

51

Int. Cl. 2:

G 21 C 19/48

19 BUNDESREPUBLIK DEUTSCHLAND



DT 16 67 851 B 2

11

Auslegeschrift 16 67 851

21

Aktenzeichen: P 16 67 851.6-41

22

Anmeldetag: 1. 2. 68

43

Offenlegungstag: 11. 3. 71

44

Bekanntmachungstag: 13. 1. 77

30

Unionspriorität:

32 33 31

54

Bezeichnung: Verfahren und Vorrichtung zur trockenen Aufarbeitung von keramischen Urandioxid-Kernbrennstoff-Schrotten

71

Anmelder: Nukem GmbH, 6450 Hanau

72

Erfinder: Pirk, Hans, Dipl.-Ing., 6451 Dörnigheim; Roepenack, Horst, Dipl.-Ing., 6451 Bruchköbel; Göldner, Uwe, 6451 Wolfgang

56

Für die Beurteilung der Patentfähigkeit in Betracht gezogene Druckschriften:
DT-AS 11 70 919

DT 16 67 851 B 2

INIS

2. EX.

DE 7705947

1.77 609 582/14

9-783

Patentansprüche:

1. Verfahren zur trockenen Aufarbeitung von keramischen Urandioxid-Kernbrennstoffschrotten durch Oxydation bei 350–500°C in Luftatmosphäre zu sehr feinteiligem, reinem U_3O_8 -Pulver, das ohne Qualitätseinbuße bei der Herstellung entsprechender Kernbrennstoff-Formkörper bis zu 20% dem Urandioxidpulver zugesetzt werden kann, dadurch gekennzeichnet, daß während des Oxydationsvorganges eine vibrierende Siebung stattfindet.

2. Vorrichtung zur trockenen Aufarbeitung von keramischen Urandioxid-Kernbrennstoff-Schrotten nach Anspruch 1, bestehend aus einem Oxydationsofen und einem darin senkrecht stehenden Reaktionsgefäß, dadurch gekennzeichnet, daß im Reaktionsgefäß (2) mehrere vibrierende Siebroste (3) eingebaut sind.

Bei der Herstellung von keramischen Sinterkörpern aus Urandioxid für die Verwendung als Kernbrennstoff in Reaktoren fallen bei den einzelnen Fertigungsschritten unterschiedliche Mengen verschiedenartiger Schrotte an.

Man rechnet dabei mit einem Schrottanfall von etwa bis zu 10% der eingesetzten Oxidmenge, der als Grünlingsschrott beim Pressen des Urandioxid-Pulvers, als gesinterter Pelletschrott beim Sintern und Schleifen und als Schleifschlamm beim Rundschleifen der Sinterpellets auf Durchmesser toleranz anfällt.

Diese verschiedenartigen Schrotte wurden bisher meist in aufwendigen naßchemischen Verfahren aufgearbeitet durch Verflühen, Auflösen in HNO_3 zu Uranyl nitrat, dessen Flüssig-Flüssig-Extraktion, Ausfällung des Urans, Filtration und Reduktion zu UO_2 . Besonders bei der Aufarbeitung von Schrotten mit höherem Gehalt an dem spaltbaren Uranisotop U 235 – kurz »angereichertes Uran« – führt dieser vielstufige Prozeß zu erheblichen Kosten, da er im Chargenverfahren mit sicheren Mengen unter erheblichem administrativen Aufwand und relativ hohen Verlustquoten durchgeführt wird.

Die bisherigen Bemühungen zur trockenen Schrottaufarbeitung betrafen vor allem eine Feinstvermahlung des Grünlings- und Sinterschrottes. Dieses Verfahren ist jedoch ebenfalls recht aufwendig, da ein dreistufiger Mahlprozeß mit nachgeschalteter Absiebung <20 bis 30 μ m erforderlich ist, um zu einem Pulver zu gelangen, das nur annähernd den Qualitätsansprüchen bei der Sinterung genügt. Neben der noch ungenügenden Wirtschaftlichkeit dieses Verfahrens sind die wesentlichen Nachteile in einer Verminderung der Oberflächenqualität und der Reinheit der Sinterkörper zu sehen, da bei dem dreistufigen Mahlprozeß unvermeidlich erhebliche Mengen an Eisen, Chrom und Nickel durch Abrieb eingebracht werden.

Es ist auch schon vorgeschlagen worden, bestrahlte Urandioxid-Reaktorbrennstoffkörper aufzuarbeiten und zu pulverisieren, indem man die entsprechenden Pellets in Luftsauerstoff bei 300–500°C oxydiert und in U_3O_8 -Pulver überführt und das so gewonnene Pulver zu UO_2 reduziert (DT-AS 11 70 919). Dieses Verfahren hat den Nachteil, daß die Oxydation sehr langsam vor

sich geht und grobe U_3O_8 -Pulver erhalten werden, die man bei der Fertigung von Urandioxid-Brennstoff-Pellets nicht direkt wieder dem UO_2 zusetzen kann, da solche Pellets eine inhomogene Struktur mit großen Poren aufweisen, die für das Brennstoffverhalten im Reaktor schädlich sind.

Es war daher Aufgabe der vorliegenden Erfindung, ein Verfahren zur trockenen Aufarbeitung von keramischen Urandioxid-Kernbrennstoffschrotten zu finden, das ein sehr feinteiliges, reines U_3O_8 -Pulver liefert, das man ohne Qualitätseinbuße und Nachteile im Reaktorverhalten bei der Herstellung entsprechender Kernbrennstoff-Formkörper bis zu 20% dem Urandioxidpulver zusetzen kann.

Diese Aufgabe wurde erfindungsgemäß dadurch gelöst, daß während des Oxydationsvorganges eine vibrierende Siebung stattfindet. Mit dem sehr einfachen und wirtschaftlichen erfindungsgemäßen Verfahren lassen sich die genannten Schwierigkeiten und Nachteile überwinden.

Der besondere Vorteil des erfindungsgemäßen Verfahrens besteht darin, daß von den so erhaltenen Oxidpulvern (U_3O_8) unabhängig von der Art des Schrottes, bis zu 20 Gew.-% dem sinterfähigen UO_2 -Pulver zugegeben werden können, ohne die Verarbeitung der Pulvermischung durch Pressen, Sintern und Schleifen und die Produktqualität zu beeinflussen.

Zusammengefaßt bietet das erfindungsgemäße Verfahren somit folgende Vorteile:

1. Es gestattet, alle Schrottarten (Preßlinge, Sinterkörper, Schleifschlamm) nach einem einfachen und einheitlichen Verfahren in reine, feinteilige U_3O_8 -Pulver zu überführen.
2. Das Verfahren kann direkt in den jeweiligen Fertigungsprozeß eingebaut werden, wodurch eine sofortige Wiederverarbeitung des Schrottes ermöglicht wird.
3. Das Aufarbeitungsverfahren gestattet es, die Schrottpulver in den oxidkeramischen Fertigungsprozeß direkt zurückzuführen, ohne daß die Verfahrensparameter beim Pressen, Sintern und Schleifen geändert werden müssen.
4. Die Qualität der erzeugten U_3O_8 -Pulver gestattet es, bis zu maximal 20 Gew.-% dem UO_2 -Ausgangspulver zuzugeben.

Das erfindungsgemäße Verfahren soll anhand folgenden Beispiels näher erläutert werden:

Beispiel 1

In der Abbildung 1 ist eine zur Durchführung des Verfahrens dienende Vorrichtung dargestellt. Diese besteht aus einem Oxydationsofen (1) mit einem senkrecht stehenden Reaktionsgefäß (2) aus korrosionsbeständigem Stahl von 200 mm Durchmesser und 1000 mm Höhe. In dem Reaktionsgefäß sind vibrierende Siebroste (3) eingebaut. Unterhalb des Reaktionsgefäßes ist ein Rüttelsieb (4) angeordnet, aus dem das feinteilige Pulver in eine Auffangkanne (8) fällt, die auf einer Waage (9) steht. Das grobkörnige Material fällt von der Oberfläche des Siebes in eine zweite Auffangkanne (10). Der Vibrationsvorgang wird durch einen Rüttelantrieb (11) ausgelöst.

In dieser Vorrichtung wurden stündlich 5 kg UO_2 -Schrott, bestehend aus Preßlingen, Sinterkörpern

und Schleifschlamm, bei einer Temperatur von 440°C im Luftstrom oxydiert. Das durch den untersten Siebrast fallende, feinteilige U_3O_8 -Pulver wurde auf dem nachgeschalteten Schwingsieb kontinuierlich auf $<150 \mu m$ abgesiebt. Jeweils 10 kg dieses U_3O_8 -Pulvers wurden anschließend mit 90 kg sinterfähigem UO_2 -Pulver homogen vermischt.

Zur Durchführung der Mischung diente eine Vorrichtung nach Abbildung 2. Diese besteht aus einem geometrisch sicheren Mischbunker (12). Der Mischvorgang erfolgt hierbei nach dem Wirbelschichtprinzip, indem durch einen konischen Ausstromboden (13) kurzzeitig Luft eingeblasen und die Pulverschüttung aufgewirbelt wird, wodurch in wenigen Minuten eine

gleichmäßige Vermischung der beiden Pulver erreicht wird. Der vom Wirbelgas mitgeführte Uranoxidstaub wird über einen Zyklon (14) einem Filteraufsatz (15) zugeleitet und in diesem an Sintermetallfiltern (16) abgeschieden. Zur Messung des Inhalts des Mischbunkers (12), der gleichzeitig als Vorratsbehälter für das Beschicken der Presse dient, ist eine Federwaage (17) vorgesehen.

Die so erzeugte Pulvermischung wurde auf bekannte Weise zu UO_2 -Sinterkörpern verarbeitet. Ein Unterschied in Qualität und Ausbringung zwischen diesem Pulver und einem frischen sinterfähigen UO_2 -Pulver wurde nicht festgestellt.

Hierzu 2 Blatt Zeichnungen

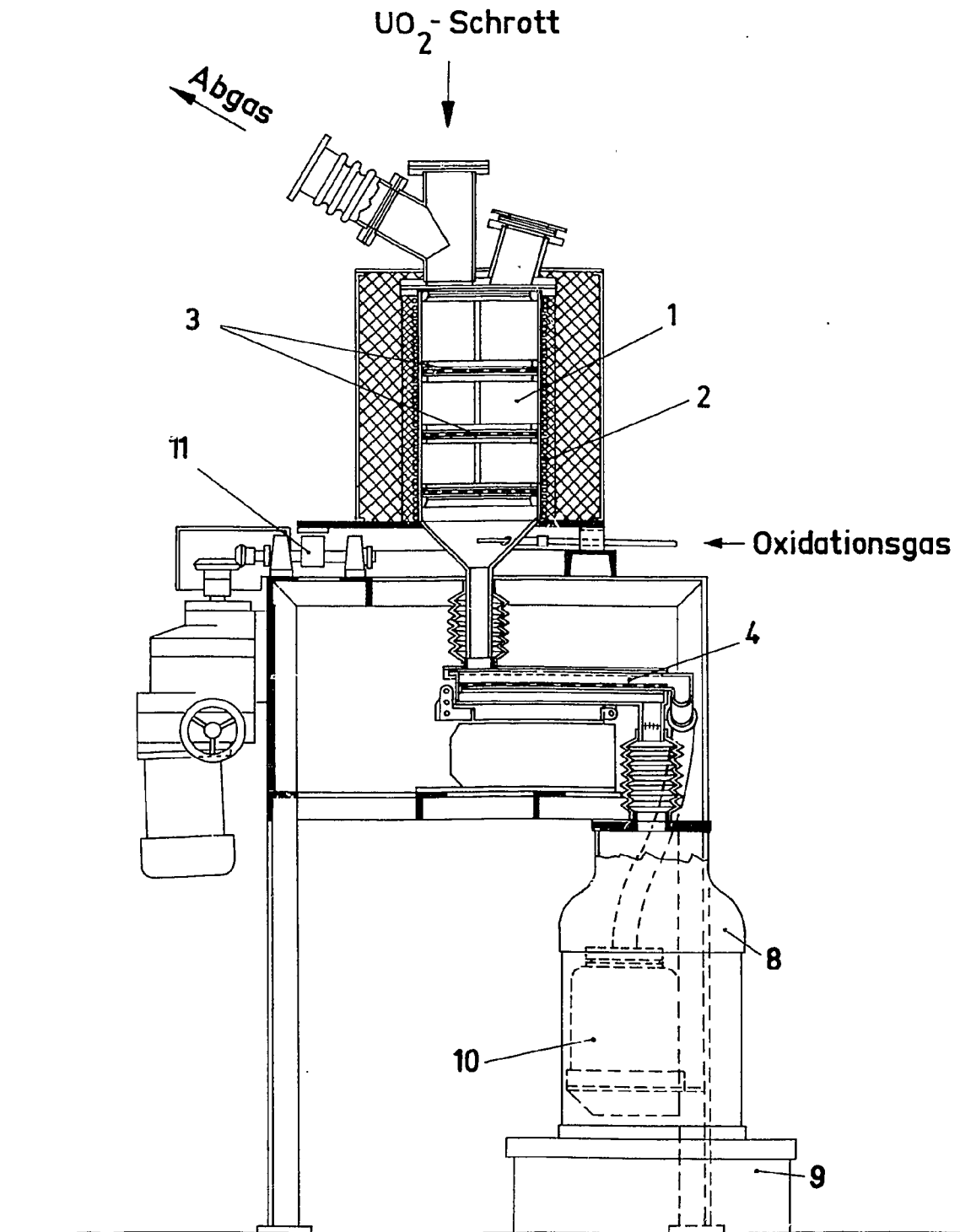


Abb.1

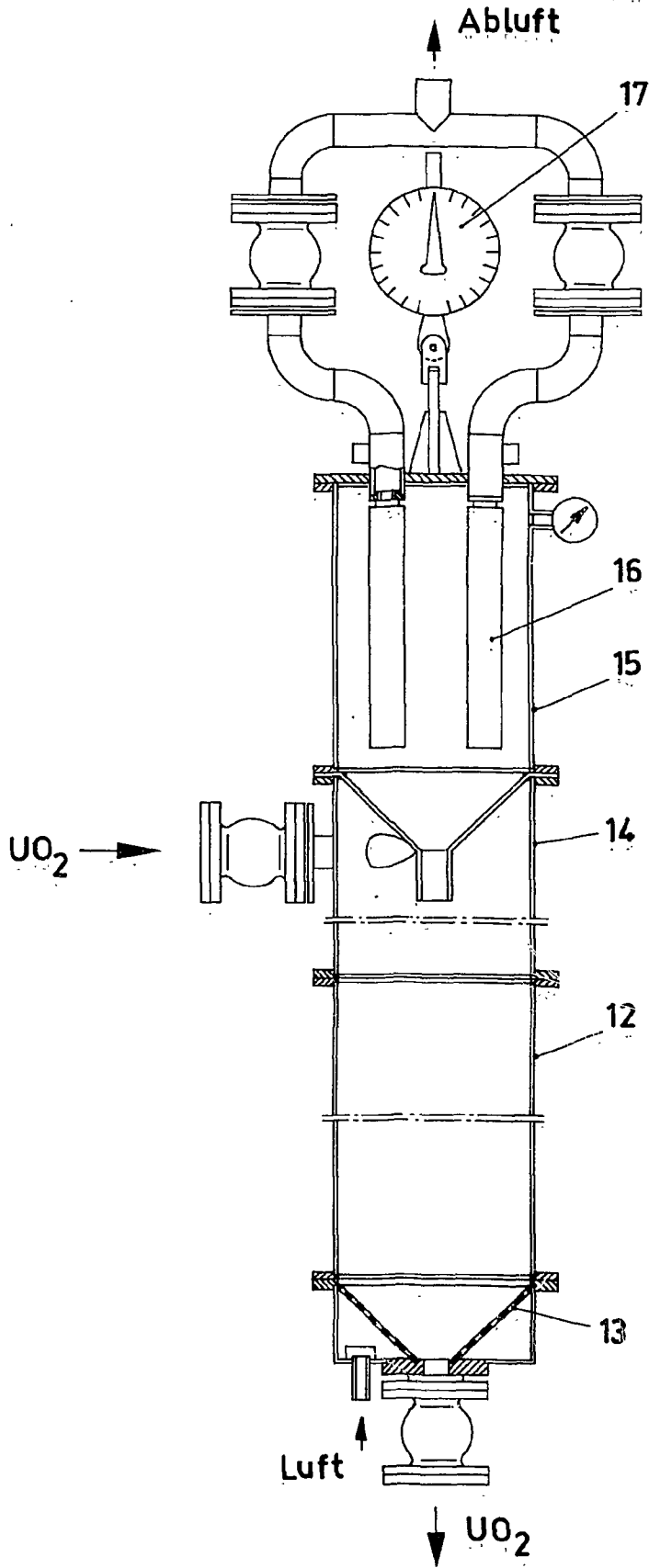


Abb. 2