

⑬ BUNDESREPUBLIK

DEUTSCHLAND



DEUTSCHES
PATENTAMT

⑫ Offenlegungsschrift

⑪ DE 29 51 451 A 1

⑮ Int. Cl. 3:

C 01 G 56/00

C 01 G 43/01

C 01 G 56/00

⑰ Aktenzeichen: P 29 51 451.0
⑱ Anmeldetag: 20. 12. 79
⑲ Offenlegungstag: 16. 7. 81

Beamtenverhältnis

⑰ Anmelder:

Alkem GmbH, 6450 Hanau, DE

⑱ Erfinder:

Goenrich, Horst, 6466 Gründau, DE; Druckenbrodt,
Dr.rer.nat., Wolf-Günther, 6458 Rodenbach, DE

① Verfahren zur Erzeugung von Korbrennstoffoxiden

DE 29 51 451 A 1

DE 29 51 451 A 1

Patentansprüche

- 5 1. Verfahren zur Durchführung des Kalzinations- und
Reduktionsprozesses bei der Erzeugung von Kernbrennstoff-
oxiden, wobei AUC- bzw. AU/PuC in einer Wasserdampf/
Ammoniakatmosphäre unter Temperatureinwirkung zersetzt
wird, d a d u r c h g e k e n n z e i c h n e t , daß
10 das Ausgangsmaterial AUC- bzw. AU/PuC zunächst in einen
Ofen (1) erhitzt wird, die dabei sich bildenden Gase
Ammoniak, Kohlendioxid und Wasserdampf in einen auf ge-
regelter Temperatur gehaltenen Zwischenbehälter (2)
geführt werden und von dort im Kreislauf teilweise
15 wieder in den Ofen (1) bzw. in einen Gaswäscher (3) ge-
leitet werden, wobei die sich dort bildende Ammonium-
carbonatlösung als Waschwasser wieder in den Prozeß
zurückgeführt wird.
- 20 2. Verfahren nach Anspruch 1, d a d u r c h g e -
k e n n z e i c h n e t , daß ein Wirbelschicht-
ofen (1) verwendet wird und die zurückgeführten Gase
neben ihrer chemischen Wirkung als Wirbelgase für die
mechanische Auflockerung des Ofeninhaltes dienen.
- 25 3. Einrichtung zur Durchführung des Verfahrens nach den
Ansprüchen 1 und 2, d a d u r c h g e k e n n -
z e i c h n e t , daß der Ofen (1) sowie der Zwischen-
behälter (2) durch die Wirkung eines Gaswäschers (3)
30 auf einem leichten Unterdruck gehalten sind und abge-
dichtet mit ihren Anschlußseiten in Handschuhkästen
(31 und 32) hineinragen.

ALKEM GmbH
Hanau

Mein Zeichen
VPA 79 P 8 5 3 0 BRD

5 Verfahren zur Erzeugung von Kernbrennstoffoxiden

Die vorliegende Erfindung betrifft ein Verfahren zur Durchführung des Kalzinations- und Reduktionsprozesses bei der Erzeugung von Kernbrennstoffoxiden, wobei AUC- bzw. AU/PuC in einer Wasserdampf/Ammoniakatmosphäre unter Temperatureinwirkung zersetzt werden.

Nach dem Stand der Technik, siehe die deutsche Patentschrift 1 592 478, wird der AUC- bzw. AU/PuC-Filterkuchen in einem Ofen, z.B. einen Durchstoß- oder Wirbelschichtofen in einer Wasserstoff/Wasserdampfatmosphäre zersetzt. Wasserstoff und Wasserdampf müssen dem Prozeß ständig neu zugeführt werden. Die Ofenabgase werden dann über einen Gaswäscher geleitet, in welchem der Wasserdampf kondensiert und die restlichen Abgase gereinigt werden. Der überschüssige Wasserstoff wird abgegeben.

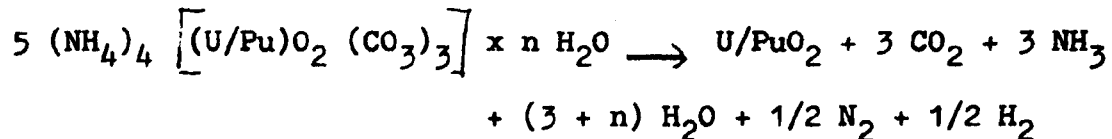
MU 2 Ant / 5.12.1979

Aus dieser kurzen Beschreibung des üblichen Verfahrens geht hervor, daß ständig gasförmige Betriebsmittel und Hilfsstoffe zugeführt bzw. abgeführt werden müssen. Es stellte sich daher die Aufgabe, dieses Verfahren 5 rationeller zu gestalten und dabei Hilfsstoffe sowie Energie einzusparen.

Diese Aufgabe wird erfindungsgemäß dadurch gelöst, daß das feuchte Ausgangsmaterial AUC- bzw. AU/PuC zunächst 10 in einem Ofen erhitzt wird, die dabei sich bildenden Gase Ammoniak, CO₂ und Wasserdampf zunächst in einen auf geregelter Temperatur gehaltenen Zwischenbehälter geführt werden und von dort im Kreislauf wenigstens teilweise wieder in den Ofen bzw. in einen Gaswäscher 15 geleitet werden, wobei die sich dort bildende Ammoniumcarbonatlösung als Waschwasser wieder in den Prozeß zurückgeführt wird.

Zur näheren Veranschaulichung dieses Verfahrens wird 20 auf das in der Figur schematisch dargestellte Fließschema verwiesen und dieses anhand eines Beispiels näher erläutert. Für die Durchführung des AUC/PuC-Verfahrens wird dazu ein Wirbelschichtofen 1 verwendet. Dieser wird bei ca. 600°C betrieben. Über die Leitung 14 25 wird der umzusetzende AUC/PuC-Filterkuchen portionsweise eingegeben und die Leitung 17 zunächst aus einem nicht dargestellten Gasvorratsbehälter Stickstoff von unten in den Ofen als Wirbelgas eingeblasen.

In der Wirbelschicht wird das Ammonium-Uranyl-Plutonylcarbonat zersetzt und durch Ammoniak zum U/PuO₂-Pulver reduziert:



Diese chemische Reaktionsgleichung stellt eine Summen-
 10 gleichung für die in Teilschritten ablaufende Reaktion dar. Um eine quantitative Reduktion zum U/PuO₂ zu garantieren, muß in der Ofenatmosphäre immer ein Überschuß an Ammoniak oder Wasserstoff vorhanden sein. Nachdem diese Reaktion zunächst eingeleitet worden ist, werden
 15 die bei der Zersetzung entstehenden Gase Ammoniak, Kohlendioxid, Wasserdampf, Wasserstoff und Stickstoff über eine wärmeisolierte Leitung 15 in einen Zwischenbehälter 2 geleitet. An diesen ist über die Leitung 27 ein Absorptionsgaswäscher 3 angeschlossen, über den die
 20 überschüssigen Gasmengen abgeführt werden (Leitung 41). Für den Waschvorgang wird das über die Leitung 27 zugeführte Gasgemisch in einen Düsenkasten 33 mit Wasser aus dem Behälter 3, das über die Leitung 36 sowie die
 Pumpe 34 zugeführt wird, gemischt und über die Leitung 35
 25 in den Behälter 3 eingespeist. Durch die dabei stattfindende Gasabsorption wird ein Unterdruck erzeugt, der sich dem ganzen System mitteilt. Da die großen Anlagenteile 1, 2 und 3 mit ihren Kopf- und Fußseiten in Handschuhkästen 31 und 32 hineinragen, ist damit sicher-
 30 gestellt, daß der bei Handschuhkästen notwendige

Unterdruck bei einer Undichtigkeit in der Apparatur nicht gestört werden kann.

Vom Zwischenbehälter 2 aus wird nach der Anlaufphase
5 des Prozesses ein großer Teil der aus dem Ofen kommenden
Abgase über die Leitung 25 und die Pumpe 26 als Wirbel-
gas anstelle des Stickstoffes aus der Leitung 17 in den
Wirbelschichtofen 1 eingeführt. Der in diesen Abgasen
enthaltende Ammoniak und Wasserstoff führen dabei zu
10 einer vollständigen Reduktion des Pulvers im Ofen 1.
Durch die in den Wirbelgasen bereits enthaltene Energie
wird der Energieverbrauch des Ofens, der zunächst auf
etwa 600°C über die Heizung 13 aufgeheizt worden war,
gesenkt. Durch eine Temperaturregelung 24 am Zwischen-
15 behälter kann der im Wirbelschichtofen ablaufende
Prozeß so gesteuert werden, daß der Wasserdampf entweder
auskondensiert oder mit den übrigen Gasen als Wirbelgas
in den Ofen zurückgeführt wird. Dies ist für die ge-
wünschte Pulverqualität von besonderer Wichtigkeit.
20 Nach Beendigung der Reduktionsphase für das gesamte
Pulver wird der Ofen 1 mit Stickstoff aus der Leitung 17
gespült und anschließend das Pulver zur Weiterver-
arbeitung über das Ventil 16 abgelassen. Der als Spül-
gas verwendete Stickstoff wird über die Leitung 41 aus
25 dem Abgaswäscher 3 wieder abgezogen und kann erneut Ver-
wendung finden.

Das im Abgaswäscher 3 befindliche Wasser reichert sich
im Laufe der Zeit zu einer gesättigten Ammoniumcarbonat-
30 lösung an. Diese wird über das Ventil 39 und die
Leitung 42 abgezogen und kann im Konversionsprozeß des
AUC bzw. AU/PuC-Verfahrens zum Waschen des Filterkuchens
genutzt werden.

Nach dem Austragen des U/PuO₂-Pulvers über das Ventil 16 wird dieses wieder geschlossen und erneut AU/PuC über die Leitung 14 eingegeben und der Oxidationsprozeß, wie beschrieben, wieder in Gang
5 gesetzt.

Abschließend seien die Vorteile des neuen Verfahrens nochmals kurz zusammengestellt:

- 10 1. Der Einsatz von besonders zugeführtem Wasserstoff bei der Reduktion von AUC oder AU/PuC entfällt.
2. Der Wasserdampf muß nicht von außen über Dampferzeuger in das System eingebracht werden.
- 15 3. Der Energieinhalt der Ofenabgase wird in den Prozeß zurückgeführt.
4. Die Kapazität der Gaswäscher für die Ofenabgase
20 kann herabgesetzt werden, da diese zum großen Teil in den Prozeß zurückgeführt werden.
5. Im gesamten System kann kein Überdruck entstehen.
- 25 6. Die Kosten für Energie- und Hilfsstoffe werden gegenüber dem Stand der Technik erheblich gesenkt.

3 Patentansprüche

1 Figur

7.

2951451

VPA 79 P 8 5 3 0 BRD

Zusammenfassung

Verfahren zur Erzeugung von Kernbrennstoffoxiden

- 5 Die Ofenabgase des Kalzinationsprozesses beim AUC- bzw. AU/PuC-Verfahren (Herstellung von Kernbrennstoffdioxiden) werden im Kreislauf wieder in den Ofen zurückgeführt. Das entstehende NH_3 ersetzt bei dieser Prozeßführung den sonst für die Reduktion benötigten
- 10 Wasserstoff.

8.

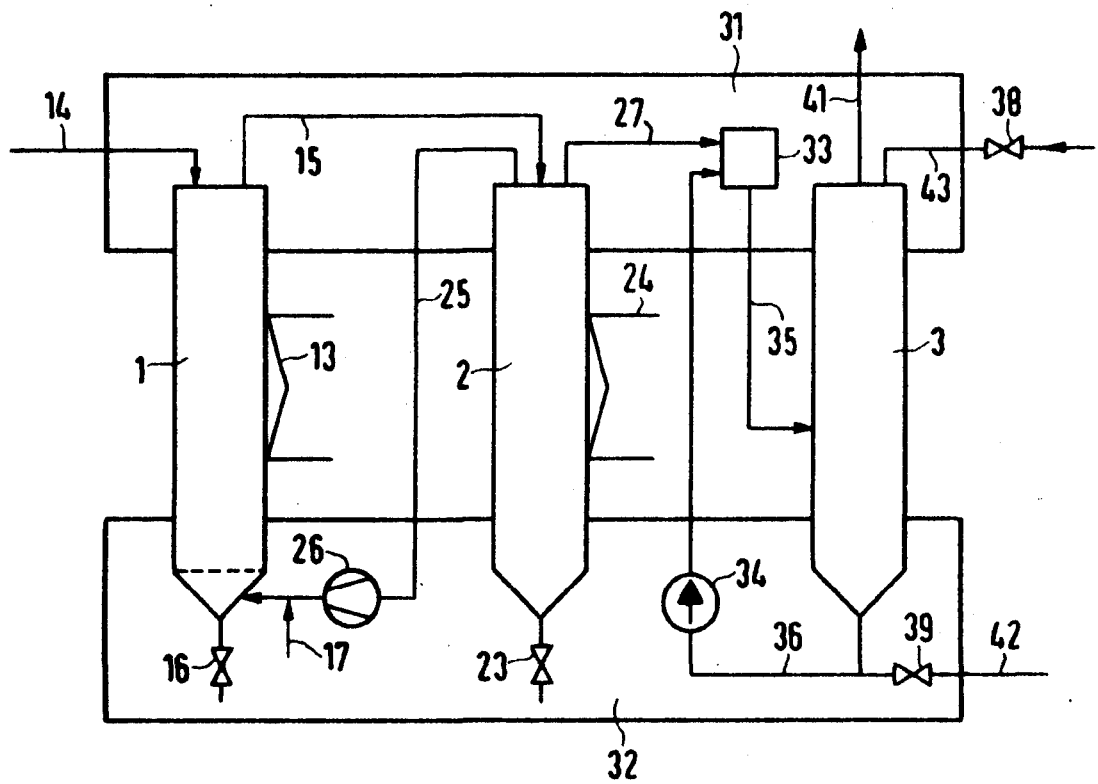
Leerseite

Nummer: 29 51 451
Int. Cl.³: C 01 G 56/00
Anmeldetag: 20. Dezember 1979
Offenlegungstag: 16. Juli 1981

. 9.
1/1

79 P 8 5 3 0 BRD

295 1451



130029/0015