zuschlagstoffen (z.B. Bitumen), um sie zu verfestigen, bedeutet ebenso eine schlechte Gebindeausnutzung.

In der DE-PS 32 00 331 wird ein Verfahren beschrieben, nach dem in einem beheizten Endlagergefäß Verdampferkonzentrate getrocknet werden. Nachteilig bei diesem Verfahren sind jedoch die relativ niedrige Ausdampfleistung sowie die Bildung von Lunkern zum Teil erheblicher Größe, die in dem verfestigten Produkt zudem unregelmäßig verteilt sind. Daraus resultieren eine schlechte Aus-

nutzung des Gebindevolumens und eine ungünstige Wirtschaftlichkeit.

In der DE-OS 3544270 wird ein Trocknungsverfahren beschrieben, bei dem zur Trocknung Mikrowellenenergie verwendet wird, wobei Flüssigkeiten und Lösungen in das Gebinde eingesprüht und in einem Schritt verfestigt werden. Dieses Verfahren ist sehr aufwendig und besitzt dadurch wirtschaftliche Nachteile.

Es war daher Aufgabe der vorliegenden Erfindung, ein Verfahren zum Konditionieren von radioaktiven Verdampferlaugen, gegebenenfalls zusammen mit Kugelharzen, Kieselgur und Filterhilfsmitteln aus kerntechnischen Anlagen zum Zweck der endlagerfähigen Einschließung durch Eindampfen in beheizbaren Endlagergebinden zu schaffen, das eine hohe Raumausnutzung im Endlagergebinde, eine hohe Ausdampfleistung, und damit eine hohe Wirtschaftlichkeit gewährleistet.

Diese Aufgabe wird erfindungsgemäß dadurch gelöst, daß zunächst in einem Verdampfer die Lauge bzw. das Gemisch bis auf 60 bis etwa 85 Gew. % Trockensubstanzgehalt aufkonzentriert wird, dann das noch fließfähige Konzentrat in das beheizbare Endlagergebinde eingefüllt wird, und abschließend das Konzentrat im Endlagergebinde auf mindestens die im Endlager maximal auftretende Temperatur erhitzt und der dabei entstehende Dampf solange unter Unterdruck abgesaugt wird, bis sich ein fester Bodenkörper mit glatter Oberfläche ausgebildet hat.

Vorzugsweise wird das Konzentrat auf die im Endlager maximal auftretende Temperatur erhitzt.

Weiterhin ist es vorteilhaft, das Konzentrat portionsweise in das Endlagergebinde einzufüllen und zu verfestigen. Dabei muß jede Teilportion erst verfestigt sein, bevor die nächste Teilportion eingefüllt wird.

Anhand der schematischen Abbildung soll das erfindungsgemäße Verfahren beispielhaft näher erläutert werden: Radioaktive Verdampferlauge (11), Kugelharze (12) und Filterhilfsmittel (13) aus Kernkraftwerken oder anderen kerntechnischen Anlagen werden in einen Verdampfer (1) gefördert, der mit einem Rührer (9), einem Tropfenabscheider (10), einem Kondensator (7) und einem Destillatsammelbehälter (8) versehen ist, von dem aus das Destillat kontrolliert entnommen werden kann. Im Verdampfer (1) wird das Gemisch (3) unter Rühren erhitzt und aufkonzentriert, bis das Konzentrat 60 bis etwa 85 Gew. % Trockensubstanz enthält. Das im bei der Verdampfertemperatur zähflüssigen und bei Raumtemperatur festen Konzentrat noch enthaltene Restwasser besteht im wesentlichen aus Kristallwasser des Salzanteils.

Anschließend wird das zähflüssige Konzentrat portionsweise in ein mit Heizung (4) versehenes Endlagergebäude (2) abgelassen. Die erste Teilportion (5) wird durch Wärmezufuhr solange und so hoch erhitzt, daß der Kristallwassergehalt aus dem Konzentrat soweit ausgetrieben wird, daß sich im Endlagergebäude (2) ein fester monolithischer Bodenkörper mit glatter Oberfläche und ohne pulverförmige Anteile bildet. Dieser Bodenkörper muß auch bei der maximal im Endlager auftretenden Temperatur noch fest bleiben, sodaß die Eindampftemperatur im Endlagergebäude (2) mindestens so hoch sein muß wie die im Endlager maximal zu erwartende Temperatur. Man verwendet beispielsweise Eindampftemperaturen von etwa 70° C und saugt den entstehenden Dampf unter Unterdruck ab, wobei man bei diesem Eindampfprozess im Endlagergebäude (2) den Kondensator (7) und den Destillatsammelbehälter (8) des Verdampfers (1) mitbenutzen kann. Diese Mitbenutzung ist vor allem bei mobilen Anlagen von erheblichem wirtschaftlichen Vorteil. Nach der Verfestigung der ersten Teilportion (5) können weitere Teilportionen (6) des Konzentrats aus dem Verdampfer (1) in das Endlagergebäude (2) abgelassen und entsprechend verfestigt werden. Man erhält auf diese Weise ein Verfestigungsprodukt, das eine optimale Packungsdichte und Homogenität besitzt ohne das Zusatzstoffe erforderlich sind, die das Nutzvolumen des Endlagergebäudes verringern würden. Das Verfestigungsprodukt weist nur noch einen Kristallwassergehalt von höchstens 10 Gew. % auf. Es werden hohe Packungsdichten erreicht, die je nach den zu verfestigenden Stoffen zwischen 1,2 und 1,6 kg/dm³ liegen können.

Es ist auch möglich, die Verfestigung im Endlagergebäude nicht portionsweise, sondern auf einmal vorzunehmen, ohne daß die Qualität des verfestigten Endproduktes wesentlich schlechter ist. Auch läßt sich dieses zweistufige Konditionierungsverfahren automatisieren.

Folgendes Beispiel soll das erfindungsgemäße Verfahren näher erläutern:

Ein Siedewasserreaktor-Simulatgemisch aus Verdampferlaugen, Ionenaustauscher-Kugelharzen und Filterhilfsmitteln wurde in einem Verdampfer zunächst aufkonzentriert. Das resultierende Konzentrat hatte die Zusammensetzung:

Na₂SO₄ 50 Gew. %

Kugelharze 15 Gew. %

Na₃PO₄ 5 Gew. %

Ca₃ (PO₄)₂ 1,5 Gew. %

Fe₂O₃ 1,5 Gew. %

Sonstiges 2,0 Gew. %

Restwasser 25 Gew. %

Dieses Konzentrat wurde portionsweise in ein beheiztes Endlagergebäude abgelassen und bei 80° C bei 300 HPa verfestigt. Das Endprodukt wies

einen Restwassergehalt von etwa 8 % auf und besaß ein mikroporöses Gefüge ohne Lunker und Inhomogenitäten. Die Endproduktoberfläche war glatt, die Abrieb- und Druckfestigkeit gut. Bei Beschleunigungstests änderte sich die geometrische Form nicht. Beheizungstests bei 70° C, die Endlagerungsbedingungen entsprechen, ergaben, daß das Verfestigungsprodukt seine Konsistenz nicht änderte.

Ansprüche

1. Verfahren zum Konditionieren von radioaktiven Verdampferlaugen, gegebenenfalls zusammen mit Kugelharzen, Kieselgur und Filterhilfsmitteln aus kerntechnischen Anlagen zum Zweck der endlagerfähigen Einschließung durch Eindampfen in beheizbaren Endlagergebäuden,

dadurch gekennzeichnet,

daß zunächst in einem Verdampfer die Lauge, bzw. das Gemisch bis auf 60 bis etwa 85 Gew. % Trockensubstanzgehalt aufkonzentriert wird, dann das noch fließfähige Konzentrat in das beheizbare Endlagergebäude eingefüllt wird, und abschließend das Konzentrat im Endlagergebäude auf mindestens die im Endlager maximal auftretende Temperatur erhitzt, und der dabei entstehende Dampf solange unter Unterdruck abgesaugt wird, bis sich ein fester Bodenkörper mit glatter Oberfläche ausgebildet hat.

2. Verfahren nach Anspruch 1,

dadurch gekennzeichnet,

daß das Konzentrat im Endlagergebäude auf die maximal im Endlager auftretende Temperatur erhitzt wird.

3. Verfahren nach Anspruch 1 und 2,

dadurch gekennzeichnet,

daß das Konzentrat portionsweise in das Endlagergebäude eingefüllt und verfestigt wird.

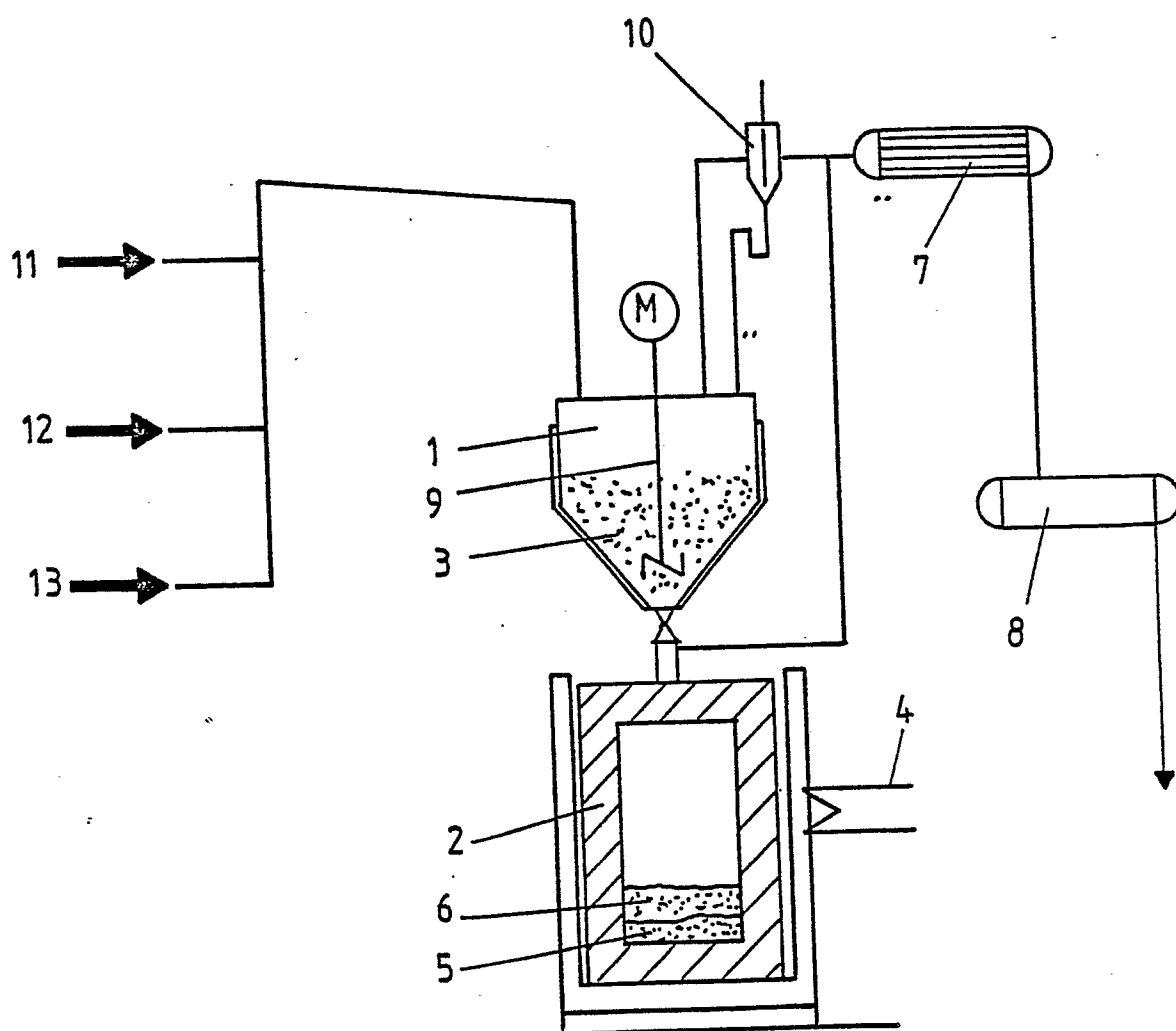


Fig.