

51

Int. Cl. 3:

**G 21 C 19/46**

19 **BUNDESREPUBLIK DEUTSCHLAND**

C 01 B 23/00



11

# **Auslegeschrift 26 02 897**

21

Aktenzeichen: P 26 02 897.7-41

22

Anmeldetag: 27. 1. 76

43

Offenlegungstag: 28. 7. 77

44

Bekanntmachungstag: 23. 10. 80

31

Unionspriorität:

37 33 31

54

Bezeichnung: Verfahren zum Abtrennen von Spaltdelgasen aus Abgasen einer Wiederaufarbeitungsanlage für Kernbrennmaterial

71

Anmelder: Kernforschungsanlage Jülich GmbH, 5170 Jülich

72

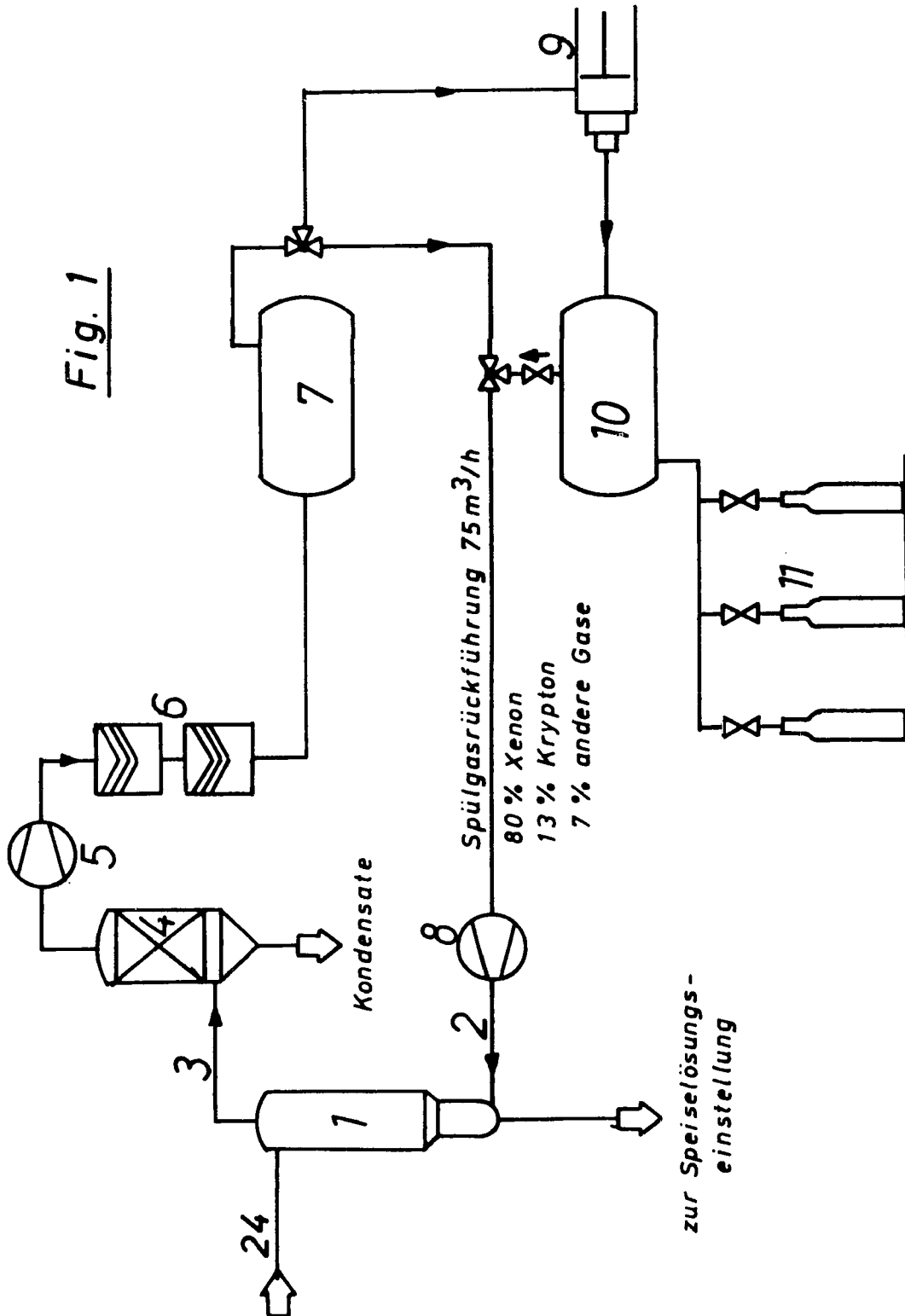
Erfinder: Schnez, Harald, Dipl.-Ing., 6701 Waldsee

56

Für die Beurteilung der Patentfähigkeit in Betracht gezogene Druckschriften:  
Nichts ermittelt

**DE 26 02 897 B 2**

Fig. 1



## Patentansprüche:

1. Verfahren zum Abtrennen von Spaltdelgasen aus Abgasen einer Wiederaufarbeitungsanlage für Kernbrennstoffmaterial, bei dem das Kernbrennstoffmaterial nach Zerkleinerung der Kernbrennstoffelemente und nach Abbrand graphitischer Bestandteile chemisch gelöst wird, wobei die Lösung von einem Spülgas durchströmt wird, das nach Durchdringen der Lösung gemeinsam mit den aus den Kernbrennstoffmaterialien entweichenden Spaltdelgasen als Abgas einer Säuregewinnungsanlage zugeführt wird und nach Filterung komprimiert und bei erhöhtem Druck abgelagert wird, dadurch gekennzeichnet, daß ein Teil der gefilterten Spaltdelgase als Spülgas in den chemischen Auflöser zurückgeführt wird.

2. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß vor Rückführung der gefilterten Spaltdelgase in den chemischen Auflöser Krypton abgetrennt wird.

3. Verfahren nach Anspruch 2, dadurch gekennzeichnet, daß das gefilterte Spaltdelgas komprimiert, gekühlt und rektifiziert wird, wobei das als Dampf der Rektifiziersäule entnommene Kryptongemisch unter erhöhtem Druck abgelagert und der als Flüssigkeit anfallende, Xenon enthaltende Gasanteil zumindest teilweise zum Auflöser zurückgeführt wird.

Die Erfindung betrifft ein Verfahren zur Abtrennung von Spaltdelgasen aus Abgasen einer Wiederaufarbeitungsanlage für Kernbrennstoffmaterial, bei dem das Kernbrennstoffmaterial nach Zerkleinerung der Kernbrennstoffelemente und nach Abbrand graphitischer Bestandteile chemisch gelöst wird, wobei die Lösung von einem Spülgas durchströmt wird, das nach Durchdringen der Lösung gemeinsam mit den aus den Kernbrennstoffmaterialien entweichenden Spaltdelgasen als Abgas einer Säurerückgewinnungsanlage zugeführt wird und nach Filterung komprimiert und bei erhöhtem Druck abgelagert wird.

Bei der Wiederaufarbeitung von Kernbrennstoffmaterialien werden die während des Einsatzes der Kernbrennstoffelemente im Reaktorcore von Kernreaktoren entstandenen Spaltdelgase in der sogenannten »head end«-Phase freigesetzt. Bestandteile der Spaltdelgase sind das radioaktive Krypton-85, weitere Kryptonisotope und Xenon. Die Spaltdelgase werden in den Spülgasstrom aufgenommen, der die chemischen Auflöser durchsetzt. Das Abgas der Auflöser darf daher wegen seiner radioaktiven, lange Halbwertszeiten aufweisenden Bestandteile nicht unmittelbar in die Umgebung abgeblasen werden.

Bekannt ist es, die radioaktiven Anteile der Spaltdelgase vom Abgas abzutrennen. Nach einem aus einer Veröffentlichung von Whatley, M. E., »Calculations on the performance of the KALC-prozess«, ORNL — 4859, 1973 bekannten Verfahren werden die Spaltdelgase mittels Absorption an geeignete Lösungsmittel aus dem Abgasstrom ausgewaschen. Zum Stand der Technik gehört es auch, die Spaltdelgas-Abtrennung mittels Tieftemperaturrektifikation durchzuführen (vgl. Beaujean, H. et al, »Gaseous radioactive emissions from reprocessing plants and their possible

reduction«, IAEA/SM-172/17, 1973). Auch wurde vorgeschlagen, Helium in Verbindung mit einem geschlossenen chemischen Auflöser als Spülgas zu verwenden und dieses im Kreislauf zu führen (vgl. DE-AS 24 26 764). Die Spaltdelgase werden bei dem zuletzt genannten Verfahren vor Rückführung des Heliums aus dem Abgas ausgefroren. Alle diese vorgenannten Verfahren haben jedoch den Nachteil, daß sie einen verhältnismäßig hohen Kostenaufwand erfordern. Die für die Durchführung der Verfahren notwendigen Anlagen sind technisch verhältnismäßig aufwendig. Außerdem werden zur Reinigung der Abgase zusätzliche Medien benötigt, wie z. B. als Waschmittel Freon oder als Spülgas Helium.

Aufgabe der Erfindung ist es, ein Verfahren zur Spaltdelgasabtrennung zu schaffen, das die Nachteile der bisher bekannten Verfahren vermeidet und das auf einfache Weise besonders wirtschaftlich durchführbar ist. Die effektiv anfallende Abgasmenge soll so gering wie möglich gehalten werden, um damit sowohl die Anlagengröße, deren Kosten und die erreichbaren Abtrennfaktoren günstig zu beeinflussen.

Diese Aufgabe wird bei einem Verfahren der oben angegebenen Art gemäß der Erfindung dadurch gelöst, daß ein Teil der gefilterten Spaltdelgase als Spülgas in den chemischen Auflöser zurückgeführt wird. Die im Auflöser freigesetzten Spaltdelgase werden in an sich bekannter Weise gereinigt und in einem Ausgleichsbehälter gesammelt. Von dort wird die als Spülgas benötigte Spaltdelgasmenge in den Auflöser zurückgeführt, so daß ein Teil der Spaltdelgasmenge im Kreislauf strömt. Die über für den Kreislauf benötigte Spaltgasmenge hinausgehenden Spaltgasanteile werden aus dem Kreislauf abgetrennt, komprimiert und in einem Lagerbehälter zugeführt, aus dem sie auf Gasflaschen gezogen werden oder nach Bedarf in den Gaskreislauf zurückgeführt werden.

Die Vorteile des erfindungsgemäßen Verfahrens liegen neben seiner Einfachheit und Wirtschaftlichkeit darin, daß der Spülgaskreislauf nur mit bei der Auflösung der Kernbrennstoffe selbst entstehenden Gasen betrieben wird und daher leicht zu regeln ist. Vorteilhaft ist ferner, daß explosive Gasgemische infolge Bildung von Ozon oder Kohlenwasserstoff-Sauerstoff-Gemischen nicht entstehen können. Ein erheblicher Vorzug des erfindungsgemäßen Verfahrens besteht darin, daß in dem mit den gewonnenen Spaltdelgasen betriebenen Spülgaskreislauf keine korrosiven Gase auftreten und das Spülgas keine chemischen Reaktionen auszulösen vermag.

In weiterer Ausgestaltung des erfindungsgemäßen Verfahrens ist vorgesehen, daß vor der Rückführung der gefilterten Spaltdelgase Krypton abgetrennt wird. Das geschieht in vorteilhafter Weise dadurch, daß das gefilterte Spaltdelgas komprimiert, gekühlt und rektifiziert wird, wobei das als Dampf der Rektifiziersäule entnommene Kryptongemisch unter erhöhtem Druck abgelagert und der als Flüssigkeit anfallende, Xenon enthaltende Gasanteil zumindest teilweise zum Auflöser zurückgeführt wird.

Ausführungsbeispiele des erfindungsgemäßen Verfahrens und weitere vorteilhafte Ausgestaltungen der Erfindung werden anhand von Anlagen zur Durchführung des Verfahrens erläutert, die in der Zeichnung schematisch dargestellt sind. Es zeigt im einzelnen

Fig. 1 Fließbild einer Wiederaufarbeitungsanlage mit Spaltdelgasrückführung,

Fig. 2 Fließbild einer Wiederaufarbeitungsanlage mit

**Spaltdelgasrückführung und Kryptontrennung.**

Wie aus der Zeichnung ersichtlich ist, werden die Kernbrennmaterialien nach Zerkleinerung und Abbrand der Kernbrennelemente einem Auflöser 1 zugeführt, in dem sie chemisch einer Säure, wie  $\text{HNO}_3$ , aufgelöst werden. Die dabei freigesetzten Spaltdelgase verlassen zusammen mit dem dem Auflöser 1 über die Gasleitung 2 als Spülgas zugeführten Spaltdelgasanteil und anderen flüchtigen Bestandteilen als Abgas den Auflöser über die Abgasleitung 3. Die Abgase werden einer Säurerückgewinnungsanlage 4 zugeführt, in der die entstandenen Stickstoffoxide zu  $\text{HNO}_3$  rückoxidiert werden. Das restliche der Säurerückgewinnungsanlage entströmende Abgas wird von einer Gaspumpe 5 über Abgasfilter 6 in einen Ausgleichsbehälter 7 gefördert. Vom Ausgleichsbehälter 7 wird das Spaltdelgas von einer Gaspumpe 8 angesaugt und strömt über die Gasleitung 2 in den Auflöser 1 zurück, wobei durch ein in der Zeichnung nicht dargestelltes Regelorgan sichergestellt wird, daß die dem Auflöser 1 zugeführte Spaltdelgasmenge konstant bleibt. Überschüssige Spaltdelgasmengen werden mittels eines Kompressors 9 komprimiert und einem Zwischenbehälter 10 zugeführt. Aus diesem wird das Abgas in Gasflaschen 11 abgefüllt oder bei Bedarf zurück in den Spaltdelgaskreislauf geleitet.

Im Ausführungsbeispiel nach Fig. 2 wird vom gefilterten Spaltdelgas vor dessen Rückführung in den Auflöser 1 der Kryptonanteil abgetrennt. Zu diesem Zweck wird das Abgas nach der Filterung von einem Kompressor 12 komprimiert und mit Stickstoff 13 bis zur teilweisen Verflüssigung gekühlt. In einer Rektifiziersäule 14 erfolgt dann die Abtrennung des Kryptonanteils, der als Dampf am Kopf 15 der Rektifiziersäule abgezogen wird vom flüssig anfallenden Xenonanteil, der sich im Sumpf 16 der Rektifiziersäule sammelt. Das Kryptongemisch wird von einer Pumpe 17 einem Ausgleichsbehälter 18 zugeführt und von hier in Gasflaschen 19 abgezogen. Der das Xenon enthaltende Anteil des Abgases wird über die Rohrleitung 20 von einer Pumpe 21 in den Auflöser 1 zurückgeführt. Dieser rückgeführte Gasanteil dient gleichzeitig als Kühlmittel für das Abgas vor dessen Kompression. Er durchströmt den als Vorkühler 22 ausgebildeten Ausgleichsbehälter des Spaltdelgaskreislaufes.

Im Sumpf 16 der Rektifiziersäule 14 fällt nahezu reines Xenon an. Das im Spaltdelgaskreislauf nicht benötigte überschüssige Xenon wird über einen Bypaß 23 aus dem Spaltdelgaskreislauf entnommen und kann zur anderweitigen Verwendung in Gasflaschen gefüllt werden. Für viele Anwendungsfälle genügt der Reinheitsgrad des Xenons, der bei der Rektifikation des Abgases in der Anlage erreicht wird, für die weitere Verwendung. Eine zusätzliche Nachreinigung des Xenons ist nicht erforderlich. Das überschüssige Xenon kann aber auch in einen in Fig. 2 nicht dargestellten, Zwischenbehälter gespeichert und bei Bedarf in den Spaltdelgaskreislauf zurückgeführt werden. Zum An-

fahren der Anlage wird zweckmäßig über den Bypaß 23 als Spülgas Argon und/oder Helium zugeführt.

In der Wiederaufbereitungsanlage für Kernbrennelemente, mit kontinuierlich arbeitendem Auflöser wurden stündlich 52 kg Kernbrennmaterial aufgelöst. Dem Auflöser wurde das Kernbrennmaterial nach Zerkleinerung der Kernbrennelemente und Abbrand der graphitischen Bestandteile über eine Dosierschnecke 24 zugeführt. Um die entstehenden flüchtigen Bestandteile aus dem Auflöser zu entfernen, wurden gemäß der Erfindung als Spülgas zwischen 5 und 10  $\text{Nm}^3/\text{h}$  Spaltdelgas im Kreislauf geführt. Aus dem Kernbrennmaterial entwich im Auflöser eine Spaltdelgasmenge von 0,16 bis 0,53  $\text{Nm}^3/\text{h}$ . Zweckmäßig wurde die das Kernbrennmaterial fördernde Dosierschnecke 24 ebenfalls mit dem rückgeführten Spaltdelgas beaufschlagt.

Der Ausgleichsbehälter 7 des Spaltdelgaskreislaufes, in den die Abgase nach Durchströmen der Abgasfilter 6 gelangen, ist in vorteilhafter Weise so ausgelegt, daß die mittlere Verweilzeit der Gase im Ausgleichsbehälter groß gegenüber ihrer Verweilzeit im Gaskreislauf ist, so daß kleinere Druck- und Durchsatzschwankungen leicht aufgefangen werden können, ohne daß im Spaltdelgaskreislauf an irgendeiner Stelle überhöhter Druck herrschen muß.

Große Druck- und Durchsatzschwankungen werden zweckmäßigerweise zusätzlich mit Hilfe des Zwischenbehälters 11 ausgeglichen. Der Zwischenbehälter 11 ist für einen Druck bis zu 200 bar ausgelegt. Durch ein Regelorgan werden der Spaltdelgas-Durchfluß in der Gasleitung 2 vor dem Auflöser 1 und der Spaltdelgas-Durchfluß am Ausgang des Ausgleichsbehälters 7 miteinander verglichen und auf den den technischen Erfordernissen angepaßten Durchfluß-Sollwert eingestellt. Im Ausführungsbeispiel beträgt der Durchfluß-Sollwert zwischen 5 und 10  $\text{Nm}^3/\text{h}$ . Der überschüssige Spaltdelgasanteil in einer Größenordnung zwischen 0,3 bis 0,4  $\text{Nm}^3/\text{h}$  wurde aus dem Spaltdelgaskreislauf abgetrennt und vom Zwischenbehälter 11 aus auf Druckflaschen 12 abgefüllt.

Bei einem weiteren Ausführungsbeispiel arbeitete der Auflöser 1 in der Wiederaufbereitungsanlage nach dem bekannten Purex-Prozeß in diskontinuierlichem Verfahren. Um die Dichtheit des Kreislaufes zu gewährleisten, ist der Auflöser 1 in diesem Falle mit einem in der Zeichnung nicht dargestellten, geeigneten Schleusensystem ausgerüstet, so daß die Leckagen unter 0,2  $\text{Nm}^3/\text{h}$  gehalten werden. In den Spülgaskreislauf wird auch das beim Purex-Prozeß anfallende Scherenabgas mit einbezogen, wodurch sich die Gesamtspülgasmenge im Ausführungsbeispiel auf rund 300  $\text{Nm}^3/\text{h}$  erhöht. Durch die Auflösung der Kernbrennstoffe im Auflöser entsteht nun eine Spaltdelgasmenge zwischen 0,16 und 0,99  $\text{Nm}^3/\text{h}$ . Die überschüssige Spaltdelgasmenge wird über den Bypaß 23 abgeführt und gespeichert. Sie kann bei Bedarf dem Spülgaskreislauf wieder zugeführt werden.

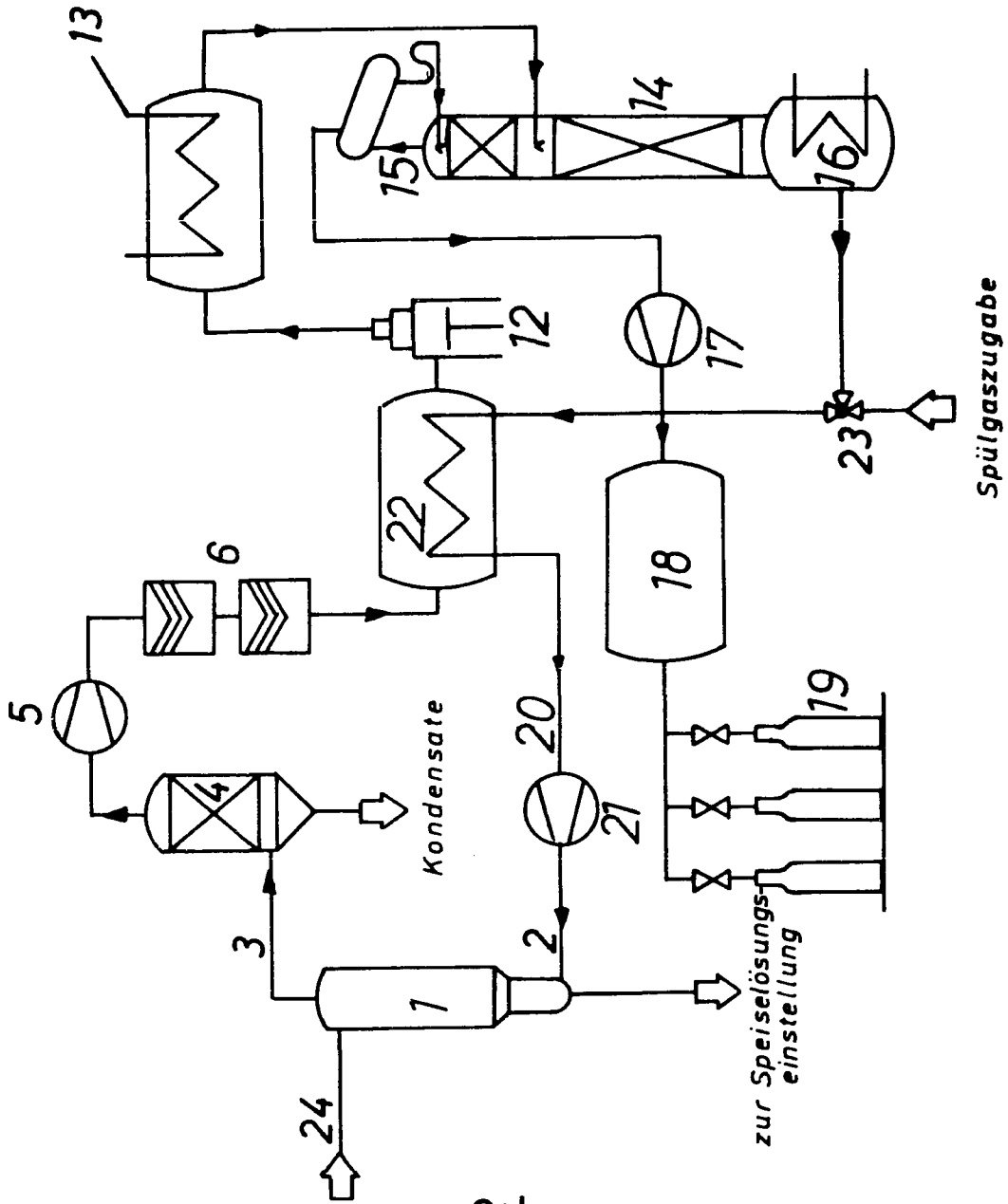


Fig. 2