



(11)

EP 4 517 781 A1

(12) **EUROPÄISCHE PATENTANMELDUNG**

(43) Veröffentlichungstag:
05.03.2025 Patentblatt 2025/10

(51) Internationale Patentklassifikation (IPC):
G21F 9/10 (2006.01) B02C 19/18 (2006.01)
G21F 9/30 (2006.01)

(21) Anmeldenummer: **24196710.8**

(52) Gemeinsame Patentklassifikation (CPC):
G21F 9/30; G21F 9/10

(22) Anmeldetag: **27.08.2024**

(84) Benannte Vertragsstaaten:
AL AT BE BG CH CY CZ DE DK EE ES FI FR GB
GR HR HU IE IS IT LI LT LU LV MC ME MK MT NL
NO PL PT RO RS SE SI SK SM TR
Benannte Erstreckungsstaaten:
BA
Benannte Validierungsstaaten:
GE KH MA MD TN

(72) Erfinder:
• **Friedrich, Hans-Jürgen**
01277 Dresden (DE)
• **Viehweger, Katrin**
01277 Dresden (DE)

(74) Vertreter: **Pfenning, Meinig & Partner mbB**
Patent- und Rechtsanwälte
An der Frauenkirche 20
01067 Dresden (DE)

(30) Priorität: **28.08.2023 DE 102023208214**

(71) Anmelder: **Fraunhofer-Gesellschaft zur**
Förderung
der angewandten Forschung e.V.
80686 München (DE)

(54) **VERFAHREN ZUR DEKONTAMINATION VON RADIOAKTIV BELASTETEM BETON**

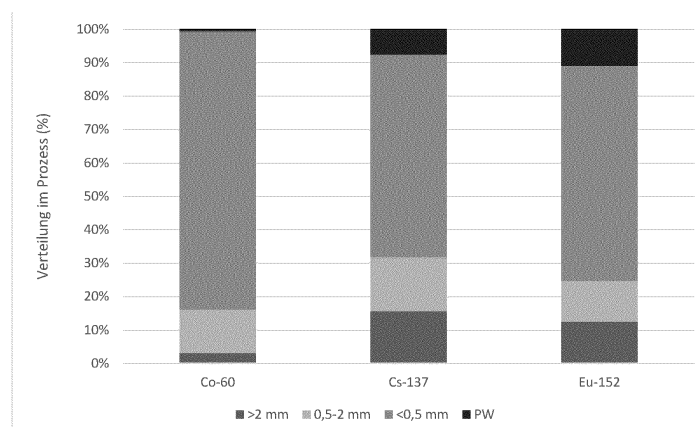
(57) Die vorliegende Erfindung betrifft ein Verfahren zur Dekontamination von radioaktiv belastetem Beton, das die folgenden Schritte umfasst:

- Aufgabe von stückigem, radioaktiv belastetem Beton in einen Reaktor,
- Aufgabe eines flüssigen Prozessmediums in den Reaktor vor, während und/oder nach Aufgabe des Betons in den Reaktor,
- elektrohydraulische Zerkleinerung des Betons im flüssigen Prozessmedium,
- Separation des zerkleinerten Betons vom flüssigen

Prozessmedium,

- Behandlung zumindest eines Teils des zerkleinerten Betons mit einer mineralischen Säure oder einem Gemisch mineralischer Säuren und anschließende Trennung der mineralischen Säure oder des Gemischs mineralischer Säuren vom zerkleinerten Beton,
- partielle oder vollständige Abtrennung radioaktiver Nuklide aus der abgetrennten mineralischen Säure oder dem Gemisch mineralischer Säuren und/oder
- partielle oder vollständige Abtrennung radioaktiver Nuklide aus dem Prozessmedium.

Fig. 1



EP 4 517 781 A1

Beschreibung

[0001] Die vorliegende Erfindung betrifft ein Verfahren zur Dekontamination von radioaktiv belastetem Beton, bei dem eine elektrohydraulische Zerkleinerung des Betons im flüssigen Prozessmedium und eine nachfolgende Abtrennung des flüssigen Prozessmediums erfolgen und die abgetrennte zerkleinerte Betonfraktion mindestens teilweise mit einer mineralischen Säure oder einem Gemisch mineralischer Säuren behandelt wird und anschließend eine Trennung der mineralischen Säure oder des Gemischs mineralischer Säuren vom zerkleinerten Beton, sowie eine partielle oder vollständige Abtrennung radioaktiver Nuklide aus dem abgetrennten Prozessmediums und der mineralischen Säure oder dem Gemisch mineralischer Säuren durchgeführt wird.

[0002] Beim Rückbau kerntechnischer Anlagen fallen jeweils mehrere hundert Tonnen radioaktiv kontaminierter oder durch Neutronenstrahlung aktivierter Beton an, die entsprechend zu konditionieren und endzulagern sind. Aufgrund der knappen Endlagerkapazitäten ist dieser Entsorgungsweg sehr teuer. Es wäre deshalb sehr vorteilhaft, wenn die Masse/das Volumen des endzulagernden Materials substantiell verringert werden könnte.

[0003] Prinzipiell sind Verfahren zur Volumenreduktion von Beton seit vielen Jahren Standard in diesem Industriebereich und es existieren zahlreiche Empfehlungen z.B. der IAEA und der OECD, wie mit solchen Materialien aus dem kerntechnischen Rückbau zu verfahren ist.

[0004] Der erste (behördlich vorgegebene) Schritt besteht dabei darin, durch umfangreiche Kontaminationsuntersuchungen radioaktive Materialpartien von nicht radioaktiven zu trennen. Auf diese Weise lassen sich bereits 90 -95% des Materials (ca. 250 - 300 kt je Kraftwerksblock) von solchem abtrennen, das einer weiteren Behandlung bedarf. Für die Behandlung der Residualfraktion gibt es ebenfalls zahlreiche etablierte technische Verfahren:

- Abfräsen
- Nageln
- Schleifen
- Ausbohren
- Laserablation
- Reinigung mit Dekontaminationspasten

[0005] Wie sich unschwer feststellen lässt, ermöglichen diese Verfahren in erster Linie eine Dekontamination der Oberfläche, stoßen aber schnell an Grenzen, wenn sich Kontamination oder aktiviertes Material im Inneren von Betonstrukturen befinden. Der Abtrag ist zudem unspezifisch, sodass keine Separation von stärker kontaminierten und kontaminationsfreien Materialpartien erfolgen kann (NEA/RWM/R(2011) - The NEA Co-Operative Programme on Decommissioning, Decontamination and Demolition of Concrete Structures, Friedrich, H. -J, Viehweger, K. KONTEC 2021, Proceedings).

[0006] Um auch Radionuklide aus Beton zu entfernen, die sich tiefer im Beton befinden - das ist z.B. bei Beton aus dem sog. biologischen Schild mit teils mehr als 1 m Dicke der Fall - wurden auch Untersuchungen zum Einsatz einer elektrokinetischen Dekontamination durchgeführt. Diese hat aber zwei gravierende Nachteile: ihre Wirksamkeit ist nuklidabhängig und der Prozess ist langwierig und mit aufwendiger Handhabung verbunden. So wird beschrieben, dass einige der relevanten Nuklide nur sehr schlecht entfernt werden können bzw. extrem lange Behandlungszeiten von wahrscheinlich mehreren 1.000 h erforderlich sind. Dies wiederum zieht andere Probleme wie erhöhte radiologische Belastung nach sich (Review-Electro-Kinetic Decontamination of Radioactive Concrete Waste from Nuclear Power Plants; Chanyoung Kim, Sungyeol Choi, , and Myoungsu Shin, al 2018 J. Electrochem. Soc. 165 E330).

[0007] Es wurde auch untersucht, Beton durch eine Abfolge thermischer und chemischer Schritte zu dekontaminieren. Dabei wird das Material auf mehrere 100 ° C aufgeheizt, wobei das sog. CSH-Gel (ausgehärteter Zementleim bzw. Zementstein im Beton) dehydratisiert und seine Bindekraft verliert. Dadurch lassen sich Zement und Zuschlagstoffe voneinander trennen. Nachfolgend wird eine chemische Laugung mit Mineralsäure zur Abreicherung der Nuklide durchgeführt. Der technische Aufwand und die Dauer sind auch hier erheblich (Feasibility study on the volume reduction of radioactive concrete wastes using thermomechanical and chemical sequential process, Angkyo Oh, Journal of Environmental Chemical Engineering, Volume 9, Issue 4, August 2021, 105742).

[0008] Auch die Nutzung elektrischer Entladungen (Hochspannung) an der Betonoberfläche wurde untersucht. Auch hierbei wird der Beton von der Oberfläche her abgetragen und der Prozess ist bei den o.g. Strukturen bzw. bei unregelmäßig geformten Betonbrekzien, wie sie üblicherweise im Rückbau vorkommen, kaum anwendbar. Diese Art der Dekontamination liegt aber vom physikalischen Prinzip her der eigenen Erfindung am nächsten (<https://www.>

world-nuclear-news.org/Articles/Tomsk-university-creating-concrete-decontamination; Researched and written by World Nuclear News, abgerufen am 21. August 2023). Aus eigenen Voruntersuchungen ist bekannt, dass sich von außen in Beton eindringende radioaktive Kontamination über das Porensystem im sog. Zementstein/CSH-Gel ausbreitet, nicht oder jedenfalls kaum über die Zuschlagstoffe, da diese weitgehend porenfrei sind /5/. Weiterhin ist aus eigenen

5 Untersuchungen bekannt, dass radioaktive Kontaminanten (Co-60, Sr-90, Cs-137, Eu-152/-154 und weitere) bevorzugt an Zementstein sorbieren, weitaus weniger stark jedoch an mineralischen und (abgesehen vom Co-60) metallischen Zuschlagstoffen. Einfluss auf die Sorption haben die Art des Zements, die Art des Zuschlagstoffs und das Phasenverhältnis Feststoff/Flüssigkeit.

[0009] Zwar werden Zuschlagstoffe und Zemente für kerntechnischen Gebrauch sorgfältig ausgewählt, um die Baustoff-technischen Erfordernisse zu erfüllen, aber auch um die Aktivierbarkeit durch Neutronenstrahlung auf ein Minimum zu begrenzen, aber Spuren von kritischen leicht aktivierbaren Elementen - gemeint sind solche mit hohem Einfangquerschnitt für Neutronenstrahlung >100 barn lassen sich meist nicht ganz vermeiden. Infolgedessen kommt es auch zur Bildung von sog. Aktivierungsnukliden, die dann mehr oder weniger homogen im Material verteilt sind. Eine weitere

10 Kategorie stellen sog. Schwerbetone dar, denen zur Verbesserung der abschirmenden Wirkung gegenüber radioaktiver Strahlung Schwerminerale wie Schwespat oder Metallgranulate (Stahl, Gusseisen) beigegeben werden. Auch an solchen Oberflächen können einige Radionuklide bevorzugt adsorbiert werden. Zudem können sich aus legierungstypischen Komponenten Aktivierungsnuklide bilden, wie eben Co-60. Fe-55 ist -obwohl in größeren Umfang gebildet - aufgrund seiner Kurzlebigkeit in diesem Kontext kaum von Interesse.

[0010] Allein in Deutschland fallen in den nächsten Jahren ca. 15 - 25 kt behandlungsbedürftiges Material an. Es wäre demnach wünschenswert ein Verfahren bereitzustellen, das es ermöglicht,

20

- die stärker kontaminierte Zementsteinfraktion von den Zuschlagstoffen zu trennen
 - Metalle aus dem Betonverbund herauszuberechnen
 - die Zuschlagstoffe, die meist aus Gesteinen mit unterschiedlichem Mineralbestand bestehen, zu fragmentieren
- 25

[0011] Diese Aufgabe wird mit den Merkmalen des Patentanspruchs 1 gelöst. Die abhängigen Patentansprüche beschreiben vorteilhafte Ausführungsformen.

[0012] Die Erfindung betrifft somit ein Verfahren zur Dekontamination von radioaktiv belastetem Beton, das die folgenden Schritte umfasst:

30

- a) Aufgabe von stückigem, radioaktiv belastetem Beton in einen Reaktor,
- b) Aufgabe eines flüssigen Prozessmediums in den Reaktor vor, während und/oder nach Aufgabe des Betons in den Reaktor,
- 35 c) elektrohydraulische Zerkleinerung des Betons im flüssigen Prozessmedium,
- d) Separation des zerkleinerten Betons vom flüssigen Prozessmedium,
- 40 e) ein- oder mehrmalige Behandlung zumindest eines Teils des zerkleinerten erwärmten Betons mit einer mineralischen Säure oder einem Gemisch mineralischer Säuren und anschließende Trennung der mineralischen Säure oder des Gemischs mineralischer Säuren vom zerkleinerten Beton,
- 45 f) partielle oder vollständige Abtrennung radioaktiver Nuklide aus der abgetrennten mineralischen Säure oder dem Gemisch mineralischer Säuren und/oder
- g) partielle oder vollständige Abtrennung radioaktiver Nuklide aus dem abgetrennten flüssigen Prozessmedium. Vorzugsweise wird das flüssige Prozessmedium in einem anschließenden Schritt h) wiederverwendet.

[0013] Überraschenderweise wurde gefunden, dass mittels der elektrohydraulischen Zerkleinerung, das im Stand der Technik erfolgreich zur Auftrennung von z.B. Verbundwerkstoffen eingesetzt wird, zur Separation von radioaktiver Kontamination und auch von auf Neutronenaktivierung zurückgehender Radioaktivität verwendet werden kann.

[0014] Die endzulagernde Abfallmenge an Beton aus dem Rückbau kerntechnischer Anlagen kann somit um bis zu 70% reduziert werden. Bei Kosten von 5.000 - 10.000 €/t und mehreren hundert t Beton je Rückbauobjekt ist dies ein erheblicher Kostenvorteil. Zudem wird hierdurch die Möglichkeit eröffnet, die Betonzuschlagstoffe in den Wirtschaftskreislauf zurückzuführen.

55

[0015] Anwendungsgebiet ist insbesondere der Rückbau kerntechnischer Anlagen (Kernkraftwerke, Anlagen der Brennelementherstellung, der Wiederaufarbeitung, Forschungsreaktoren, Anlagen, die Neutronen oder Ionenstrahlen

erzeugen), Anlagen zur Herstellung/Verarbeitung radioaktiver Stoffe, Anlagen zur Gewinnung und Verarbeitung von Uranerzen, sowie von Uran- und Thoriumhaltigen Mineralen, Forschungsreaktoren für die Kernfusionsforschung und für sog. Gen 4 Kernreaktoren.

[0016] Bevorzugt werden hierbei die folgenden Anwendungsbedingungen des Verfahrens eingesetzt:

Die elektrohydraulische Zerkleinerung des Betons wird vorzugsweise batchweise unter Beaufschlagung des stückigen Betons mit 100 bis 500 Pulsen, bevorzugt 200 bis 350 Pulsen bei einer Impulsdauer von 0,1 - 5 Mikrosekunden, bevorzugt bei 2 - 3 Mikrosekunden durchgeführt.

[0017] Die elektrohydraulische Zerkleinerung wird bevorzugt mit Spannungen von 10 bis 100 kV, bevorzugt von 40 bis 50 kV durchgeführt.

Im für die elektrohydraulische Zerkleinerung verwendeten Reaktor wird vorzugsweise ein Füllgrad von 0,05 bis 1,0 kg/dm³, bevorzugt 0,12- 0,4 kg/dm³ eingestellt.

[0019] Vorzugsweise wird in Schritt c) ein Verhältnis von Impulszahl/Füllgrad von 300 Impulsen*dm³/kg bis 1500 Impulsen*dm³/kg eingehalten.

[0020] Weiter ist vorzugsweise das flüssige Prozessmedium Grundwasser, Oberflächenwasser, Trinkwasser, deionisiertes Wasser oder entsalztes Wasser mit einer spezifischen elektrischen Leitfähigkeit < 1, bevorzugt <0,5 mS/cm und besonders bevorzugt von <0,25 mS/cm.

[0021] Insbesondere erfolgt nach Schritt c) ein Entleeren des Reaktors und bevorzugt eine anschließende Dekontamination des Reaktors, insbesondere durch Spülen mit Wasser und Entfernung der schluffigen Partikel mit einer mittleren Korngröße von <0,05 mm. Dabei kommen allgemein bekannte Arbeitsschritte wie Aus- oder Abspülen, Abschaben und Abwischen zum Einsatz, die auch auf geeignete Weise mechanisiert und automatisiert durchgeführt werden können.

[0022] Vorteilhaft ist ferner, dass die in Schritt a) aufgegebenen Stücke des Betons ein maximales Gewicht von 2,0 kg aufweisen und/oder Stücke von Beton mit einem Gewicht von mehr als 2,0 kg vor Aufgabe zerkleinert werden, beispielsweise mittels mechanischer Zerkleinerungsverfahren.

[0023] Beispielsweise weist der aufgegebenen stückige Beton Stückgewichte in einem Bereich von 0,01 bis 2,0 kg auf.

[0024] Zudem kann beim erfindungsgemäßen Verfahren nach Schritt d) eine Trocknung, vorzugsweise bei Temperaturen von 50 bis 250 °C, vorzugsweise 60 bis 120 °C, des zerkleinerten Betons erfolgen.

[0025] Vorteilhaft ist ferner, wenn nach Schritt d), vorzugsweise nach der Trocknung wie im Voranstehenden beschrieben, der zerkleinerte Beton fraktioniert wird, vorzugsweise in eine Feinfraktion mit einer durch Prüfsiebung ermittelten Korngröße von weniger als 0,6 mm, bevorzugt weniger als 0,5 mm und mindestens eine Grobfraktion mit einer Korngröße von 0,6 mm und größer, bevorzugt 0,5 mm und größer.

[0026] Verfahren nach einem der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, dass nach Schritt d), vorzugsweise nach der voranstehend beschriebenen Trocknung eine Abtrennung ferromagnetischer Bestandteile, wie z.B. Stahl, Gusseisen, Ferrite und/oder Duplexstähle, insbesondere durch Magnetscheidung erfolgt.

[0027] Eine weitere vorteilhafte Ausführungsform sieht vor, dass in Schritt e) eine Behandlung der wie im Voranstehenden beschriebenen erzeugten Grobfraktion erfolgt. Es kann auch vorteilhaft sein, die Grobfraktion entsprechend ihrer Korngröße, der Dichte der Partikel oder ihrer magnetischen Eigenschaften durch dem Fachmann an sich bekannte Verfahren wie Schwimm-Sink-Trennung, Magnetscheidung, Einsatz von Stoßherden, Windsichtern, einer radiometrischen Klassierung weiter aufzutrennen und eine oder mehrere Teilfraktionen davon zu behandeln.

[0028] Die mineralische Säure ist vorzugsweise ausgewählt aus der Gruppe bestehend aus Salzsäure, Salpetersäure, Schwefelsäure, Flusssäure oder Mischungen hiervon.

[0029] Beispielsweise weist die mineralische Säure eine Konzentration von 1,5 bis 6,0 mol/l auf.

[0030] Im in Schritt d) abgetrennten flüssigen Prozessmedium enthaltene Feststoffe können aus dem Prozessmedium abgetrennt werden, insbesondere durch Filtration, Zentrifugation, Ultrazentrifugation, Sedimentation oder eine Kombination der genannten Maßnahmen, besonders bevorzugt durch Filtration mittels eines Mikrofilters mit einer Porenweite von 0,45 - 5 µm, bevorzugt 0,5 - 1 µm.

[0031] Weiter bevorzugt werden die abgetrennten Feststoffe nach der Behandlung mit Säure mit Wasser gewaschen.

[0032] Das abgetrennte flüssige Prozessmedium und das beim Waschschrift gemäß vorangehendem Anspruch anfallende Wasser können vereinigt und nach einer Reinigung durch Elektrodialyse, wobei die Elektrodialyse mehrere Medienkreisläufe umfasst, die durch alternierend angeordnete Anionen- und Kationenaustauschermembranen voneinander getrennt sind - hier bestehend aus Elektrodenspülkreislauf, Konzentratkreislauf und Diluatkreislauf - erneut als flüssiges Prozessmedium in einem Verfahren gemäß einem der vorhergehenden Ansprüche verwendet werden. Die besagten Membranen können in einem Kunststoffgehäuse untergebracht sein, wobei typischerweise zwischen den Membranen sogenannte Spacer mit integrierter Medienzuführung und-verteilung angeordnet sind und der so gebildete Stapel von alternierenden Anionen- und Kationenaustauschermembranen mit den dazwischen befindlichen Spacern mittels äußerem Spannrahmen flüssigkeitsdicht aufeinander gepresst wird. Zum Stromeintrag können im Gehäuse angeordnete Elektroden dienen, von denen je eine als Anode und eine als Kathode fungiert. Vorliegend kann die Kathode aus einer Nickelbasislegierung vom Typ Hastelloy C276, die Anode aus Titanblech mit einer 5 µm dicken Beschichtung aus IrO₂ bestehen. Die elektrischen und hydraulischen Anschlüsse werden auf dem Fachmann bekannte Art und Weise

hergestellt.

[0033] Insbesondere werden bei der Elektrodialyse Kationen- und Anionenaustauschermembranen zur Abtrennung gelöster Salze und gelöster Radionuklide, insbesondere Co-60, Cs-137, Sr-90, Eu-154, Ba-144, Am-241 und/oder Pu-241 verwendet, wobei die Radionuklide im Konzentratkreislauf angereichert werden.

[0034] Insbesondere erfolgt die überwiegende oder vollständige Abtrennung radioaktiver Nuklide gemäß Schritt f) mittels Elektrodialyse.

[0035] In Schritt f) fällt bevorzugt ein Konzentrat an, das durch Einengung und Fällung hydrolysierbarer Metallionen und/oder über selektive Adsorption und/oder über elektrochemische Abscheidung aufgearbeitet werden kann, wobei die Ionen der Radioisotope mit umfasst sind, da sie sich chemisch gleich verhalten wie die nicht-radioaktiven Isotope der jeweiligen Metalle.

[0036] Die Feststoffe können mit Zement vermengt und nach Aktivierung des Zementes mit Wasser verfestigt werden, wobei vorzugsweise vor Verfestigung weiter die gefällten hydrolysierbaren Metalle wie im Voranstehenden beschrieben zugegeben werden.

[0037] Bezogen auf die Trockenmasse der Feststoffe bzw. auf die Trockenmasse der Feststoffe und der gefällten hydrolysierbaren Metalle können beispielsweise 5 -15 Gew.-% Zement und Wasser mit einem bevorzugten Wasser-Zement-Wert von 0,4 - 0,8 zugegeben werden.

[0038] Der eingesetzte Reaktor kann aus einem elektrischen Isolator, insbesondere einem elektrisch nicht leitenden Kunststoff gebildet sein.

[0039] Beispielhafte Betonsorten, die sich insbesondere für das erfindungsgemäße Verfahren eignen und mit denen hervorragende Ergebnisse erzielt werden können haben z.B. die folgenden Hauptbestandteile in den folgenden Gewichtsmengen (Gew.-%):

Quartz:	40 bis 70 Gew.-%, bevorzugt 50 bis 65 Gew.-%,
Calcit:	1,0 bis 5,0 Gew.-%, bevorzugt 2,5 bis 3,5 Gew.-%,
Portlandit:	1,0 bis 5,0 Gew.-%, bevorzugt 2,5 bis 3,5 Gew.-%,
Feldspat:	10 bis 25 Gew.-%, bevorzugt 14 bis 20 Gew.-%,
Muscovit:	0 bis 1,0 Gew.-%, bevorzugt 0,1 bis 0,5 Gew.-%, und
C-A-H-Phasen:	0 bis 1,0 Gew.-%, bevorzugt 0,1 bis 0,5 Gew.-%.

[0040] Bevorzugte Betonsorten, die für das erfindungsgemäße Verfahren geeignet sind, haben beispielsweise die folgenden mechanischen Eigenschaften:

Kaltdruckfestigkeit:	30 bis 50 N/mm ² , bevorzugt 35 bis 45 N/mm ² ,
Spaltzugfestigkeit:	2,0 bis 7,0 N/mm ² , bevorzugt 3,5 bis 5,5 N/mm ² , und
Statisches E-Modul:	15 bis 35 GPa, bevorzugt 20 bis 30 GPa.

[0041] Die vorgenannten Angaben dienen der Präzisierung. Sie stellen aber keine Beschränkung des Anwendungsbereichs dar.

[0042] Insbesondere für das erfindungsgemäße Verfahren geeignete Betonsorten weisen die folgenden Porositätsdaten auf, die mittels Quecksilberporosimetrie ermittelt werden können:

Gesamtporenoberfläche	0,5 bis 10 m ² /g, bevorzugt 2,0 bis 6,5 m ² /g
Median des Porendurchmessers (Volumen):	0,10 bis 0,35 µm, bevorzugt 0,12 bis 0,30 µm
Median des Porendurchmessers (Fläche):	0,007 bis 0,020 µm, bevorzugt 0,010 bis 0,018 µm
Durchschnittlicher Porendurchmesser (4V/A):	0,030 bis 0,070 µm, bevorzugt 0,040 bis 0,060 µm
Scheinbare (skeletale) Dichte	2,0 bis 6,5 g/mL, bevorzugt 2,4 bis 4,5 g/mL
Porosität:	7,5 bis 12,0 %, bevorzugt 8,0 bis 9,5 %

[0043] Die vorliegende Erfindung wird nachfolgend anhand beispielhafter Ausführungen näher beschrieben, ohne die Erfindung auf die dargestellten Details zu beschränken.

[0044] Beim erfindungsgemäßen Verfahren findet die phasenselektive Zerkleinerung des Betons in einem Reaktor (Reaktionsgefäß) aus einem elektrisch nichtleitenden Kunststoff statt, in den von oben und unten eine Elektrode hineinragt. Über diese beiden Elektroden wird die Hochspannung in Form von Pulsen appliziert. Der Reaktor wird mit Betonbrekzien oder -stücken mit einer Masse von 0,01 - 1,5 kg sowie mit entsalztem Wasser einer spezifischen

elektrischen Leitfähigkeit $<0,2$ mS/cm als Koppelmedium gefüllt, dicht verschlossen und an die Hochspannungsquelle angeschlossen. Nach Applikation der benötigten Anzahl an Hochspannungsimpulsen wird der Reaktor geöffnet, entleert und das Material weiterverarbeitet. Es wird bei Temperaturen von $1 - 90$ °C gearbeitet. Insgesamt umfasst die Abtrennung der Radioaktivität gemäß diesem Beispiel folgende Arbeitsschritte:

- Vorzerkleinerung des Materials in Stücke mit max. 2 kg Gewicht (optional),
- Befüllen und Entleeren des Reaktors,
- Abtrennung des Prozesswassers (Dekantieren) und Dekontamination des Reaktionsgefäßes,
- ggf. Trocknung des zerkleinerten Betons bei $60 - 150$ °C,
- Klassierung des zerkleinerten Materials durch Siebung, dabei Trennung in eine Feinfraktion $<0,5$ (0,2) mm Korngröße sowie in mehrere gröbere Fraktionen und Wägung,
- Magnetscheidung zur Entfernung metallischer Bestandteile (Stahl, Gusseisen, Ferrite, Duplexstähle),
- Entnahme von Aliquoten für Bestimmung der spezifischen Aktivität der Radionuklide mittels γ - und/oder α -Spektrometrie bzw. durch LSC-Messung (Sr-90) nach entsprechender radiochemischer Trennung) im Umfang von 10 - 50 g,
- ein- oder mehrmalige Laugung der noch warmen Fraktionen $>0,5$ (0,1) mm Korngröße der Temperatur $20 - 90$ °C, vorzugsweise $20 - 50$ °C mit Mineralsäure (HCl, HNO₃) der Konzentration 1,5 - 6 Mol/l zur Reinigung von Zement- und Kalkresten für jeweils 5-60 min, bevorzugt für 10 - 40 min je Laugungsvorgang,
- Fest-/flüssig-Trennung, Spülen der Feststofffraktion mit Wasser (1-3 Mal mit einem Phasenverhältnis fest/flüssig von 0,3:1 bis 3:1),
- Abtrennung der Radionuklide aus dem benutzten Prozessmedium durch Elektrodialyse, Rückführung des gereinigten Prozessmediums in den Prozess,
- Abtrennung der Radionuklide aus der benutzten Mineralsäure durch Fällung oder selektive Adsorption und anschließende fest-flüssig Trennung mittels Dekantieren, Filtration, Zentrifugation, Anwendung der Elektrodialyse zur weiteren Reinigung der flüssigen Phase, Rückführung der gereinigten Flüssigkeit bzw. Säure in den Prozess,
- Erneute Trocknung der mineralischen Fraktion und Wägung/Aktivitätsmessung,
- Filtration des Prozesswassers über Mikrofilter (Porenweite 0,45 - 5 μ m Porenweite, bevorzugt 0,5 - 1 μ m.
- Weiterbehandlung des Filtrerrückstands nach Aktivitätsmessung durch Zugabe von 5 - 15 % der Trockenmasse Zement und Wasser (Wasser-Zement-Wert 0,4 - 0,8), Vermischen und Verfestigung
- Vermischen des alkalischen Prozesswassers (pH11-12,5) mit dem Spülwasser der Mineralsäurebehandlung,
- Entsalzung und Radionuklidabtrennung aus den Prozesswässern mittels Elektrodialyse, Nutzung von Lösungen leichtlöslicher Mineralsalze für Elektrodenspülkreislauf und Konzentratkreislauf,
- Einengen des Konzentrats der Elektrodialyse, Fällung hydrolysierbarer Metalle und Zugabe der Feststoffe beim Zementieren der Feinfraktion.

[0045] In der zuvor beschriebenen Weise wurden mehrere Sorten radioaktiv kontaminierter Beton und aktivierter Beton behandelt und dabei jeweils eine Feinfraktion $<0,5$ mm Korngröße erhalten, die mit 15 - 80 % Masseanteil den größten Anteil der im Beton enthaltenen Radioaktivität enthielt und eine oder mehrere gröbere Fraktionen, deren Radioaktivität unter den Grenzwerten für die spezifische Aktivität lt. Strahlenschutzverordnung für den Einbau auf Deponien lag. Diese Fraktionen sind somit nicht mehr im Endlager für radioaktive Abfälle einzulagern. Es versteht sich, dass je nach Art der Kontamination / die aktivierungsbedingte Radioaktivität verursachenden Radionuklids und nach Ausgangsniveau der Radioaktivität auch eine Grobfraktion erzeugt werden kann, die ohne größere Einschränkungen einem Recycling zugeführt werden kann. Überraschend wurde gefunden, dass auch im Inneren des Betons stochastisch verteilte, durch Aktivierung entstandene Radioaktivität auf diese Weise abgetrennt und in der Feinfraktion angereichert werden kann. Entscheidend hierfür sind die Wahl der Impulszahl und die Füllmenge an Beton im Reaktor bzw. das Phasenverhältnis zwischen Prozesswasser und Beton zur Behandlung. Überraschend wurde weiterhin gefunden, dass sich bei der Behandlung von mit Stahl/Eisen versetzten Schwerbeton eine reine Stahl-/Eisenfraktion von 32 - 48 % Masseanteil erhalten lässt, deren Radioaktivität nahezu ausschließlich auf das Radionuklid Co-60 zurückzuführen ist. In Kombination mit der relativ kurzen Halbwertszeit von Co-60 von 5,27 a ist es im Zuge einer solchen Behandlung möglich, den Co-60-haltigen Stahl/Eisen ggf. nach wenigen Halbwertszeiten Wartezeit in den Wirtschaftskreislauf zurückzuführen, womit auch in diesem Falle eine Endlagerung entfallen kann.

[0046] In der beschriebenen Weise ließen sich neben den genannten Radionukliden Co-60, Sr-90, Cs-137, Eu-152/154, Nd- auch Ba-133, Am- und Pu-Isotope sowie Uran abtrennen.

Beispiele:Beispiel Nr. 1a - kontaminierter Beton

[0047] Zur Verifizierung des Verfahrensansatzes und zur Überprüfung der Bilanzierungsmethodik wurden Untersuchungen an Beton durchgeführt, dem beim Anmischen gelöst im Anmachwasser die Radionuklide Co-60, Cs-137, Eu-152 und Sr-90 in einer Aktivität von jeweils 100 kBq/kg zugefügt wurden. In Fig. 1 ist die Bilanz über die Materialströme dargestellt (Bilanzierung für die Probe IKTS-2 (1.204 g), (PW-Prozesswasser)).

[0048] Wie zu erkennen ist, findet sich bei allen bislang untersuchten Radionukliden der größte Teil davon in der Feinfraktion <0,5 mm Korndurchmesser. Der Anteil dieser Fraktion lag bei dieser Probe als Folge der starken Zerkleinerung bei 49% der Ausgangsmasse.

[0049] Durch die nachfolgende zweimalige HCl-Wäsche des 50 °C warmen Betons für jeweils 30 min konnte die spezifische Aktivität bei Co-60 und bei Eu-152 jeweils von 24 auf 0,35 Bq/g vermindert werden, bei Cs-137 jedoch nur von 36 auf 11 Bq/g.

[0050] Auf Basis der Bilanzierung können die Wiederfindungsraten im Versuch für Cs-137 mit 92%, die für Eu-152 mit 86% und die für Co-60 mit 78% angegeben werden, wenn man eine homogene Durchmischung beim Anmachen des Betons annimmt. Dies ist aber nicht zwangsläufig gegeben, da Eu und Co durch die stark alkalische Reaktion der Zemente sofort ausfallen und möglicherweise nicht homogen im Material verteilt werden. Tatsächlich waren in einigen Betonproben nach dem Ausschalen deutlich gefärbte Schlieren erkennbar, die trotz jeweils gleicher Mischerparameter und Ansatzmengen auf teilweise inhomogene Verteilung hindeuten.

Beispiel Nr. 1b)

[0051] 1.189 g Beton, der in gleicher Weise wie unter Beispiel 1a beschrieben hergestellt wurde, wurde mittels Anwendung von 220 Hochspannungsimpulsen zerkleinert. In den vom Prozesswasser durch Dekantieren und Filtration separierten und bei 120 °C getrockneten Feststofffraktionen fanden sich laut γ -spektrometrischer Analyse folgende Verteilungen der zuvor aufgegebenen Radionuklide auf die Feststofffraktionen (Tabelle 1)

Tabelle 1: Verteilung der Radionuklide auf die Feststofffraktionen nach Zerkleinerung, Phasenseparation und Trocknung, Angaben in %

Fraktion	Co-60	Cs-137	Eu-152	Sr-90
>2 mm	3,86	7,99	3,67	1,86
0,5-2 mm	16,66	24,27	16,10	10,20
<0,5 mm	79,48	67,74	80,22	87,95

[0052] Durch eine nachfolgende Wäsche der Fraktion >2,0 mm mit 3 M HCl bei Raumtemperatur, gefolgt von zweimaligem Spülen des zerkleinerten Betons mit Wasser und nach erneuter Trocknung bei 120°C waren Eu-Isotope und Sr-90 im Feststoff nicht mehr detektierbar, die Aktivität von Co-60 war auf <0,1% der Gesamtaktivität vermindert worden und diejenige des Cs-137 auf 4%.

Beispiel 2 - aktivierter Beton, KKW

[0053] Die Untersuchungen wurden an drei frei gemessenen und an 6 radioaktiven Betonproben durchgeführt. Erstere dienten der Optimierung aller Behandlungsschritte speziell im Hinblick auf mögliche Kontaminationsrisiken und deren Vermeidung. Die radioaktiven Betonproben enthielten lt. externer Radionuklidanalyse in erster Linie Cs-137, in geringerer Konzentration auch Eu-152, Sr-90 und Cl-36 sowie Pu-241 und α -Strahler (Tabelle 1). Die Spannweite der spezifischen Aktivität der einzelnen Proben war jedoch relativ groß.

Tabelle 1: mittlere spezifische Aktivität in Betonproben aus einem KKW:

	Nuklid					
	Co-60	Cs-137	Cl-36	Sr-90	Pu-241	Summe α -Strahler
A_{spez} (Bq/kg)	1,8	1.248	6,99	48	14	3,95

[0054] Die nachfolgend vorgestellten Ergebnisse beziehen sich auf die Verarbeitung einer Betonprobe mit 871 g

Trockenmasse. Die Verteilung auf die Siebfractionen nach der elektrohydraulischen Zerkleinerung kann Tabelle 2 entnommen werden. Einfluss auf den Zerkleinerungsgrad hat vor allem die Füllmenge des Reaktionsgefäßes, wie die Gegenüberstellung mit einer Probe mit 1.670 g Ausgangsmasse zeigt. Die Absenkung der Füllmenge bewirkt eine weitestgehende Zerkleinerung der Kiessandfraktion (Abnahme von 16 auf 0,7 % Anteil), während sich der Anteil der feinen Fraktion <0,5 mm entsprechend erhöht. Die stärkere Zerkleinerung führt auch zu einer Erhöhung des im Prozesswasser gelösten Anteils, da sich die für eine Elution zur Verfügung stehende Materialoberfläche erhöht.

Tabelle 2: Einfluss der Füllmenge auf den Zerkleinerungsgrad

Füllmenge (g)	Impulszahl n	Anteile (%)				
		<0,5 mm	0,5 -2 mm	2 -6,5 mm	>6,5 mm	gelöst
871	220	38,4	39,0	19,9	0,7	2,1
1.670	300	19,5	34,7	29,2	16,0	0,7

[0055] Die spezifischen Aktivitäten in den Fraktionen können **Fig. 2** entnommen werden. Fig. 2 zeigt spezifische Aktivitäten in den Siebfractionen, Probe mit 871 g Ausgangsmasse (Probe KKW-6).

[0056] Die Feinfraktion <0,5 mm Korndurchmesser weist demnach die jeweils höchsten spezifischen Aktivitäten auf, was prinzipiell im Einklang mit den Ergebnissen der Voruntersuchungen steht. Eu-152 konnte hierbei nicht nachgewiesen werden. Eine HCl-Wäsche des Materials bewirkt eine weitgehende Entfernung (77%) des Co-60, erwies sich bzgl. des Cs-137 in diesem Fall jedoch als unwirksam. Da in anderen Fällen Co-60 und Eu-152 mittels HCl-Wäsche nahezu vollständig entfernt werden konnten und Cs-137 teils ebenfalls bis zu 90%, ist zu vermuten, dass sich die Nuklide im Inneren der Partikel befanden und somit einer Auslaugung nicht zugänglich waren (**Fig. 3:** Freisetzung der Radionuklide bei Wäsche mit 3 M HCl, Probe KKW). Bei dieser Probe fand sich Sr-90 ausschließlich in der Fraktion <0,5 mm.

[0057] Eine Betrachtung für alle untersuchten Materialfraktionen und Radionuklide für die Probe KKW-6 führt unter Berücksichtigung der durch die Elektrodialyse (ED) des Prozesswassers abgetrennten Aktivität zu der in **Fig. 4** (Bilanzierung für die Probe KKW 6 (PW-Prozesswasser)) dargestellten Bilanz. Die Abtrenngrade der ED entsprechen den bereits in früheren Versuchen ermittelten Werten von 80 bis nahe 100% der gelösten Radionuklide, wobei die spezifische elektrische Leitfähigkeit des nach dem Zerkleinerungsschritt 35 °C warmen Prozesswassers von 8,4 mS/cm durch die Elektrodialyse auf 0,18 mS/cm bei 29°C abgesenkt wurde. Eine Konzentrationszunahme im wiederverwendeten sog. Diluat war über alle Versuche nicht nachweisbar, die Anreicherung erfolgte im Konzentratstrom. Dieser wurde ebenfalls über alle Versuche hinweg weiterverwendet.

[0058] Gemäß der Darstellung in Fig. 4 finden sich mehr als 80% des Co-60 und mehr als 60% des Cs-137 in der Siebfraction <0,5 mm, während in den Fraktionen >2 mm kein Co-60 und nur 6% des Cs-137 nachgewiesen werden konnte. Eu-152 fand sich ausschließlich im Prozesswasser. Sr-90 fand sich nach der Zerkleinerung zu 82 % in der Feinfraktion. Aus den beiden größeren Fraktionen >0,5 mm konnte es durch Waschen mit 3 M HCl vollständig entfernt werden.

[0059] Die vollständige Abtrennung von Eu-152 über das Prozesswasser wurde in 5 von 6 untersuchten Fällen gefunden. Ein abweichender Befund ergab sich nur für die Probe KKW-1 (1.670 g Trockenmasse), bei der Eu-152 in allen untersuchten Fraktionen nachgewiesen werden konnte (**Fig. 5:** Bilanzierung für die Probe KKW 1 (PW-Prozesswasser)).

[0060] Im Zuge der Behandlung des Prozesswassers durch Elektrodialyse über 40 min bei 0,5 A mittlerer Stromstärke konnten Co-60 zu 90 % und die übrigen Radionuklide (Cs-137, Sr-90, Eu-152) bis zur Nachweisgrenze von 0,2 Bq/l abgetrennt werden.

Beispiel 3: aktivierter Schwerbeton Forschungsreaktor (biologischer Schild)

[0061] Bei diesem Material handelt es sich um einen Schwerbeton mit einem Stahlanteil von 30 - 50 %, dessen Radioaktivität auf Aktivierung zurückzuführen ist. Entsprechend den Angaben des Betreibers wies das Untersuchungsmaterial die in Tabelle 3 aufgeführten spezifischen Aktivitäten auf.

Tabelle 3: Spannweiten der spezifischen Aktivität von Betonproben aus dem biologischen Schild eines früheren FR

	A_{spez} (Bq/kg)					
	Ba-133	Co-60	Cs-137	Eu-152	Sr-90	Am-241
Min.	1	100	3	<1	<8	<1

(fortgesetzt)

	A_{spez} (Bq/kg)					
	Ba-133	Co-60	Cs-137	Eu-152	Sr-90	Am-241
Max.	4	1.560	4.500	34.500	720	38

[0062] Voruntersuchungen an diesem Material waren nicht möglich. Im Unterschied zur Behandlung des Betons aus einem KKW bestand die Siebfraction >6,5 mm ausschließlich aus Stahlstücken, die manuell separiert wurden. Auch die Fraktion 2,0-6,5 mm Korndurchmesser bestand überwiegend aus Stahl, der mittels eines Magneten abgetrennt werden konnte (Fig. 6: Abtrennung von Stahl aus RFR-Schwerbeton).

[0063] Fig. 7 kann die Masseverteilung auf die Feststofffraktionen entnommen werden (Masseverteilung auf die Feststofffraktionen für Betonprobe FR-3, Trockenmasse 1.205 g).

[0064] Der Metallanteil lag hier bei nahezu 35%. Die feineren Fraktionen enthielten neben den anderen Bestandteilen auch Eisenoxide, die durch die Korrosion des Stahls gebildet wurden und die nicht aus dem Zement stammen. Bei diesem Versuch konnte im Gegensatz zu allen anderen im Prozesswasser keine Radionuklidfreisetzung beobachtet werden.

[0065] Die Ergebnisse der Radionuklidanalysen für diese Betonprobe können Fig. 8 entnommen werden (Spezifische Aktivitäten in Siebfractionen der Probe FR-3). Wie zu erkennen ist, kommt in der Siebfraction >6,5 mm, die ausschließlich aus Stahl besteht, größtenteils Co-60 vor (498 von 507 Bq/kg), daneben etwas Eu-152. Die größte spezifische Aktivität wurde in der 2. Metallfraktion (Korngröße 2 - 6,5 mm) gefunden, wobei Co-60 und Sr-90 in nahezu gleichen Anteilen nachgewiesen wurden. Eu-152 hingegen war nur in den mineralischen Fraktionen nachweisbar und durch eine HCl-Wäsche auch nicht entfernbar. Die scheinbare Zunahme der spezifischen Sr-90 Aktivität erklärt sich hier zwanglos durch den Massenverlust bei der HCl-Wäsche. Da die Eu-152-Aktivität dabei nicht entfernt werden konnte, erhöht sich die spezifische Aktivität. Ba-133 wurde in geringen Anteilen in den mineralischen Fraktionen nachgewiesen, nicht aber in den Metallfraktionen. Auch eine mehrmalige Wäsche der Metallfraktionen mit 3 M HCl (2 x 30 min), in der sowohl Stahl als auch oberflächlich anhaftende Eisenoxide leicht aufgelöst werden können, bewirkte keine nennenswerte Freisetzung von Radioaktivität.

Patentansprüche

1. Verfahren zur Dekontamination von radioaktiv belastetem Beton, das die folgenden Schritte umfasst:

- Aufgabe von stückigem, radioaktiv belastetem Beton in einen Reaktor,
- Aufgabe eines flüssigen Prozessmediums in den Reaktor vor, während und/oder nach Aufgabe des Betons in den Reaktor,
- elektrohydraulische Zerkleinerung des Betons im flüssigen Prozessmedium,
- Separation des zerkleinerten Betons vom flüssigen Prozessmedium,
- Behandlung zumindest eines Teils des zerkleinerten Betons mit einer mineralischen Säure oder einem Gemisch mineralischer Säuren und anschließende Trennung der mineralischen Säure oder des Gemischs mineralischer Säuren vom zerkleinerten Beton,
- partielle oder vollständige Abtrennung radioaktiver Nuklide aus der abgetrennten mineralischen Säure oder dem Gemisch mineralischer Säuren und/oder
- partielle oder vollständige Abtrennung radioaktiver Nuklide aus dem Prozessmedium.

2. Verfahren nach Anspruch 1, **dadurch gekennzeichnet, dass** die elektrohydraulische Zerkleinerung des Betons batchweise unter Beaufschlagung des stückigen Betons mit 100 bis 500 Pulsen, bevorzugt 200 bis 350 Pulsen bei einer Impulsdauer von 0,1-5 Mikrosekunden, bevorzugt bei 2-3 Mikrosekunden durchgeführt wird und/oder dass die elektrohydraulische Zerkleinerung mit Spannungen von 10 bis 100 kV, bevorzugt von 40 bis 50 kV durchgeführt wird.

3. Verfahren nach einem der vorhergehenden Ansprüche, **dadurch gekennzeichnet, dass** im Reaktor ein Füllgrad von 0,05 bis 1,0 kg/dm³, bevorzugt 0,12-0,4 kg/dm³ eingestellt wird, wobei vorzugsweise in Schritt c) ein Verhältnis von Impulszahl/Füllgrad von 300 Impulsen*dm³/kg bis 1500 Impulsen*dm³/kg eingehalten wird.

4. Verfahren nach einem der vorhergehenden Ansprüche, **dadurch gekennzeichnet, dass** das flüssige Prozessmedium Wasser in der Güte von Trinkwasser, Grundwasser oder Oberflächenwasser ist oder es sich um deionisiertes oder entsalztes Wasser, insbesondere mit einer spezifischen elektrischen Leitfähigkeit < 1, bevorzugt <0,5 mS/cm und besonders bevorzugt von <0,25 mS/cm, handelt.

5. Verfahren nach einem der vorhergehenden Ansprüche, dass nach Schritt c) ein Entleeren des Reaktors erfolgt und bevorzugt eine anschließende Dekontamination des Reaktors durchgeführt wird, insbesondere durch Spülen mit Wasser und Entfernung der schluffigen Partikel mit einer mittleren Korngröße von <0,05 mm.
- 5 6. Verfahren nach einem der vorhergehenden Ansprüche, **dadurch gekennzeichnet, dass** die in Schritt a) aufgegebene Stücke des Betons ein maximales Gewicht von 2,0 kg aufweisen und/oder Stücke von Beton mit einem Gewicht von mehr als 2,0 kg vor Aufgabe zerkleinert werden, beispielsweise mittels mechanischer Zerkleinerungsverfahren und/oder dass der aufgegebene stückige Beton Stückgewichte in einem Bereich von 0,01 bis 2,0 kg aufweist.
- 10 7. Verfahren nach einem der vorhergehenden Ansprüche, **dadurch gekennzeichnet, dass** nach Schritt d) eine Trocknung, vorzugsweise bei Temperaturen von 50 bis 250 °C des zerkleinerten Betons erfolgt.
8. Verfahren nach einem der vorhergehenden Ansprüche, **dadurch gekennzeichnet, dass** nach Schritt d), vorzugsweise nach der Trocknung gemäß vorhergehendem Anspruch, der zerkleinerte Beton fraktioniert wird, vorzugsweise in eine Feinfraktion mit einer durch Prüfsiebung ermittelten Korngröße von weniger als 0,6 mm, bevorzugt weniger als 0,5 mm und mindestens eine Grobfraktion mit einer Korngröße von 0,6 mm und größer, bevorzugt 0,5 mm und größer.
- 15 9. Verfahren nach einem der vorhergehenden Ansprüche, **dadurch gekennzeichnet, dass** nach Schritt d), vorzugsweise nach der Trocknung gemäß Anspruch 7 eine Abtrennung ferromagnetischer Bestandteile, wie z.B. Stahl, Gusseisen, Ferrite und/oder Duplexstähle, insbesondere durch Magnetscheidung erfolgt.
- 20 10. Verfahren nach einem der Ansprüche 8 bis 9, **dadurch gekennzeichnet, dass** in Schritt e) eine Behandlung der gemäß Anspruch 8 erzeugten Feinfraktion erfolgt.
- 25 11. Verfahren nach einem der vorhergehenden Ansprüche, **dadurch gekennzeichnet, dass** die mineralische Säure ausgewählt ist aus der Gruppe bestehend aus Salzsäure, Salpetersäure, Schwefelsäure, Flußsäure oder Mischungen hiervon, wobei die mineralische Säure bevorzugt eine Konzentration von 1,5 bis 6,0 mol/l aufweist.
- 30 12. Verfahren nach einem der vorhergehenden Ansprüche, **dadurch gekennzeichnet, dass** im in Schritt d) abgetrennten flüssigen Prozessmedium enthaltene Feststoffen aus dem Prozessmedium abgetrennt werden, insbesondere durch Filtration, Zentrifugation, Ultrazentrifugation, Sedimentation oder eine Kombination der genannten Maßnahmen, besonders bevorzugt durch Filtration mittels eines Mikrofilters mit einer Porenweite von 0,45 - 5 µm, bevorzugt 0,5 - 1 µm, wobei vorzugsweise die abgetrennten Feststoffe nach der Behandlung mit Säure mit Wasser in einem Waschschrift gewaschen werden, wobei vorzugsweise das abgetrennte flüssige Prozessmedium und das beim Waschschrift anfallende Wasser vereinigt und nach einer Reinigung durch Elektrodialyse mittels einer Elektrodialysevorrichtung bestehend aus Elektrodenspülkreislauf, Konzentratkreislauf und Diluatkreislauf erneut als flüssiges Prozessmedium in einem Verfahren gemäß einem der vorhergehenden Ansprüche verwendet werden, wobei vorzugsweise bei der Elektrodialyse Kationen- und Anionenaustauschermembranen zur Abtrennung gelöster Salze und gelöster Radionuklide, insbesondere Co-60, Cs-137, Sr-90, Eu-154, Ba-144, Am-241 und/oder Pu-241 verwendet werden, wobei die Radionuklide im Konzentratkreislauf angereichert werden.
- 35 40 13. Verfahren nach einem der vorhergehenden Ansprüche, **dadurch gekennzeichnet, dass** die partielle oder vollständige Abtrennung radioaktiver Nuklide gemäß Schritt f) mittels Elektrodialyse erfolgt und/oder dass in Schritt f) Konzentrat anfällt, das durch Einengung und Fällung hydrolysierbarer Metalle aufgearbeitet wird.
- 45 14. Verfahren nach einem der Ansprüche 13 bis 14, **dadurch gekennzeichnet, dass** die Feststoffe mit Zement vermengt und nach Aktivierung des Zementes mit Wasser verfestigt werden, vorzugsweise vor Verfestigung weiter die gefällten hydrolysierbaren Metalle gemäß Anspruch 21 zugegeben werden, wobei vorzugsweise, bezogen auf die Trockenmasse der Feststoffe oder auf die Trockenmasse der Feststoffe und der gefällten hydrolysierbaren Metalle, 5 -15 Gew.-% Zement und Wasser mit einem bevorzugten Wasser-Zement-Wert von 0,4 - 0,8 zugegeben werden.
- 50 15. Verfahren nach einem der vorhergehenden Ansprüche, **dadurch gekennzeichnet, dass** der Reaktor aus einem elektrischen Isolator, insbesondere einem elektrisch nicht leitenden Kunststoff gebildet ist.

Fig. 1

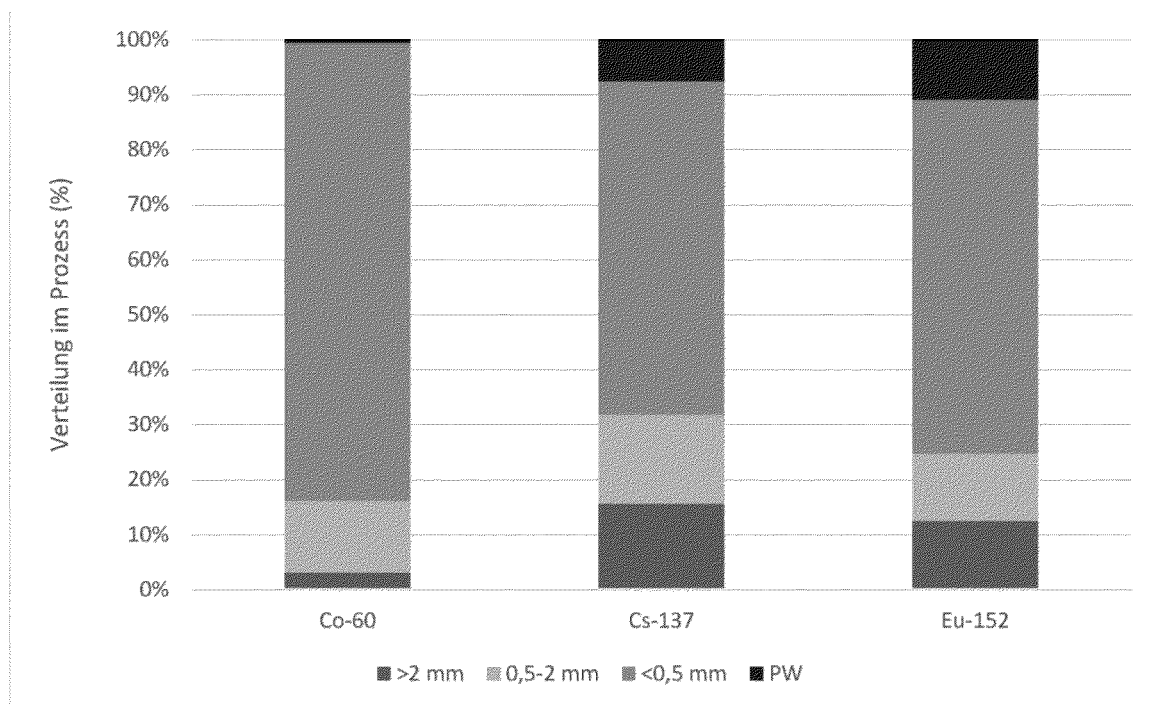


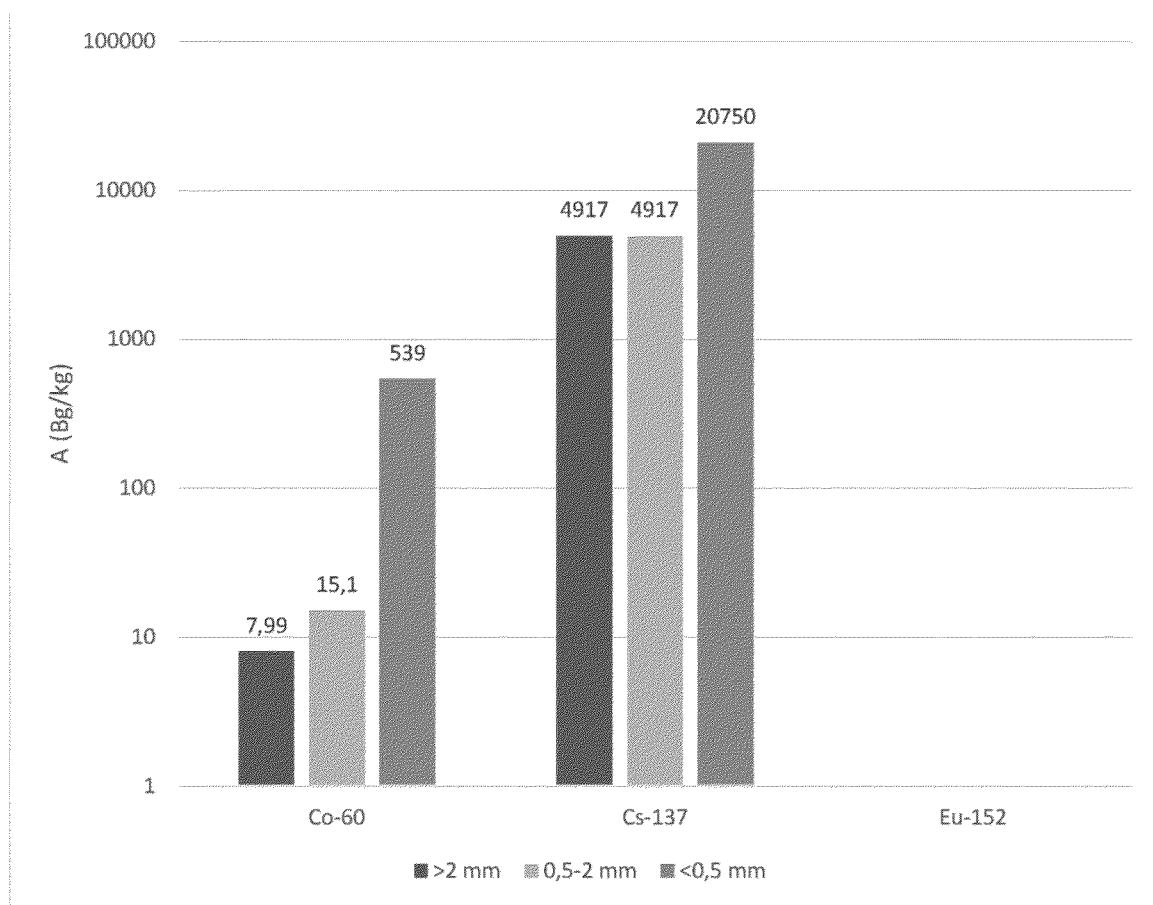
Fig. 2

Fig. 3

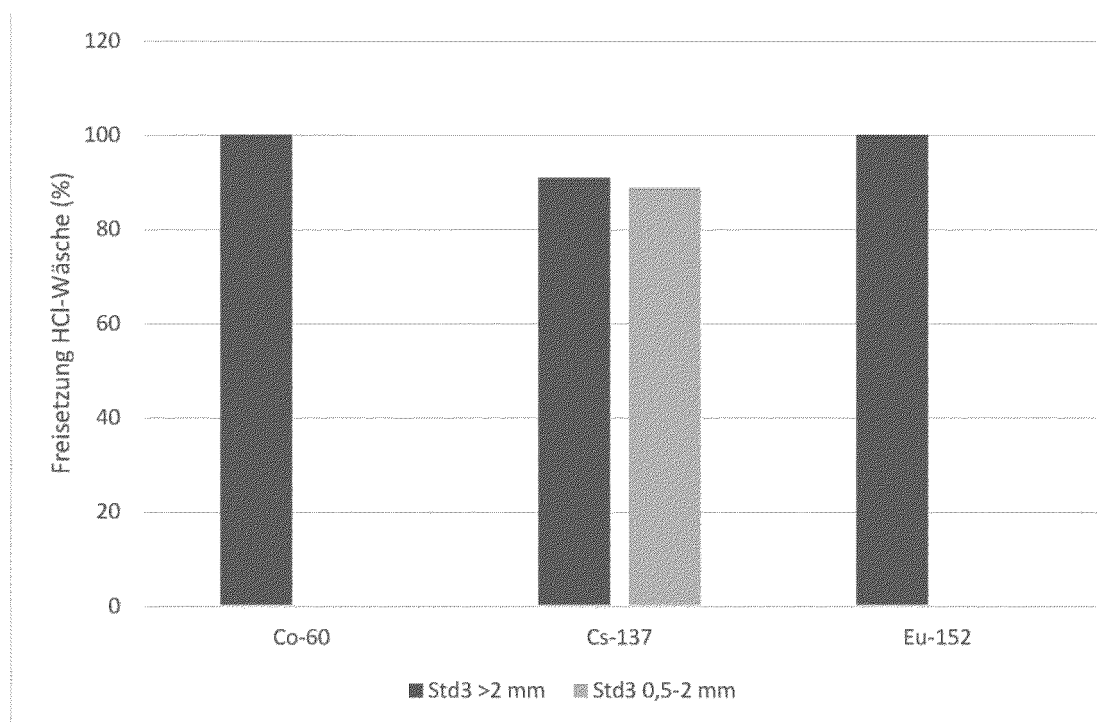


Fig. 4

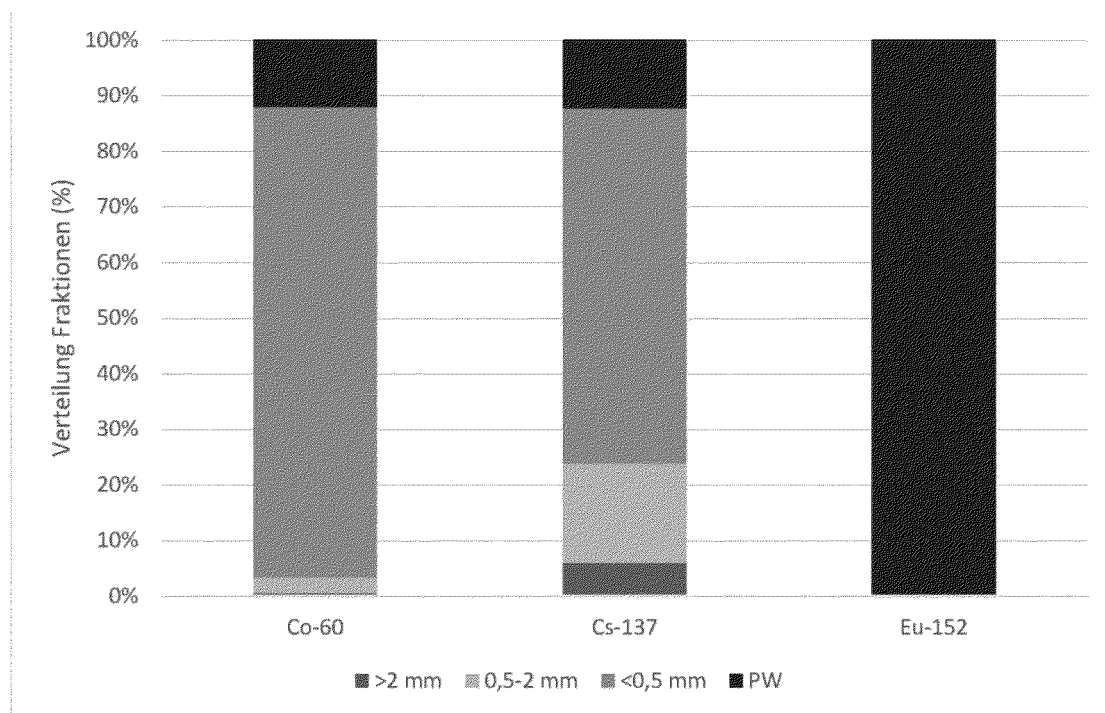


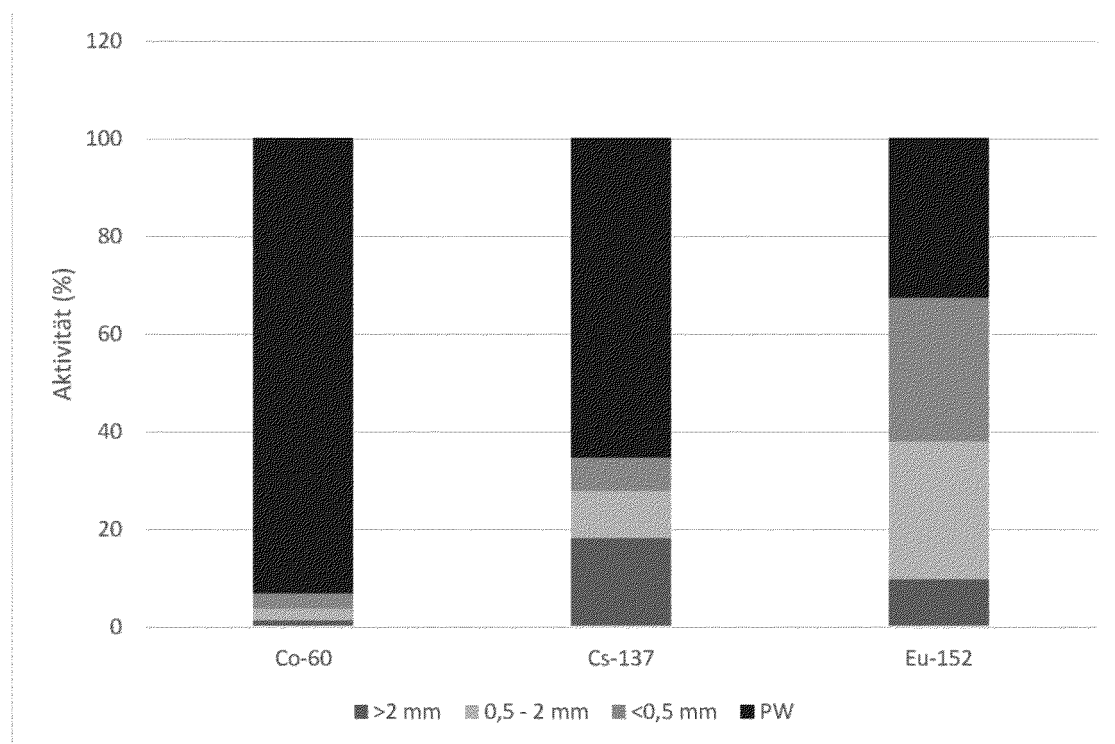
Fig. 5

Fig. 6



Fig. 7

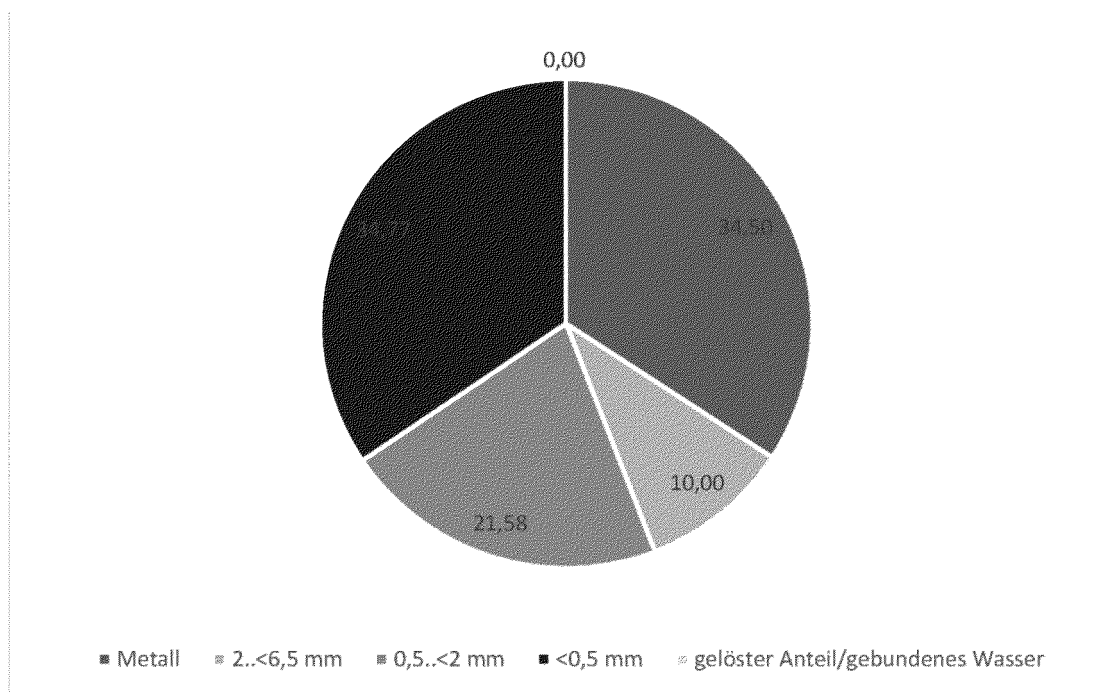
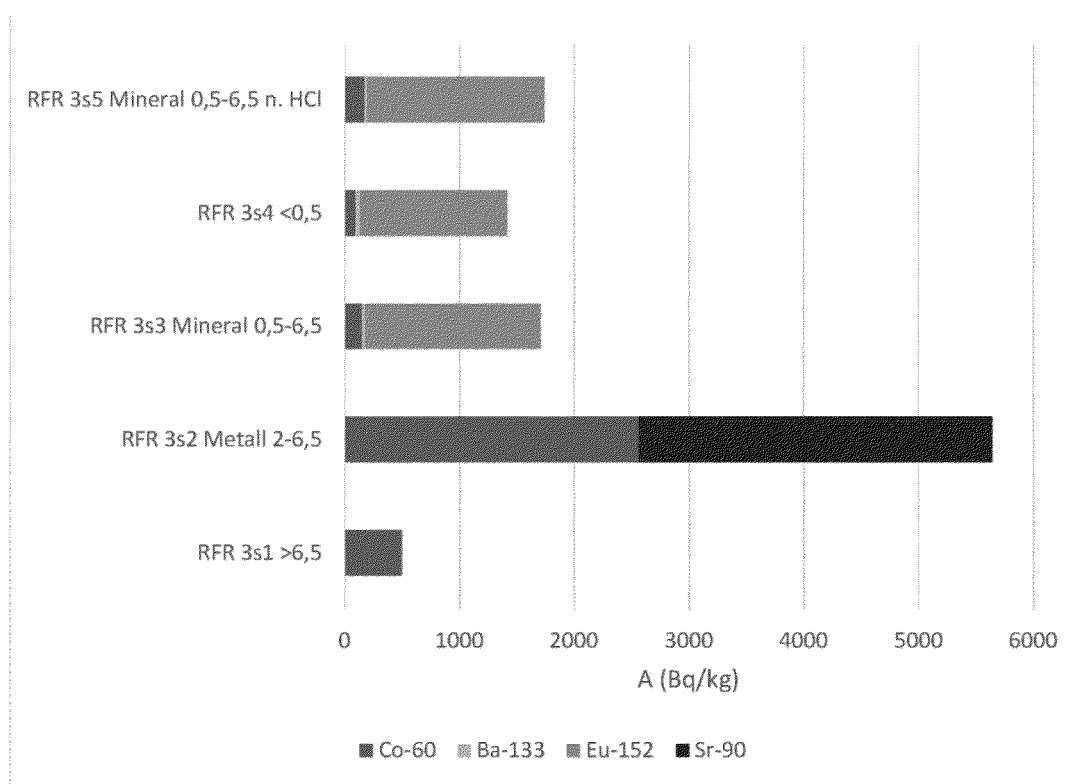


Fig. 8



EUROPÄISCHER RECHERCHENBERICHT

Nummer der Anmeldung

EP 24 19 6710

5

10

15

20

25

30

35

40

45

50

55

1

EPO FORM 1503 03.82 (P04C03)

EINSCHLÄGIGE DOKUMENTE			
Kategorie	Kennzeichnung des Dokuments mit Angabe, soweit erforderlich, der maßgeblichen Teile	Betrifft Anspruch	KLASSIFIKATION DER ANMELDUNG (IPC)
Y	JP 2017 110972 A (TAIHEIYO CONSULTANT:KK; UNIV KUMAMOTO) 22. Juni 2017 (2017-06-22) * Absätze [0033] - [0041]; Anspruch 1; Abbildungen 1, 2 *	1-15	INV. G21F9/10 B02C19/18 G21F9/30
Y	JP 2012 229984 A (SHIMIZU CONSTRUCTION CO LTD) 22. November 2012 (2012-11-22) * Absätze [0011], [0021], [0030]; Anspruch 1 *	1-15	
A	DE 195 34 232 A1 (KARLSRUHE FORSCHZENT [DE]) 20. März 1997 (1997-03-20) * Spalte 6, Zeilen 43-59; Abbildungen 5, 6 *	1-15	
			RECHERCHIERTE SACHGEBIETE (IPC)
			B02C G21F
Der vorliegende Recherchenbericht wurde für alle Patentansprüche erstellt			
Recherchenort München		Abschlußdatum der Recherche 10. Januar 2025	Prüfer Sewtz, Michael
KATEGORIE DER GENANNTEN DOKUMENTE X : von besonderer Bedeutung allein betrachtet Y : von besonderer Bedeutung in Verbindung mit einer anderen Veröffentlichung derselben Kategorie A : technologischer Hintergrund O : mündliche Offenbarung P : Zwischenliteratur		T : der Erfindung zugrunde liegende Theorien oder Grundsätze E : älteres Patentdokument, das jedoch erst am oder nach dem Anmeldedatum veröffentlicht worden ist D : in der Anmeldung angeführtes Dokument L : aus anderen Gründen angeführtes Dokument & : Mitglied der gleichen Patentfamilie, übereinstimmendes Dokument	

ANHANG ZUM EUROPÄISCHEN RECHERCHENBERICHT ÜBER DIE EUROPÄISCHE PATENTANMELDUNG NR.

EP 24 19 6710

5 In diesem Anhang sind die Mitglieder der Patentfamilien der im obengenannten europäischen Recherchenbericht angeführten Patentedokumente angegeben.
Die Angaben über die Familienmitglieder entsprechen dem Stand der Datei des Europäischen Patentamts am
Diese Angaben dienen nur zur Unterrichtung und erfolgen ohne Gewähr.

10-01-2025

Im Recherchenbericht angeführtes Patentedokument	Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
JP 2017110972 A	22-06-2017	JP 6789597 B2	25-11-2020
		JP 2017110972 A	22-06-2017
-----	-----	-----	-----
JP 2012229984 A	22-11-2012	JP 5794523 B2	14-10-2015
		JP 2012229984 A	22-11-2012
-----	-----	-----	-----
DE 19534232 A1	20-03-1997	AU 6924496 A	01-04-1997
		DE 19534232 A1	20-03-1997
		EP 0850107 A1	01-07-1998
		JP H0975769 A	25-03-1997
		WO 9710058 A1	20-03-1997
-----	-----	-----	-----

Für nähere Einzelheiten zu diesem Anhang : siehe Amtsblatt des Europäischen Patentamts, Nr.12/82

IN DER BESCHREIBUNG AUFGEFÜHRTE DOKUMENTE

Diese Liste der vom Anmelder aufgeführten Dokumente wurde ausschließlich zur Information des Lesers aufgenommen und ist nicht Bestandteil des europäischen Patentdokumentes. Sie wurde mit größter Sorgfalt zusammengestellt; das EPA übernimmt jedoch keinerlei Haftung für etwaige Fehler oder Auslassungen.

In der Beschreibung aufgeführte Nicht-Patentliteratur

- **FRIEDRICH, H. ; J, VIEHWEGER.** NEA/RWM/R(2011) - The NEA Co-Operative Programme on Decommissioning, Decontamination and Demolition of Concrete Structures. K. KONTEC 2021, *Proceedings* [0005]
- **CHANYOUNG KIM ; SUNGYEOL CHOI ; MYOUNG-SU SHIN.** Review-Electro-Kinetic Decontamination of Radioactive Concrete Waste from Nuclear Power Plants. *J. Electrochem. Soc.*, 2018, vol. 165, E330 [0006]
- **ANGKYO OH.** Feasibility study on the volume reduction of radioactive concrete wastes using thermomechanical and chemical sequential process. *Journal of Environmental Chemical Engineering*, August 2021, vol. 9 (4), 105742 [0007]