

⑤ Int. Cl. 3 = Int. Cl. 2

Int. Cl. 2:

**G 21 F 9/04**

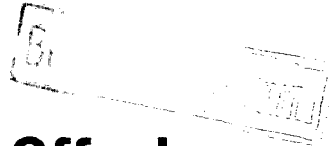
C 01 B 5/00

⑯ **BUNDESREPUBLIK DEUTSCHLAND**

**DEUTSCHES PATENTAMT**



**DE 28 44 608 A 1**



⑪

# Offenlegungsschrift **28 44 608**

⑫

Aktenzeichen: P 28 44 608.4

⑬

Anmeldetag: 13. 10. 78

⑭

Offenlegungstag: 30. 4. 80

⑳

Unionspriorität:

⑳ ㉑ ㉒

⑤④

Bezeichnung: Verfahren zum Lagern flüssiger, radioaktiver Abfallstoffe

⑦①

Anmelder: Hoechst AG, 6000 Frankfurt

⑦②

Erfinder: Hesky, Hans, Dr.-Ing., 6251 Runkel; Wunderer, Armin, Dipl.-Ing., 6238 Hofheim

**DE 28 44 608 A 1**

Patentansprüche:

- 5 1.) Verfahren zum Lagern flüssiger, radioaktiver Abfallstoffe aus der Aufarbeitung von Kernbrennstoffen, wobei gegebenenfalls Knallgas durch Radiolyse entsteht, dadurch gekennzeichnet, daß man die in den flüssigen Abfallstoffen entstehende Zerfallswärme durch Siedekühlung abführt, den dabei entstehenden Dampf kondensiert und das Kondensat in das Lager für die flüssigen Abfallstoffe zurückführt.
- 10 2.) Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß man mit dem bei der Siedekühlung entstehenden Dampf das Knallgas verdünnt.
- 15 3.) Verfahren nach Anspruch 1 und 2, dadurch gekennzeichnet, daß das Knallgas katalytisch rekombiniert wird.
- 20 4.) Verfahren nach Anspruch 3, dadurch gekennzeichnet, daß vor der Rekombination des Knallgases das Knallgas im Dampf-Knallgas-Gemisch durch eine Teilkondensation angereichert wird.
- 25 5.) Verfahren nach Anspruch 3, dadurch gekennzeichnet, daß vor der Rekombination des Knallgases das Dampf-Knallgas-Gemisch erhitzt wird.
- 30 6.) Verfahren nach Anspruch 5, dadurch gekennzeichnet, daß das Dampf-Knallgas-Gemisch durch die bei der Rekombination des Knallgases entstehende Wärme erhitzt wird.
- 35 7.) Verfahren nach Anspruch 1 und 2, dadurch gekennzeichnet, daß das Knallgas in zwei Stufen katalytisch rekombiniert wird, wobei zwischen den Stufen das Dampf-Knallgas-Gemisch teilweise kondensiert wird und mit der bei der Rekombination in der letzten Katalysatorstufe entstehenden Wärme das in die erste Stufe einströmende Gas-

HOE 78

2844608

- 2 -

HOE 78/F 217

misch erhitzt wird.

- 8.) Verfahren nach den Ansprüchen 1 bis 7, dadurch gekennzeichnet, daß die entstehende Zerfallswärme durch  
5 Siedekühlung bei vermindertem Druck abgeführt wird.

030018/0054

1010

2844608

3  
- x -

HOECHST AKTIENGESELLSCHAFT HOE 78/F217

DPh.HS/ar

Verfahren zum Lagern flüssiger, radioaktiver Abfallstoffe

Gegenstand der Erfindung ist ein Verfahren zum Lagern flüssiger, radioaktiver Abfallstoffe aus der Aufarbeitung von Kernbrennstoffen, wobei gegebenenfalls Knallgas durch Radiolyse entstehen kann.

5

Flüssige Abfallstoffe aus der Aufarbeitung von Kernbrennstoffen sind korrosiv, selbsterhitzend und radioaktiv. Bei ihrer Lagerung entsteht durch Radiolyse<sup>u. a.</sup> Wasserstoff und Sauerstoff. Es können explosions- und detonationsfähige Knallgasgemische entstehen; es wird erhebliche Wärme frei. Darüber hinaus bilden sich Sedimente.

Zum Vermeiden explosions- und detonationsfähiger Knallgasgemische werden bei den bekannten Verfahren die flüssigen radioaktiven Abfallstoffe mit Luft oder Stickstoff begast. Ein Teil der Spülgase wird dabei zum Emulgieren der Sedimente verwendet. Die sich durch den radioaktiven Zerfall bildende Wärme wird durch indirekte Kühlung über die Behälterwand und zusätzliche Wärmetauschflächen im Behälter abgeführt. Nachteilig bei den bekannten Verfahren ist, daß mit dem

030018/0054

Spülgas große Mengen radioaktiven Materials in die Atmosphäre ausgetragen werden. Das Spülgas wird zwar gefiltert, da aber keine 100 %ige Filterwirkung zu erreichen ist, ist die freigesetzte Radioaktivität eine erhebliche Umweltbelastung. Diese Umweltbelastung wächst mit zunehmender Spülgasmenge. Je größer die Spülgasmenge, desto mehr Filtermaterial muß auch entsorgt werden.

Ein weiterer Nachteil ist die indirekte Kühlung an Kühlflächen. Die Kühlflächen, insbesondere die in die Behälter hängenden Innkühler in Form von Glatt- und/oder Rippenrohren mit zahlreichen Schweißnähten sind der Korrosion durch die flüssigen Abfallstoffe ausgesetzt. Um das Risiko von Ausfällen durch Korrosionsschäden zu vermindern, werden die Behälter mit mehreren voneinander getrennten Kühlsystemen ausgerüstet, von dem jedes die volle Kühlleistung aufnehmen kann. Nachteilig bei solchen Kühlsystemen wirkt sich auch das Sedimentieren der Sedimente auf ihre Oberfläche aus, wodurch die Kühlwirkung vermindert wird und es zu unerwünschten radioaktiven und thermischen Belastungsspitzen kommen kann.

Ein weiterer Nachteil ist die Abhängigkeit von störanfälligen Energiequellen, mit deren Hilfe u. a. die zur Durchführung der bekannten Verfahren erforderlichen Pumpen und Gebläse angetrieben werden müssen.

Die Aufgabe zu vorliegender Erfindung besteht demnach darin, ein Verfahren zum Lagern flüssiger, radioaktiver Abfallstoffe zu schaffen, das die aufgezeigten Mängel nicht aufweist, bei dem insbesondere auch bei Störfällen, d. h. bei Ausfall von Pumpen und Gebläsen, eine ausreichende Kühlung sichergestellt ist, und bei dem die Abgasmenge nur ein Bruchteil der im System vorhandenen Gasmenge beträgt.

- 7 -  
5

Die Aufgabe wird erfindungsgemäß dadurch gelöst, daß man die in den flüssigen Abfallstoffen entstehende Zerfallswärme durch Siedekühlung abführt, den dabei entstehenden Dampf kondensiert, und das Kondensat in das Lager für die flüssigen Abfallstoffe zurückführt.

Siedekühlung kann durch Sieden der flüssigen Abfallstoffe und/oder des Kondensats erreicht werden. Mit dem bei der Siedekühlung entstehenden Dampf kann das durch Radiolyse entstehende Knallgasgemisch verdünnt werden. Das Knallgas selbst kann katalytisch zu Wasser rekombiniert werden. Dabei kann es zweckmäßig sein, das Knallgas vor der katalytischen Rekombination im Dampf-Knallgas-Gemisch durch Teilkondensation des Dampfes anzureichern. Das Dampf-Knallgas-Gemisch kann vor der Rekombination des Knallgases, vorzugsweise durch die bei der Rekombination entstehende Wärme, erhitzt werden. Es kann von Vorteil sein, das Knallgas in zwei Stufen katalytisch zu rekombinieren, wobei zwischen den Stufen das Dampf-Knallgas-Gemisch teilweise kondensiert wird, und mit der bei der Rekombination in der letzten Katalysator\*entstehenden Wärme das in die erste Stufe einströmende Gasgemisch erhitzt wird.

Das Verfahren hat den Vorteil, daß das den Lagerbehälter verlassende Dampfgemisch als Kondensat und gegebenenfalls als Spülgas in den Lagerbehälter zurückgeführt wird. Das Kühlsystem funktioniert völlig unabhängig von äußerer Energie. Die geringen nicht kondensierbaren Anteile des Dampf-Gasgemisches werden als Spülgas und zur Blasenrührung des Lagerbehälters zur Vermeidung von Sedimentationen benutzt. Radiolytisch entstehende Stickoxide und Salpetersäuredämpfe können, wenn gewünscht, aus dem Dampf-Gasgemisch oder vom Kondensat abgetrennt werden.

Da der Siedepunkt des Kondensats in der Regel tiefer liegt

\* stufe

als der der flüssigen Abfallstoffe, kann es vorteilhaft  
sein, lediglich durch Sieden des Kondensats zu kühlen.  
Das Hochreißen radioaktiver Tröpfchen aus den flüssigen  
Abfallstoffen in den Dampfraum des Lagerbehälters wird  
5 vermieden. Nimmt man die Wand des Lagerbehälters als  
Wärmetauschfläche, an deren Außenseite das Kondensat ver-  
dampft wird, so wird im Innenraum eine Konvektions-  
strömung erzeugt, die der Sedimentation von Feststoff-  
teilchen entgegengerichtet ist. Der durch die Kondensat-  
10 verdampfung entstehende Dampf wird als Ver-  
dünnungsgas verwendet. Die Verdampfung des Kondensats  
kann auch innerhalb der flüssigen Abfallstoffe in ent-  
sprechenden wärmeaustauschenden Einbauten vorgenommen  
werden. Da der Dampf in den Lagerbehälter münden kann,  
15 brauchen hier keine Anforderungen an die Dichtigkeit  
eines solchen Austauschsystems gestellt werden.

Die Abbildung zeigt ein Verfahrensschema in beispieleis-  
weiser Ausführung.

20

Der radioaktive, flüssige Abfallstoff befindet sich im  
Lagerbehälter (1), der vorzugsweise birnenförmig ge-  
staltet ist. Die entstehende Zerfallswärme wird durch  
Siedekühlung abgeführt und das durch Radiolyse entste-  
25 hende Knallgas mit dem beim Sieden entstehenden Dampf  
verdünnt. Das Dampf-Knallgas-Gemisch wird über Leitung  
(2), in der Detonationssperren (3) angeordnet sein kön-  
nen, einem ersten Wärmetauscher (4), dem ein Kondensator  
(5) vorgeschaltet sein kann, zugeführt. Von dort gelangt  
30 das Dampf-Knallgas-Gemisch gegebenenfalls über einen  
elektrischen Erhitzer (6) in die erste Oxidations-Kata-  
lysatorstufe (7). Das die erste Oxidations-Katalysator-  
stufe (7) verlassende, an Knallgas verarmte Gemisch ge-  
langt in einen nachgeschalteten Wärmetauscher (8) und  
35 von dort über Leitung (9) in den Katalysator (10). Das

den Katalysator (10) verlassende, an Knallgas ange-  
reicherte Gasgemisch gelangt über Leitung (11) in den  
Wärmetauscher (8) wo es erhitzt wird, um schließlich in  
einen zweiten Oxidations-Katalysator (12) zu gelangen.  
5 Das den zweiten Oxidations-Katalysator (12) verlassende,  
an Knallgas verarmte Gasgemisch wird über Wärmetauscher  
(4) und Leitung (13) in den Kondensator (14) geleitet.  
das in den Kondensatoren (5), (10) und (14) anfallende  
Kondensat wird über Leitungen (15), (16) und (17) in den  
10 Lagerbehälter (1) zurückgeführt. Der nicht kondensierte  
Teil des Gasgemisches wird über Leitung (18) als Spülgas  
in den Lagerbehälter (1) zurückgeführt. In Leitung (18)  
können Gebläse (19) und (20) sowie ein Gasbehälter (21)  
angeordnet sein. Gebläse (19) senkt dann im Lagerbehäl-  
15 ter (1) den Druck ab. Eine Druckabsenkung, die zu einer  
Siedepunktserniedrigung bis etwa 45°C führen kann, ver-  
ringert die Korrosionsgefahr in der Anlage. Die Konden-  
satoren (5), (10) und (14) sind an einen Kühlkreislauf  
(22), (23) - doppelt gestrichelt dargestellt - ange-  
20 schlossen. Im Kühlkreislauf (22), (23) kann ein Wärme-  
tauscher (24) angeordnet sein, der über einen Sekundär-  
kreislauf (25) mit einem Kühlmittelreservoir (26), z. B.  
einem Teich, verbunden ist. (27) deuten Schutzmaßnahmen  
für Wärmetauscher (24) und Sekundärkreislauf (25) an.  
25 Die Kühlkreisläufe können bei Störfällen inhärent durch  
Thermosyphonwirkung arbeiten.



-8-  
Leerseite

**Hoechst**  
Aktiengesellschaft  
6230 Frankfurt (M) 60

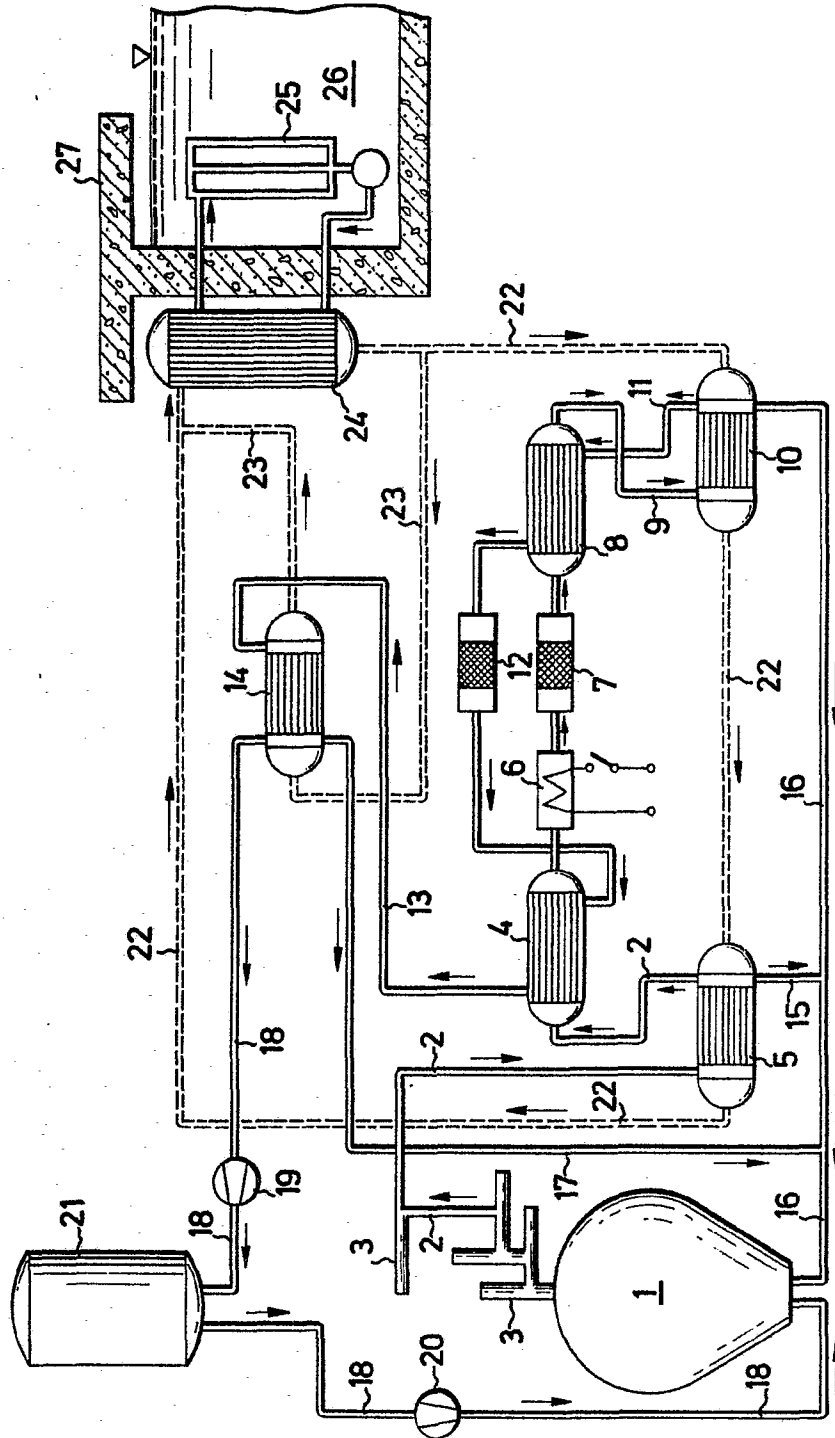
- 9 -

1/1

Nummer: 28 44 608  
Int. Cl.<sup>2</sup>: G 21 F 9/04  
Anmeldetag: 13. Oktober 1978  
Offenlegungstag: 30. April 1980

HOE 78/F 217

2844608



030018/0054

ORIGINAL INSPECTED