

KFK-652:2

KERNFORSCHUNGSZENTRUM

KARLSRUHE

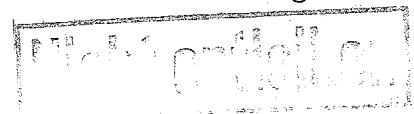
Gesellschaft für Kernforschung m. B. H.

August 1967

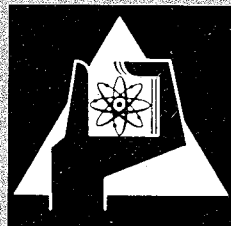
Institut für Heiße Chemie

KFK 652
EUR 3683 d
(2. Ex.)

Das Verhalten hoher Plutoniumkonzentrationen im Purex-Prozeß und
die Entwicklung Schneller Extraktoren zur Wiederaufarbeitung
von Kernbrennstoffen



F. Baumgärtner, W. Ochsenfeld, B. Roth, L. Finsterwalder



GESELLSCHAFT FÜR KERNFORSCHUNG M. B. H.

KARLSRUHE

Als Manuskript vervielfältigt

Für diesen Bericht behalten wir uns alle Rechte vor

GESELLSCHAFT FÜR KERNFORSCHUNG M.B.H.
KARLSRUHE

TA 8.333

KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE

August 1967

KFK 652

EUR 3683 d

Institut für Heiße Chemie



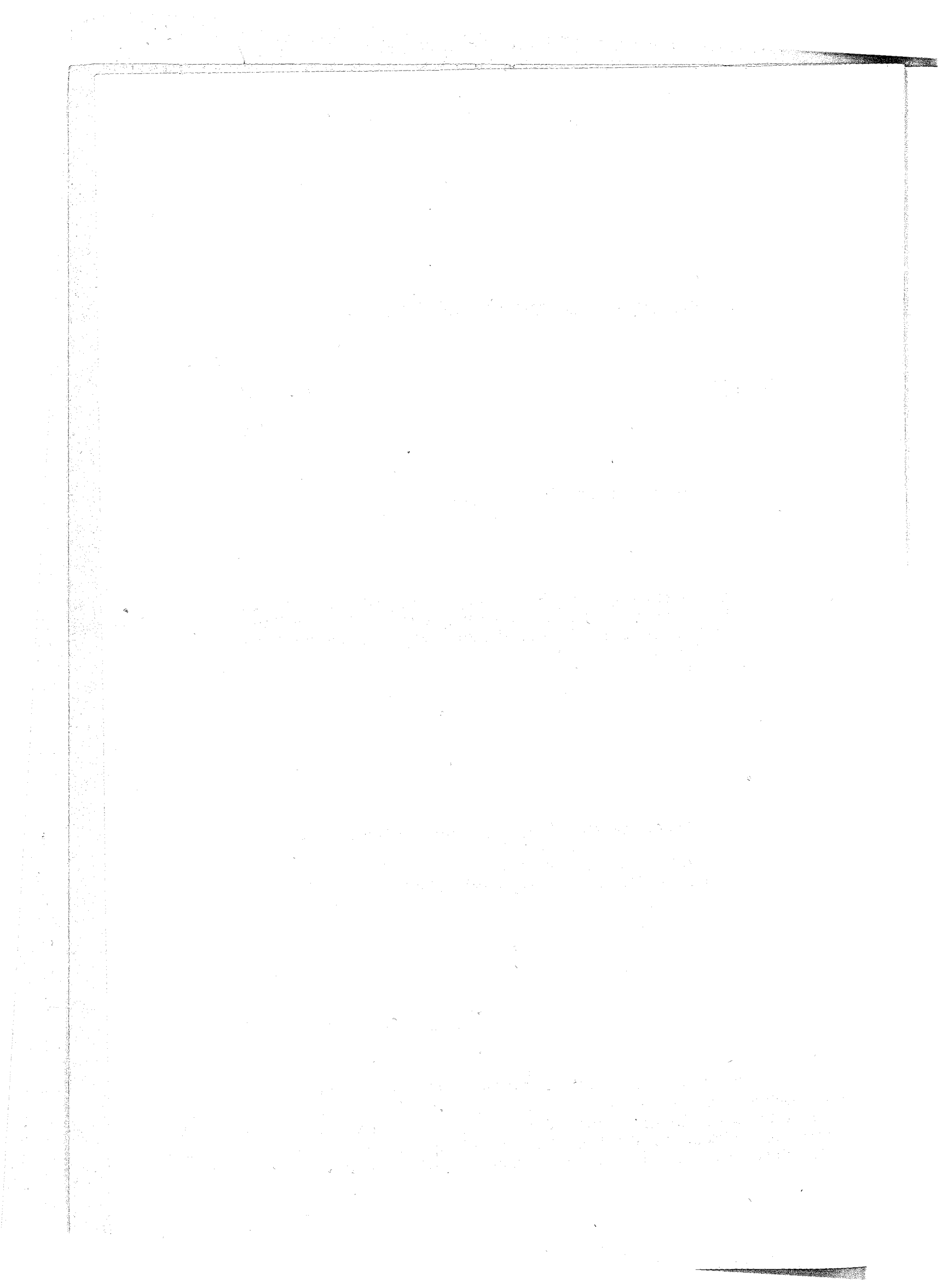
Das Verhalten hoher Plutoniumkonzentrationen im Purex-Prozeß und die Entwicklung Schneller Extraktoren zur Wiederaufarbeitung von Kernbrennstoffen.

Beiträge zur Foratomtagung anlässlich der
von F. Baumgärtner, W. ^{ronit} Ochsenfeld,
B. Roth und L. Finsterwalder ^{W. Müller}
_[Bernard] _[Lorenz] ^{*)}

Büroexemplar	Nr.
Gesellschaft für Kernforschung m.b.H. Karlsruhe	2

Gesellschaft für Kernforschung mbH. Karlsruhe

*) Diese Arbeit wurde im Rahmen der Assoziation zwischen der Europäischen Atomgemeinschaft und der Gesellschaft für Kernforschung mbH., Karlsruhe, auf dem Gebiet der schnellen Reaktoren durchgeführt.



In der Zukunft wird Plutonium als Kernbrennstoff zunehmend an Bedeutung gewinnen. Einerseits wird Plutonium in steigendem Maß in den Kernkraftwerken erzeugt, andererseits besitzt Plutonium so gute Spalteigenschaften, daß es eine energiewirtschaftliche Notwendigkeit sein wird, dieses Material wieder als Kernbrennstoff zu verwenden.

In den Schnell-Brüter-Programmen der verschiedenen Länder hat diese Entwicklung schon konkrete Formen angenommen. Der Reaktorkern des Schnell-Brüter-Projekts der Bundesrepublik soll rund 15 % Plutonium enthalten.

Die chemischen Untersuchungen im Kernforschungszentrum in Karlsruhe auf dem Gebiet der Wiederaufarbeitung hoch-Plutonium-haltiger Brennstoffe werden in erster Linie von technisch-wirtschaftlichen Gesichtspunkten bestimmt. Die Arbeiten sind deshalb nicht auf ungewisse Methoden ausgerichtet, deren Wirtschaftlichkeit in den Sternen steht, sondern es gilt ein Nahziel zu erreichen, nämlich die hoch-Plutonium-haltigen Kernbrennstoffe der schnellen Brutreaktoren in derselben technischen Anlage wie die Brennstoffe konventioneller Reaktoren nach dem bewährten Extraktionsverfahren mit Tributylphosphat, dem sogenannten Purex-Verfahren, zu verarbeiten.

Das erste chemische Problem bei der Wiederaufarbeitung hoch-Plutonium-haltiger Brennstoffe nach dem Purex-Verfahren liegt im rezessiven Extraktionsverhalten des Plutoniums im System Plutonium-Uranyl Nitrat-Tributylphosphat (Abb. 1).

Dieser rezessive Extraktionscharakter des Plutoniums wirkt sich beim Purex-Prozeß, Abb. 2, besonders im Koextraktionszyklus aus und auch im Trennzyklus, Abb. 2. Wir wollen uns deshalb hier auf die Folgen der hohen Plutonium-Konzentrationen in den 3 Extraktoren HC, HA, und 1B beschränken. Die anderen Extraktionsschritte sind Wiederholungen dieser Probleme oder Probleme konventioneller Art.

Abb. 3 zeigt ein Verteilungsprofil im HA-Extraktor.

Wie den Konzentrationswerten zu entnehmen ist, kann bei einer nur 80 %-igen TBP-Sättigung schon mit vier Stufen eine befriedigende Extraktionsausbeute an Plutonium von 99,93 % erreicht werden. Der Uranverlust liegt dabei unter 0,1 %.

Zum Erreichen des notwendigen, hohen Dekontaminationsfaktors von mindestens 10^3 wird eine nur 80%ige TBP-Sättigung jedoch kaum ausreichend sein. Liegt die TBP-Sättigung aber über 90 %, so ist der Verdrängungseffekt des Urans auf das Plutonium nicht mehr zu verhindern, Abb. 4. Es werden 9 Extraktionsstufen benötigt, um den Plutonium-Verlust auf etwa 0,3 % zu drücken. Vor allem aber findet auf Grund einer Rezirkulation im Extraktionsteil eine Aufkonzentrierung des Plutoniums zu überkritischen Konzentrationen statt. Die Verteilungsverhältnisse im zweiten Extraktor, der zur Rückextraktion dient, sind in Abb. 5 wiedergegeben.

Bei der gemeinsamen Rückextraktion des Plutoniums und Urans in der HC-Kolonne ist in den Eingangsstufen wegen des großen Plutoniumsgehaltes ein relativ hoher Säuregrad von mindestens 0,3 n notwendig, um eine Hydrolyse des Plutoniums bei den verhältnismäßig großen Konzentrationen zu vermeiden. Eine vollständige Rückextraktion des Urans bei diesem hohen Säuregehalt wäre nicht mehr zu erreichen. Eine anschließende Wäsche mit 0,02 n HNO_3 ist deshalb noch notwendig.

Der Plutonium-Verlust in der organischen Phase beträgt bei dieser Verfahrensweise in 12 Stufen ca. 0,3 %. Ursache für diese relativ hohen Verluste sind wohl organische Verunreinigungen mit starker Komplexierung des Plutoniums.

Der dritte neuralgische Punkt ist der Trennextraktor 1B. Die Verteilungsverhältnisse sind in Abb. 6 wiedergegeben. Das Problem liegt hier in der vollständigen Reduktion des verhältnismäßig großen Plutoniumanteiles. Das bisher im Purex-Prozeß übliche Eisen-II-Sulfamat ist wegen des notwendigen Überschusses nicht mehr anwendbar. Wir haben deshalb von vornherein unsere Versuche auf Uran-IV als Reduktionsmittel abgestellt. In 7 Stufen ist auf diese Weise eine Abtrennung des Plutoniums mit einer Ausbeute von 99,5 % zu erreichen.

Zusammenfassend zeigen diese Ergebnisse, daß eine Wiederaufarbeitung nach dem Purex-Verfahren auch mit hoch-Plutonium-haltigen Brennelementen grundsätzlich durchführbar sind, wenn ein geeignetes Fließschema angewendet wird.

Bei der technischen Durchführung ist jedoch notwendig, zwei Ergebnisse besonders zu berücksichtigen:

1. Bei der Koextraktion tritt bei höherer TBP-Sättigung eine Rezirkulation ein, die zu überkritischen Konzentrationen führt und deshalb geometrisch sichere Bauweise der Extraktoren erfordert.

2. Die wesentlichen Plutonium-Verluste liegen in der organischen Phase. Bei einem Gesamtverlust von ca. 1 % entfallen etwa 0,8 % auf die organische Phase. Pro Tonne Brennstoff bedeuten diese 0,8 % immerhin 1,2 kg Plutonium. Ursache für diesen Verlust sind organische Verunreinigungen. Besondere Sorgfalt ist deshalb auf die Reinheit der organischen Phase zu verwenden. Bei der Wiederaufarbeitung abgebrannter, also radioaktiv heißer Brennstäbe ist das aber besonders schwierig, weil unvermeidlich durch Radiolyse komplexbildende Zersetzungsprodukte gebildet werden.

Ein wirksamer Ausweg aus dieser Schwierigkeit ist die Verkürzung der Kontaktzeit bei der Extraktion. Eine Beschleunigung des Extraktionsvorgangs kann aber gleichzeitig auch ausgenützt werden für eine Steigerung des Durchsatzes.

Eine Steigerung des Durchsatzes ist im technischen Betrieb aber ebenfalls notwendig, um über die erste Bedingung, nämlich kritisch sicher dimensionierte Extraktoren ohne Kapazitätseinbuße hinwegzukommen. Kritisch sichere Bauweise bedeutet ja kleine Bauweise und eine kleine Bauweise läßt in der Regel nur geringe Durchsätze zu.

Die beiden größeren und eigentlich unabhängigen Probleme der Plutonium-Brennstoffe, nämlich Kritikalität und Radiolyse lassen sich also nach dem selben verfahrenstechnischen Rezept behandeln: durch beschleunigte Extraktion.

Aus diesem Grunde haben wir in der Vergangenheit besonderes Gewicht gelegt auf die Erprobung von Schnellextraktoren. Zwei für diese Zwecke geeignete Extraktortypen wurden gebaut und in ihrer Funktionsweise erprobt: der Hydrozyklonextraktor und der kompakte Zentrifugalextraktor.

Der kompakte Zentrifugalextraktor

(B. Roth)

Den Extraktoren kommt unter den Anlagekomponenten bei der wäßrigen Wiederaufarbeitung eine zentrale Bedeutung zu. Die bisher gebräuchlichen Extraktoren wie Misch-Absetzer und pulsierte Siebbodenkolonnen eignen sich nur bedingt zur Wiederaufarbeitung von hochabgebrannten Pu-haltigen Brennelementen. Dieser Brennelementtyp stellt besondere Anforderungen an die Extraktionsapparate hinsichtlich Durchsatz, Baugröße, Flexibilität und Kontaktzeit des Extraktionsmittels.

Die beiden wesentlichen Probleme ergeben sich

- 1) aus der Kritikalitätsgefahr durch hohe Spaltstoffkonzentrationen (Pu, U-235) und
- 2) durch Radiolyse des Extraktionsmittels bei hoher spezifischer Spaltprodukt-Aktivität, die sich aus dem hohen Abbrand und einer möglichst kurzen Abklingzeit der BE ergibt, zwei der Bedingungen für einen wirtschaftlichen Brennstoffzyklus.

Der Kritikalitätsgefahr wird am wirksamsten begegnet durch Anwendung geometrisch sicherer Extraktoren.

Durch die radiolytische Zersetzung des Extraktionsmittels entstehen erhöhte Pu-Verluste und eine Verschlechterung des Dekontaminationsfaktors. Diese Zersetzung läßt sich durch eine kurze Kontaktzeit des Extraktionsmittels im Extraktor stark vermindern. Zwar lassen sich der Misch-Absetzer und die Kolonne auch geometrisch sicher bauen, aber dann ist der Durchsatz sehr klein. Ihre Kontaktzeit läßt sich praktisch pro Stufe nicht unter 1 Minute verringern, ein Wert, bei dem durch Radiolyse schon spürbare Spaltstoffverluste auftreten können.

Der in Savannah-River, USA, erstmals gebaute und in Karlsruhe weiterentwickelte Zentrifugalextraktor erfüllt sehr gut die eingangs gestellten Forderungen.

Wie sieht nun ein solcher Extraktor aus?

Abb. 7 zeigt einen Querschnitt durch eine typische kompakte Extraktorstufe. Kompakt bedeutet, daß Misch- und Trennkammer in einem geschlossenen Apparat angeordnet sind.

Mit der Welle des Antriebsmotors sind ein zylindrischer Rotor, in dem das Phasengemisch im Fliehkraftfeld getrennt wird und darunter der Mischpropeller gekoppelt. Mischer und Rotorsetzler laufen daher mit der gleichen Drehzahl.

Die leichte und schwere Phase werden von der 4-flügeligen Propellerpumpe unten über die beiden waagrecht Zulaufrohre in die Mischkammer gesaugt, intensiv vermischt und über Umlenk- und Beruhigungsbleche in der Achsmittle in den Rotorzylinder gedrückt. Ein Prall- bzw. Umlenkblech im Rotor auf der Mischer-Welle leitet das eintretende Phasengemisch radial nach außen um. Das Gemisch wird im Rotor getrennt. Dabei wandert die schwere Phase an die Rotorwand und die leichte nach innen. Dazwischen stellt sich die Phasengrenzfläche ein. Die beiden sauberen Phasen werden am oberen Rotorende getrennt, über ein besonders ausgebildetes organisches und ein wäßriges Ringwehr abgezogen und über radiale Bohrungen im Rotor in die feststehenden Ringkammern im äußeren Gehäuse geschleudert. Von hier gelangen sie über tangentiale Auslaßrohre in die nächste Stufe.

Der Extraktor im Antriebsmotor hängt an einer starren Platte zur Vermeidung von Schwingungen.

Durch Lösen von 4 Schrauben in der Tragplatte können die einzigen mechanisch bewegten Teile, der Motor mit Rotor und Mixer zusammen nach oben abgezogen werden. Das Gehäuse kann man getrennt nach unten ablassen. Der Rotor muß dynamisch ausgewuchtet sein, um einen ruhigen, schlagfreien Lauf zu garantieren. Schwingungen würden sich auf die Flüssigkeitssäule im Rotor übertragen und zu einer Phasenverunreinigung führen.

Im Flüssigkeitsstrom selbst befindet sich kein mechanisch empfindliches und zu wartendes Teil. Der Rotor ist am unteren Ende fliegend gelagert.

In Abb. 8 sind die hydrodynamischen Verhältnisse im Zentrifugalsetzler schematisch dargestellt. Das Phasengemisch tritt achsial von unten in den Rotor ein, wird umgelenkt und getrennt. Die punktierte schwere Phase liegt an der Rotorinnenwand, die gestrichelte leichte Phase weiter innen, dazwischen die Phasengrenzfläche bei r_1 . Hier sieht man deutlich die Abnahme der Phasen durch die beiden Ringwehre. Die Phasengrenzfläche kann sich im Bereich $m - r_0$ bewegen, ohne daß eine der beiden Phasen unsauber wird. Ihre Lage ist durch ein hydrostatisches Gleichgewicht der beiden Phasen definiert, abhängig von Drehzahl, Durchsatz, Dichteverhältnis und Wehrradien. Gibt man über eine Bohrung in der Antriebswelle Preßluft auf die wäßrige Phase am Wehrüberlauf, so kann man zusätzlich die Lage der Phasengrenzfläche regeln, was eine Erhöhung der Flexibilität bedeutet.

Der Abscheidegrad im Rotorsetzler ist proportional $\Delta \rho \cdot L \cdot D^2 \omega^2 / Q$ über diese Größen ist die Trenneigenschaft beeinflussbar.

Ein Prototyp-Extraktor mit 80 mm Rotordurchmesser wurde im Versuch getestet und zwar als Einzelstufe und in 12-stufiger Anordnung.

Er hat folgende charakteristische Daten:

Rotordurchmesser 80 mm, Rotorhöhe 130 mm, Gehäuseinnendurchmesser 140 mm, also eine geometrisch sichere Anordnung.

Füllvolumen des Extraktors im Betrieb 0,84 l/Stufe (wovon 0,72 l auf den Setzler und 0,12 l auf den Mixer entfallen. Der Anteil an schwerer Phase beträgt 0,58 l und an leichter Phase 0,26 l).

Die Kontaktzeit der organischen Phase pro Stufe beträgt 4,7 sec bei einem organischen Durchsatz von 200 l/h ($T_{ges.} = 7,5$ sec bei 400 l/h).

Mit einer Drehzahl von 3000 U/min ergibt sich eine 400-fache Erdbeschleunigung im Rotorsetzler.

Die gesamte Stufe wurde aus säurebeständigem Stahl gefertigt.

Für die Trenn-, Extraktions- und Rückextraktionsversuche wurden als leichte Phase ein Gemisch aus TBP/SST und als schwere Phase HNO_3 verschiedener Molarität gewählt. Extrahiert wurde Natururan aus der wäßrigen Phase.

Abb. 9 zeigt einen Versuchsstand mit zwei einzelnen ZE-Stufen, die rechte Stufe mit einer Gleitringdichtung am oberen Wellenende zur Preßluftaufgabe und Regelung der Phasengrenzfläche.

Abb. 10 zeigt die Abhängigkeit des max. Durchsatzes vom Menganstromverhältnis q_o/q_w der beiden Phasen. Die obere Kurve gilt für max. 1 % Verunreinigung der organischen Phase mit wäßriger, die untere für 0,5 %. Man erkennt die deutliche Abhängigkeit des Maximaldurchsatzes vom Verhältnis O/W. Bei q_o/q_w von 1/1 bis 2/1 hat der Prototyp-Extraktor einen max. Gesamtdurchsatz von 500 bis 540 l/h. Der Bereich unterhalb der beiden Kurven stellt den Betriebsbereich des Extraktors dar. Hier sind die beiden Phasen in jedem Fall sauber getrennt. Die Kurven werden bei steigender Drehzahl und Dichtedifferenz nach oben verschoben, d.h. es wird ein größerer Durchsatz erreicht.

Gegenstrom-Extraktion- und Rückextraktionsversuche zur Bestimmung der Effektivität wurden mit einer 12-stufigen Batterie in rechteckiger Anordnung durchgeführt. Abb. 11 zeigt den Aufbau der 12-Stufen-Einheit. Die Extraktoren haben die gleichen Daten wie die beiden in Abb. 9. Jeder der 12 Motore ist einzeln schaltbar.

Abb. 12 zeigt eine andere Ansicht der Batterie. Über eine Probenahmevorrichtung, über den Motoren angeordnet, konnte von Hand mittels Vacuum gleichzeitig hinter jeder einzelnen Stufe eine Probe von jeder Phase gezogen werden.

Den auf diese Weise gewonnen Konzentrationsverlauf zeigt das Mc. Cabe-Thiele-Diagramm in Abb. 13. Aus 12 Meßpunkten bei einer Uranextraktion über 6 Stufen läßt sich mit der theoretischen Gleichgewichtslinie und der Betriebsgeraden eine Gesamtwirksamkeit von angenähert 100 % bestimmen ($N_{\text{theor.}}/N_{\text{prakt.}}$).

Der Gleichgewichtszustand bei den 6 Stufen wurde bereits nach 6 Minuten erreicht, d.h. nach umgerechnet 6-fachem Volumenwechsel mit $Q_{\text{ges.}} = 240$ l/h. Bei der pulsierten Siebbodenkolonne wird ein mindestens 12-facher Volumenwechsel benötigt.

Weitere Versuche zeigten, daß der Extraktor sehr schmutzunempfindlich ist. Wir haben bis zu 17 g Feststoff/l in Form von Schlamm durchgesetzt, ohne daß eine Beeinflussung der Funktionsweise feststellbar war, der Schlamm wurde wieder ausgetragen.

Zum Abschluß möchte ich die Vorteile des Zentrifugalextraktors bei der Wiederaufarbeitung von Kernbrennstoffen hohen Pu-Gehaltes und hohen Abbrandes kurz zusammenfassen:

Bei geometrisch sicherer Bauweise (12 cm Rotordurchmesser) hat der Zentrifugalextraktor einen sehr großen Durchsatz, verglichen mit Mischabsetzer oder Kolonne. Die 500 l/h unserer geometrisch sicheren Prototypstufe entsprechen z.B. einer täglichen aufzuarbeitenden Brennstoffmenge von ca. 700 kg UO_2 , PuO_2 für ein molares Uran-Plutonium-Purex-Fließschema. Diese Menge kann in beliebiger Spaltstoffkonzentration durchgesetzt werden, ohne irgendwelche Kritikalitätsprobleme.

Die 700 kg/d entsprechen etwa dem 3-fachen Durchsatz der im Bau befindlichen WAK-Anlage.

Ein weiterer wichtiger Vorteil ist die sehr kurze Kontaktzeit pro Stufe. Die Kontaktzeit ist definiert als das Verhältnis des Holdup-Volumens pro Stufe zum Durchsatz. Sie ist mindestens um den Faktor 20 kleiner als beim Mixer-Settler mit Schwerkraft-Trennung der Phasen. Dadurch wird es erst möglich, hohe spezifische Aktivitäten ohne vorherige unwirtschaftliche Verdünnung, die eine Durchsatzvergrößerung bedeutet, und ohne zu große Pu-Verluste und Einbußen im Dekontaminationsfaktor zu verarbeiten.

Abb. 14 zeigt einen Größenvergleich des ZE mit einem Mixer-Settler gleicher Kapazität. Hier kommt die kompakte Bauweise des ZE anschaulich zum Ausdruck. Die beim ZE um ca. 20 % höhere Effektivität wurde über die Stufenzahl in der Darstellung berücksichtigt. Bis heute läuft der Extraktor 800 h im Dauerbetrieb ohne jegliche Störung und Wartung.

Der Hydrozyklon-Extraktor

(L. Finsterwalder)

Der Hydrozyklonextraktor, eine Entwicklung von M.E. Whatley und W.M. Woods vom ORNL, ist ein flüssig flüssig Gegenstromextraktor. Er beruht auf charakteristischen Strömungsverhältnissen in Hydrozyklonen (Bild 15).

In einem Zyklon wird durch den tangentialen Einlauf die Flüssigkeit in schnelle Rotationsbewegungen versetzt. Die Folge dieser Rotationsbewegung ist ein starkes Zentrifugalfeld, verbunden mit einem starken Scheerfeld. Neben dieser Hauptströmung gibt es noch starke Grenzschichtströmungen. Durch Haftreibung werden nämlich die Flüssigkeitsschichten nahe der Zyklonwand abgebremst. Das Zentrifugalfeld bricht dort örtlich zusammen. Die schneller rotierenden inneren Flüssigkeitsschichten pressen die abgebremsten äußeren Schichten an der Wand entlang auf einem spiralförmigen Weg hinaus. Wenn der Unterlauf des Zyklons mit einer gefüllten Kammer verbunden ist, wird dieser Ausfluß durch einen gleich großen Einfluß entlang der Zyklonachse ausgeglichen. Innerhalb eines Zyklons finden wir also die drei Voraussetzungen für einen Solventextraktor: Ein starkes Scheerfeld zum Mischen, ein Zentrifugalfeld zum Trennen und einen Gegenstrom zum Transport der Phasen. Bei der Anwendung von Hydrozyklonen für die Extraktion ging es hauptsächlich darum, diese Effekte optimal auszunützen. Es mußte eine brauchbare Lösung gefunden werden, einzelne Stufen zu einer Kaskade zusammenzukoppeln (Bild 16). Das Bild zeigt einen schematischen Querschnitt durch eine Extraktionsstufe, die sich als bester Kompromiß zwischen Stufenwirksamkeit und Durchsatz ergeben hat. Der normalerweise konische Zyklon ist zur Volumenverminderung eingeschnürt worden und läuft in einen zylindrischen Teil aus. Eine kleine Kammer verbindet den Unterlauf einer Stufe mit dem Überlauf der anderen. Jede Stufe wird von einer Zentrifugalumlaufpumpe bedient. Die Pumpe, die ihren Zulauf über den Ringspalt der Unterlaufkammer erhält, fördert etwa 18 l bei 1,2 atü.

Der Gegenstrom im Zyklon wird durch die Pumpen nicht beeinflusst. Die schwere Phase, die sich hauptsächlich nahe der Zyklonwandung aufhält, wandert entgegen der Richtung der leichten Phase, die nahe der Achse angereichert wird (Bild 17).

Der Überlauf des ersten Zyklons endet über ein mit Füllkörpern versehenes Rohrstück in einen Schwerkraftabsetzer. Die disperse organische Phase setzt sich dort klar ab. Die mitgeführte wäßrige Phase wird mit 10 bis 20 % Anteil an organischer Phase der Umlaufpumpe der ersten Stufe zugeleitet.

Das andere Ende des Extraktors wird von drei oder vier sogenannten Polisher-Zyklonen abgeschlossen. Es sind dies auf besonders gute Trennwirkung konstruierte Zyklone. Sie entfernen die über die organische Feedstufe mitgerissene organische Phase aus dem wäßrigen Raffinat bis auf 1 bis 2 %.

Innerhalb der Apparatur liegt die leichte Phase immer als feine Dispersion vor. Man schätzt die Tröpfchengröße auf etwa 20 μ . Die Regelung des Extraktors ist recht einfach. Die Stufen selbst erfordern keine Regelung. Um ein konstantes Phasenverhältnis im Extraktor sicherzustellen, muß nur die organische Speiselösung und das wäßrige Raffinat mit konstanten Raten eingespeist bzw. abgezogen werden. Die Grenzflächenregelung im Schwerkraftabsetzer erfolgt mit dem Pumpendruck der ersten Stufe als Regelsignal. In einem gewissen Bereich hängt nämlich der Anteil an organischer Phase am Umlauf der ersten Stufe von der Lage der Grenzfläche im Gravitationsabsetzer ab. Die Umlaufpumpen arbeiten in einem Bereich, bei dem der Pumpendruck proportional der Dichte des geförderten Mediums ist. Sinkt beispielsweise die Grenzfläche im Settler ab, so erhöht sich der Anteil der organischen Phase im ersten Pumpenumlauf: der Pumpendruck fällt ab. Dieses Signal wird von einer Differentialdruckzelle aufgenommen, auf einen Regler gegeben, der ein entsprechendes Regelsignal auf ein pneumatisches Ventil gibt. Die wäßrige Einspeisegeschwindigkeit wird erhöht und die Grenzfläche an die Sollstelle zurückgeführt. Das organische Produkt wird über ein Wehr mit konstantem Druck abgeführt. Der Pumpendruck der organischen Speisestufe wird zur Flutungsanzeige verwendet. Beim Erreichen der Leistungsgrenze erhöht sich der organische Anteil in dieser Stufe sprunghaft.

In starker Anlehnung an das Modell von Whatley und Woods wurde auch in Karlsruhe ein solcher Hydrozyklonextraktor aufgebaut. Das Bild zeigt die in Karlsruhe stehende Anlage. Sie wird in horizontaler Lage betrieben. Da im Zyklon Zentrifugalfelder der 1000-fachen Erdbeschleunigung erzeugt werden, hat die natürliche Gravitation und damit die Lage der Kolonne auf das Funktionieren der Maschine keinen Einfluß.

Abb. 18 zeigt die Leistungsgrenzen für verschiedene Systeme, wie wir sie noch in Oak Ridge aufgenommen haben. Auf den Achsen sind die wäßrigen und organischen Raten aufgetragen, die Kurven grenzen den Betriebsbereich vom Flutungsbereich ab. Bemerkenswert ist, daß der maximal mögliche Gesamtdurchsatz für wachsende Verhältnisse wäßrig über organisch ansteigt. Das Hexon-Essigsäure-System hat eine Flutungslinie, die im Faktor 2,2 über der des Standard-systems von 18 % TBP in Amsco gegen 1 m NaNO_3 -Lösung liegt. Die Zähigkeit der dispersen Phasen hat wenig Einfluß auf die Funktion. Dies zeigt die Flutungslinie für das System Mineralöl der Zähigkeit 120 cp (SAE 20 - 30) gegen schwach angesäuertes Wasser. Versuche mit Feststoffen in der Speiselösung führten zu keinen Ablagerungen und Betriebsstörungen, sofern sie das Brechen der Emulsionen im Schwerkraftabsetzer nicht behinderten. Die Stufenwirksamkeit wurde mit dem System 18 % TBP in Amsco gegen 1 m NaNO_3 und Uran in geringer Konzentration als Verteilungsmittel bestimmt. Die mit dem McCabe-Thiele-Diagramm ausgewerteten Versuche ergaben 70 %. Wir nehmen an, daß die Stufenwirksamkeit durch das Rückmischen begrenzt ist.

Von diesem Entwicklungsstand ausgehend haben wir nun die Frage untersucht, welche Faktoren anzuwenden sind bei einer Übersetzung der bisherigen Maschine auf größere Durchsätze, denn das ist ja für eine technische Anwendung das Entscheidende. Überraschenderweise stellten wir fest, daß die Kontaktzeit zunimmt proportional dem Strömungsquerschnitt. Vorausgegangene Überlegungen, sowohl von Whatley in Oak Ridge als auch von uns hatten zu einer Proportionalität mit dem einfachen Durchmesser des Strömungsquerschnitts geführt.

Anschaulich einzusehen ist die einfache Beziehung, daß der Stufeninhalt gleich dem Produkt aus Durchsatz und Kontaktzeit ist. Eine exakte Erklärung unseres experimentellen Befundes, also der quadratischen Abhängigkeit - genau genommen beträgt der Exponent 2,08 - können wir noch nicht geben. Eine vorläufige anschauliche Deutung kann vielleicht in dem stärkeren Zentrifugalfeld und der geringen Rückmischrate bei kleinem Querschnitt gesucht werden.

Die Konsequenz aus diesen Untersuchungen ist, daß man im technischen Maßstab keine geometrischen Vergrößerungen der Zyklone durchführen darf. Man würde sonst einbüßen sowohl an Kontaktzeit - die ja möglichst klein bleiben soll - und außerdem würde man einbüßen an der Stufenwirksamkeit, die möglichst groß sein soll.

Die Folge daraus für die Zukunft ist, daß bei einer technischen Anwendung der bisherige Hydrozyklon in seinen Dimensionen beibehalten werden muß - noch besser wird es sein, ihn sogar zu verkleinern. Die notwendige Kapazitätssteigerung wird erreicht durch Parallelschaltung.

Aufgrund dieser Untersuchungen wird der zukünftige technische Hydrozyklon für die Schnellextraktion ungefähr folgenden Aufbau haben, wie Abb. 18 zeigt.

Das Bild gibt einen Querschnitt durch eine Maschine mit 6 parallelen Zyklonen, die alle von einer zentral gelegenen Pumpe bedient werden. In so einer integrierten Maschine, bei der Zyklone und Pumpe in einem Zylinder untergebracht sind, lassen sich alle Wellendichtungen bis auf eine vermeiden. Die Pumpenwelle läuft auf Graphitlagern. Geringe Leckagen zwischen den einzelnen Stufen stören nicht, da die Rückmischrate erheblich höher liegt. Mit so einer Maschine soll es möglich sein, bei einem Durchsatz von ca. 600 l/h - ungefähr diesselbe Kapazität wie der vorher geschilderte Zentrifugalextraktor sogar Kontaktzeiten von einer Sekunde pro theoretische Stufe zu erreichen.

Zusammenfassend kann man vielleicht folgendes über die Situation bei den Schnellextraktoren für die Wiederaufarbeitung sagen. Der Zentrifugalextraktor, wie ihn Herr Roth geschildert hat, ist wegen des einfacheren Funktionsprinzips heute bereits in einem technisch fähigen Stadium.

Der Hydrozyklonextraktor braucht dagegen noch die Erprobung eines Proto-typs im technischen Maßstab. Wenn dieses Stadium einmal durchlaufen sein wird, ist damit zu rechnen, daß sich dieser Schnellextraktortyp trotz seiner späteren Einsatzreife bei der Wiederaufarbeitung durchsetzen wird, weil er in seinem mechanischen Aufbau noch kompakter und einfacher ist.

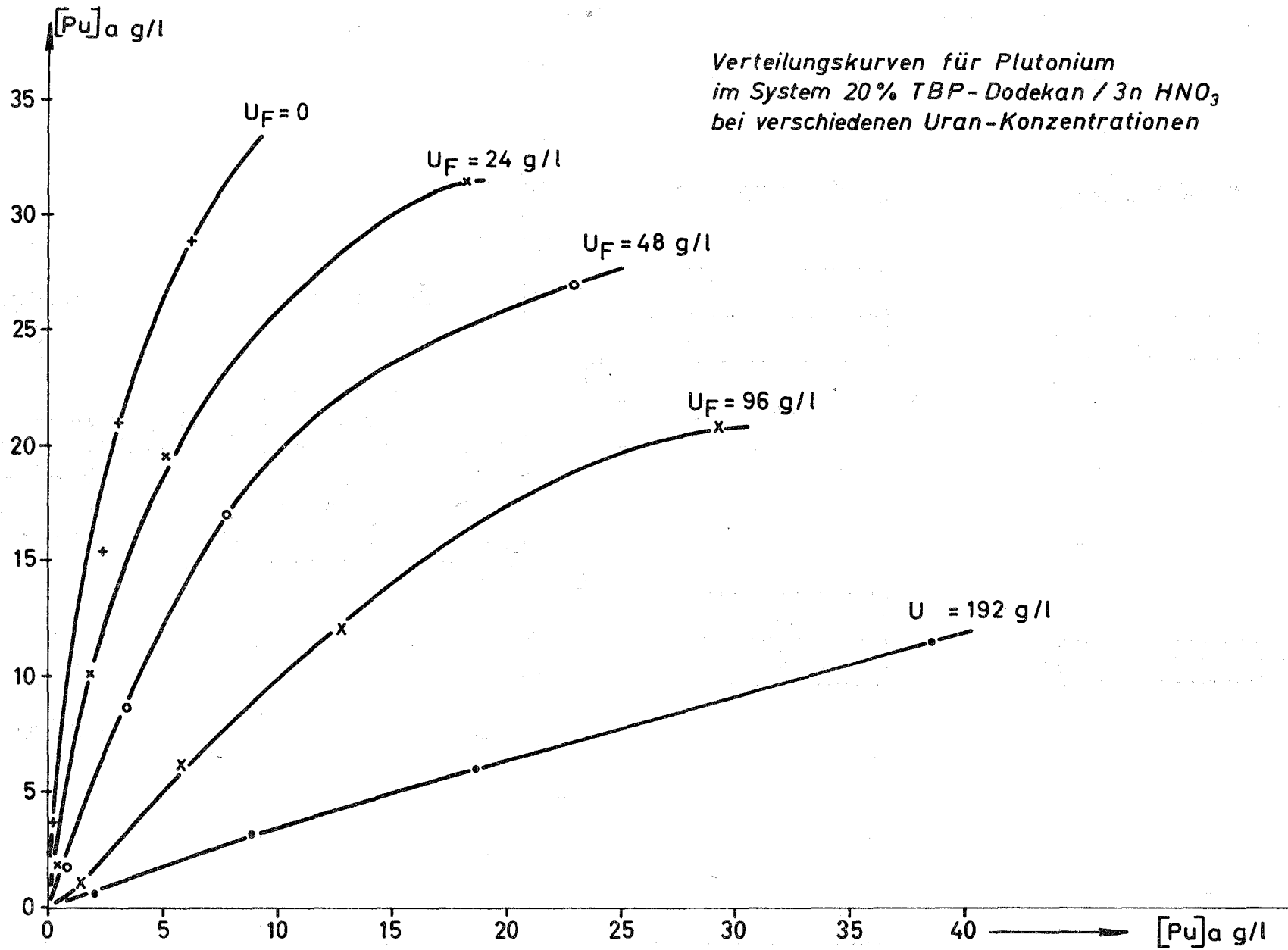
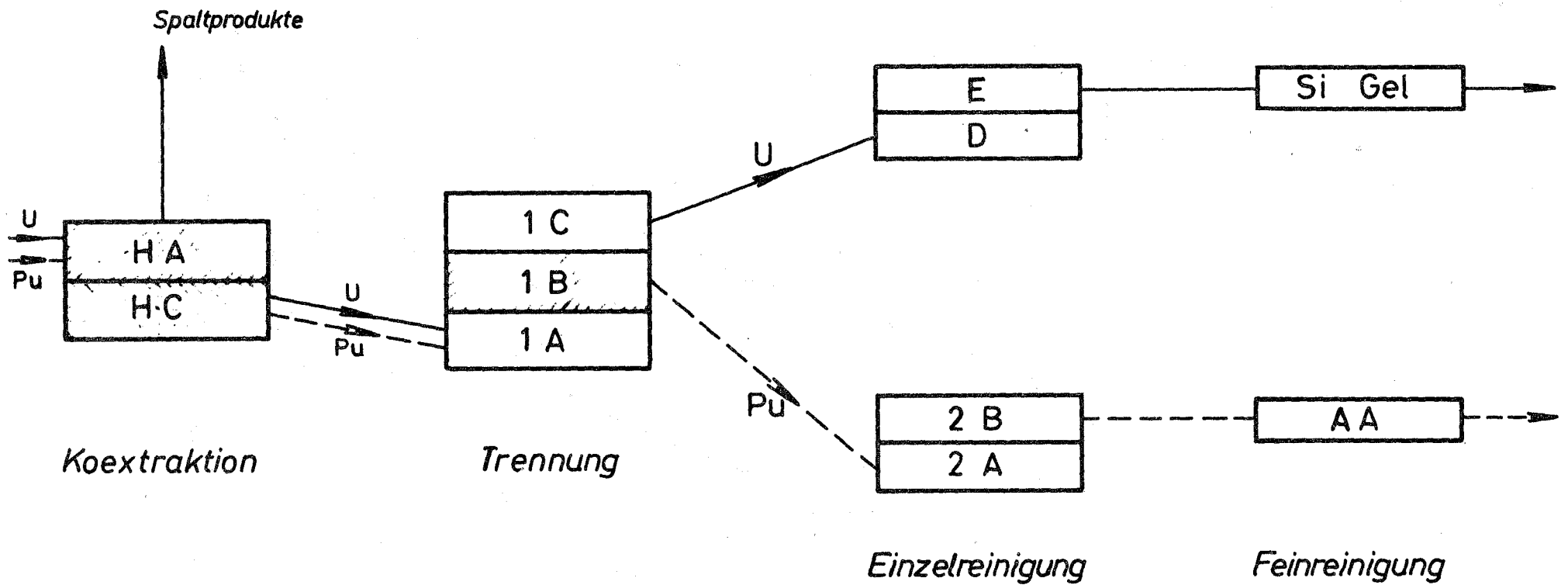


Abb. 1

Schema des Purexverfahrens



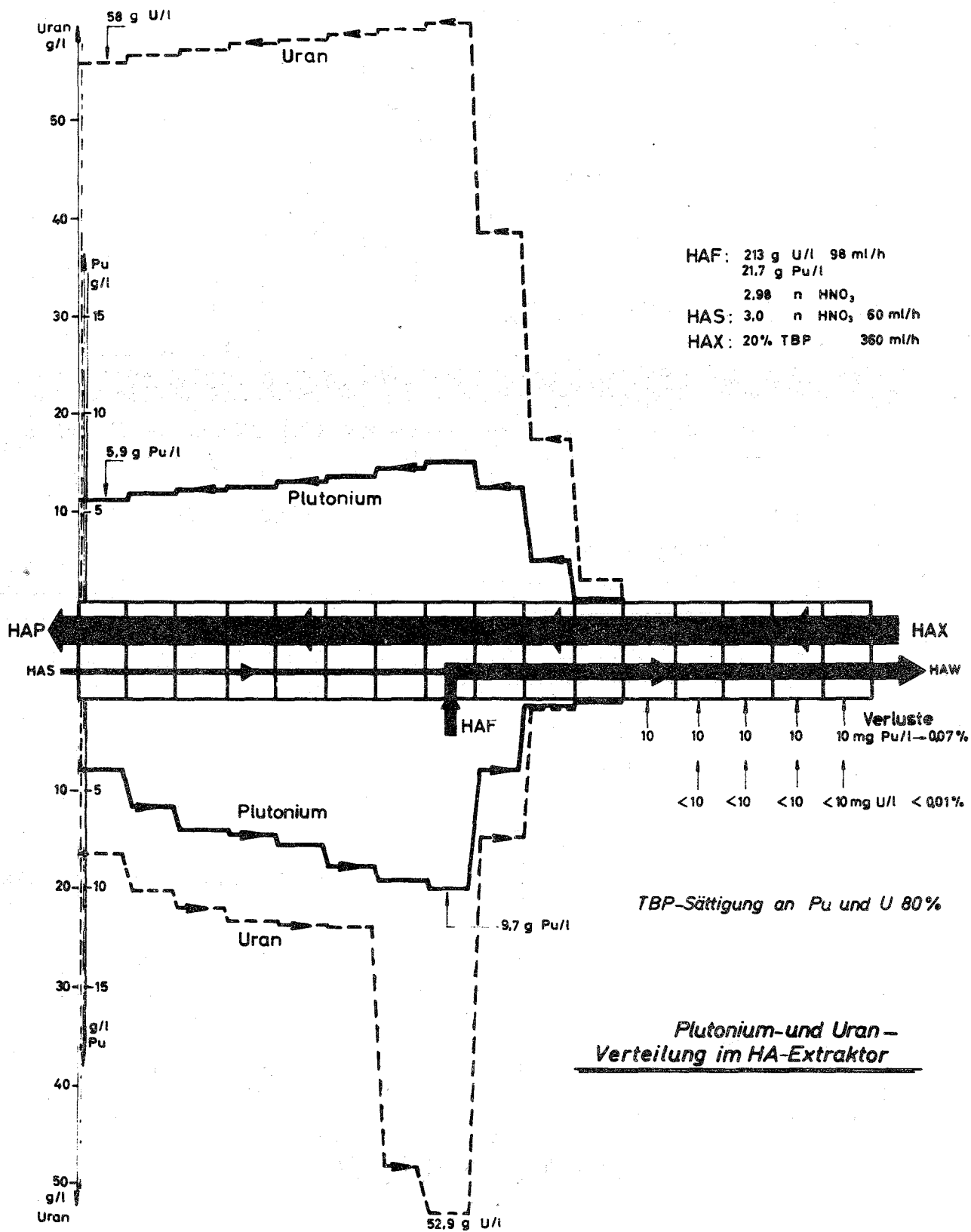


Abb. 3

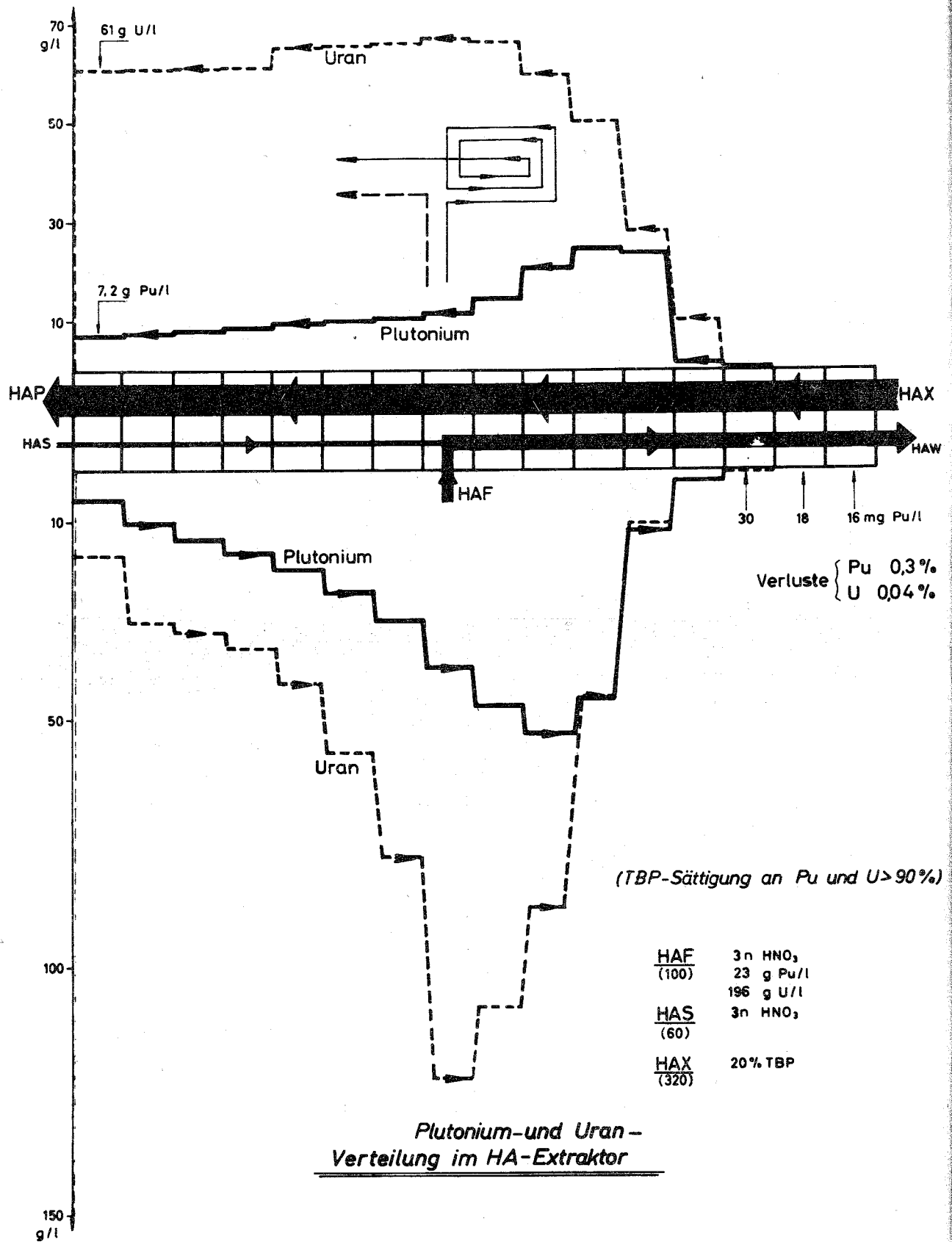


Abb. 4

Plutonium- und Uran-
Verteilung im HA-Extraktor

Plutonium- und Uran-
Verteilung im HC-Extraktor

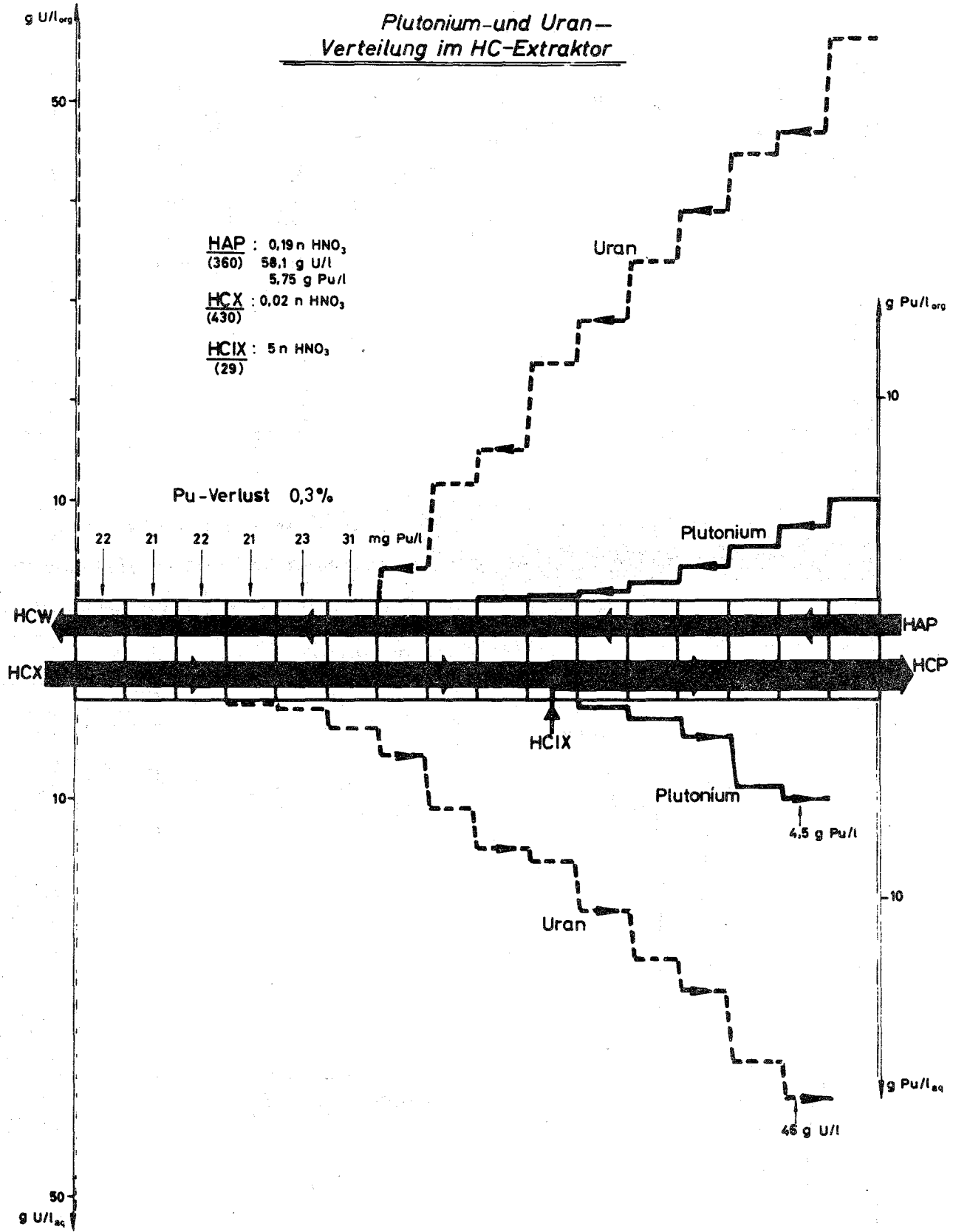


Abb. 5

(U > 90%)

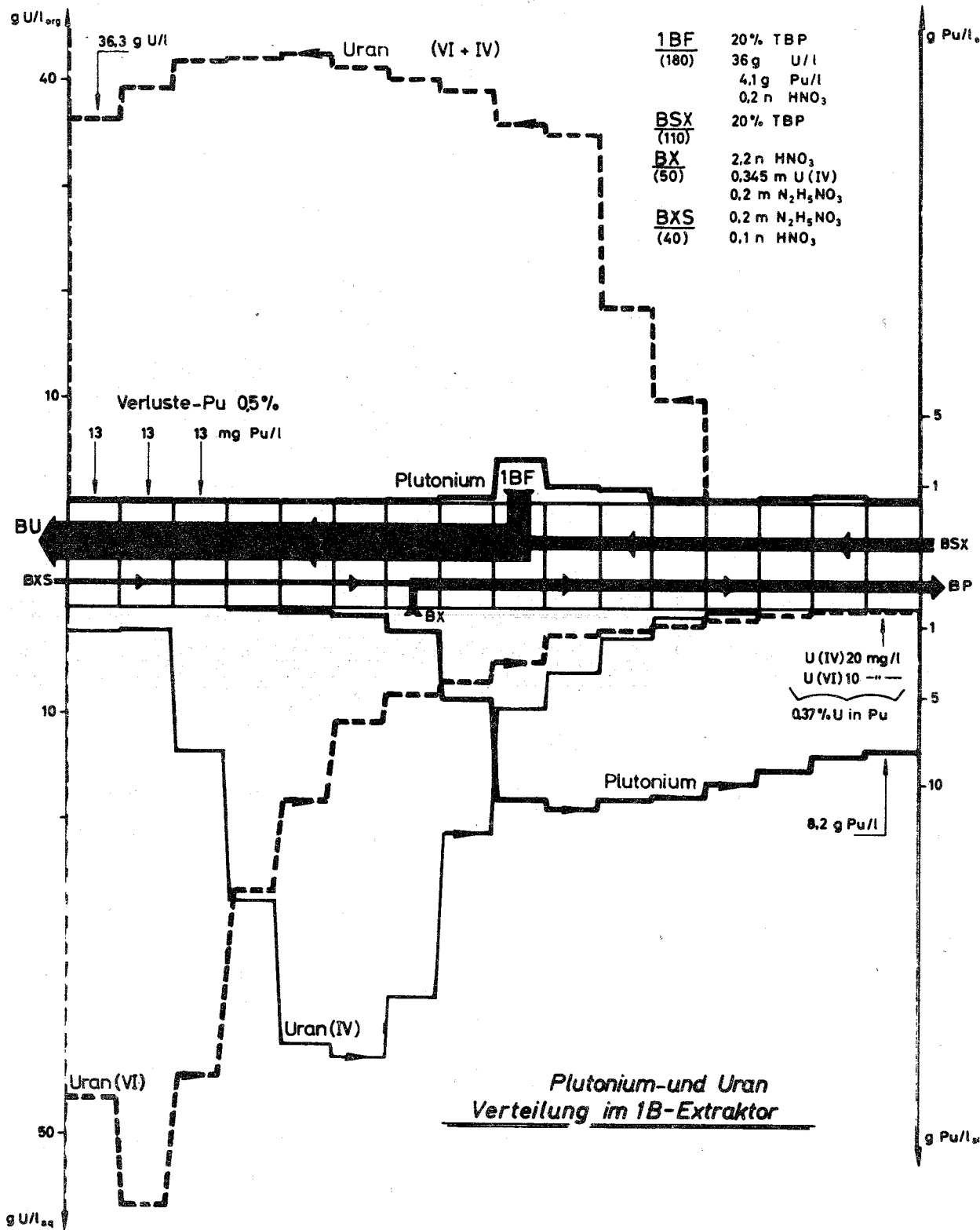
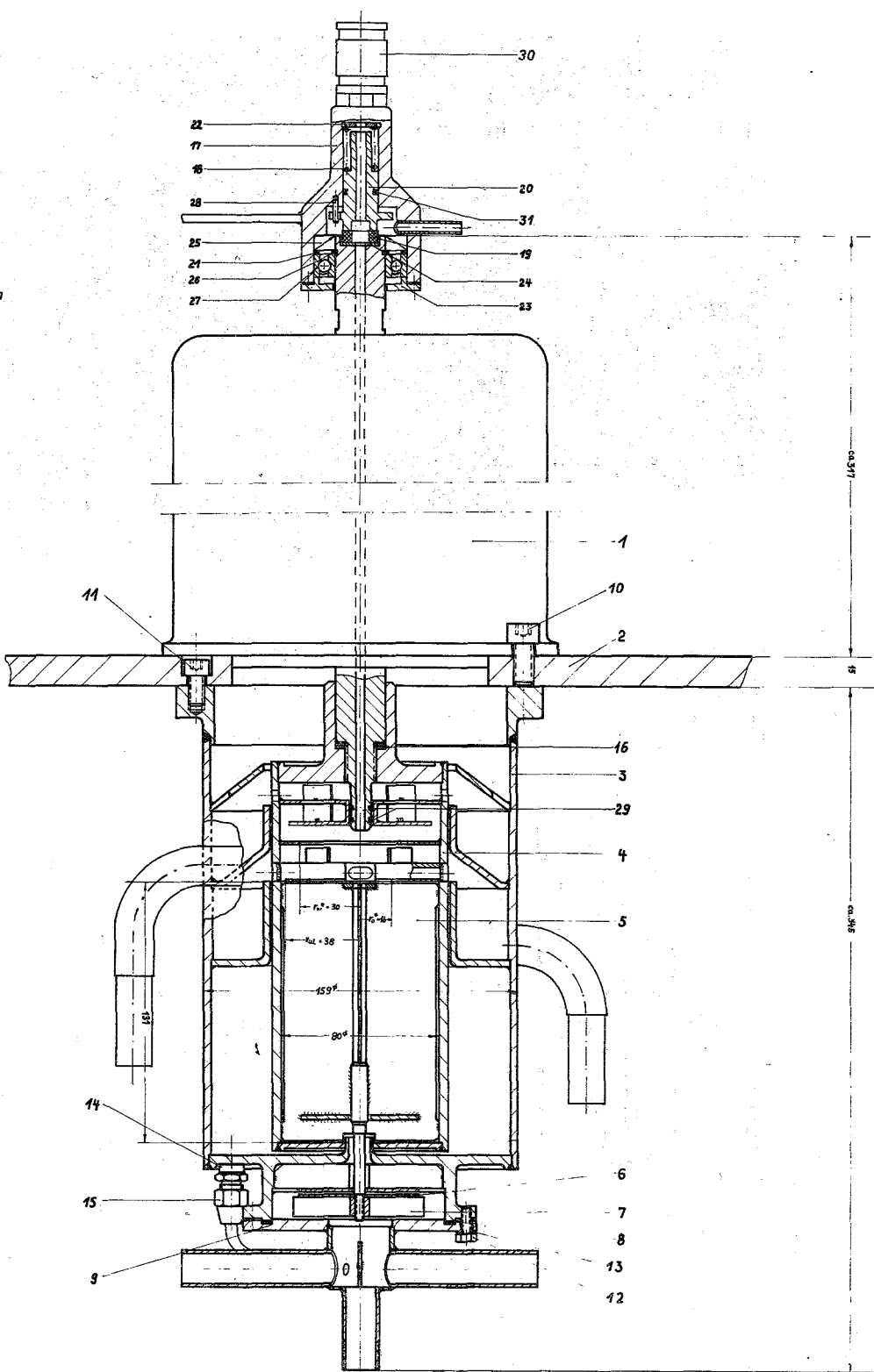


Abb. 6

Plutonium- und Uran
Verteilung im 1B-Extraktor

Für diese Zeichnung gelten die in der Tabelle angegebenen Maße für die Ausführung der Bauteile. Die Ausführung der Bauteile ist durch die Zeichnung eindeutig festgelegt. Die Ausführung der Bauteile ist durch die Zeichnung eindeutig festgelegt. Die Ausführung der Bauteile ist durch die Zeichnung eindeutig festgelegt.

$r_G^* = 16mm$
 $r_W^* = 30mm$
 $r_{ul} = 38mm$



Zentrifugal-Extraktor IV		HCH-1-193	
Teil	Bezeichnung	Material	Maße
1	Rotor	Alu	Ø 30 x 38
2	Rotorwelle	St 50	Ø 16
3	Lager	St 50	Ø 16 x 10
4	Lager	St 50	Ø 16 x 10
5	Lager	St 50	Ø 16 x 10
6	Lager	St 50	Ø 16 x 10
7	Lager	St 50	Ø 16 x 10
8	Lager	St 50	Ø 16 x 10
12	Lager	St 50	Ø 16 x 10
13	Lager	St 50	Ø 16 x 10
14	Lager	St 50	Ø 16 x 10
15	Lager	St 50	Ø 16 x 10
16	Lager	St 50	Ø 16 x 10
17	Lager	St 50	Ø 16 x 10
18	Lager	St 50	Ø 16 x 10
19	Lager	St 50	Ø 16 x 10
20	Lager	St 50	Ø 16 x 10
21	Lager	St 50	Ø 16 x 10
22	Lager	St 50	Ø 16 x 10
23	Lager	St 50	Ø 16 x 10
24	Lager	St 50	Ø 16 x 10
25	Lager	St 50	Ø 16 x 10
26	Lager	St 50	Ø 16 x 10
27	Lager	St 50	Ø 16 x 10
28	Lager	St 50	Ø 16 x 10
29	Lager	St 50	Ø 16 x 10
30	Lager	St 50	Ø 16 x 10
31	Lager	St 50	Ø 16 x 10

Abb. 7

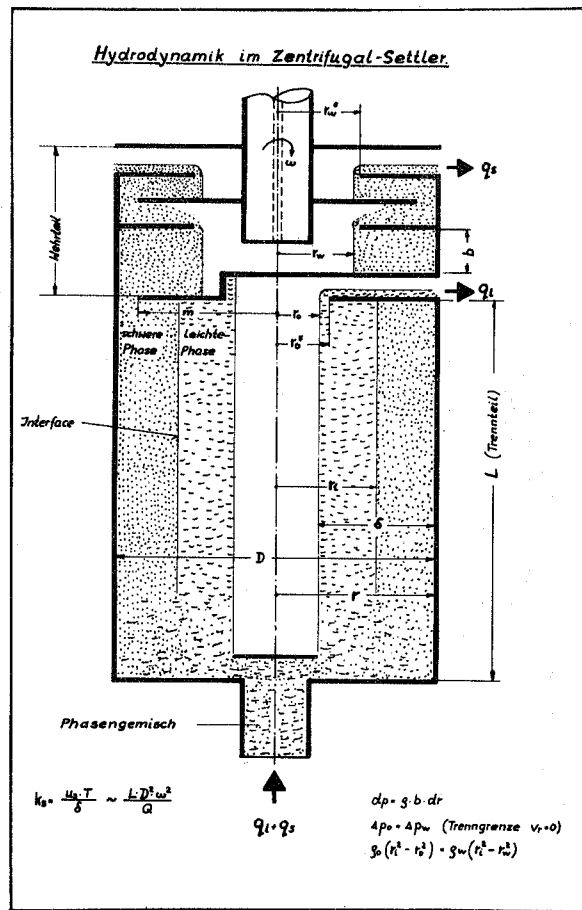


Abb. 8
Hydrodynamik im
Zentrifugal-Absetzer

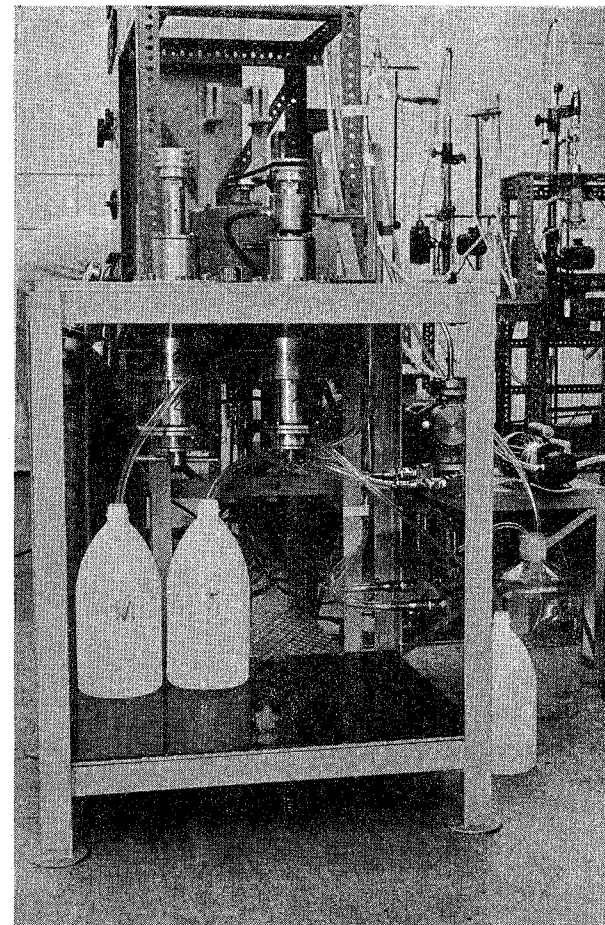


Abb. 9
Zentrifugal-Extraktor-
Versuchsstand (2 stufig)

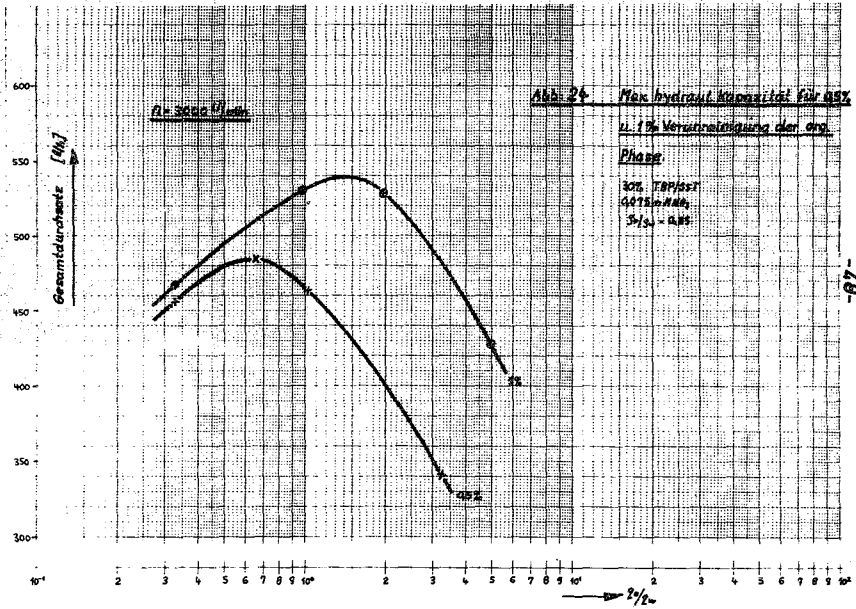


Abb. 10
Max. hydraulische Kapazität

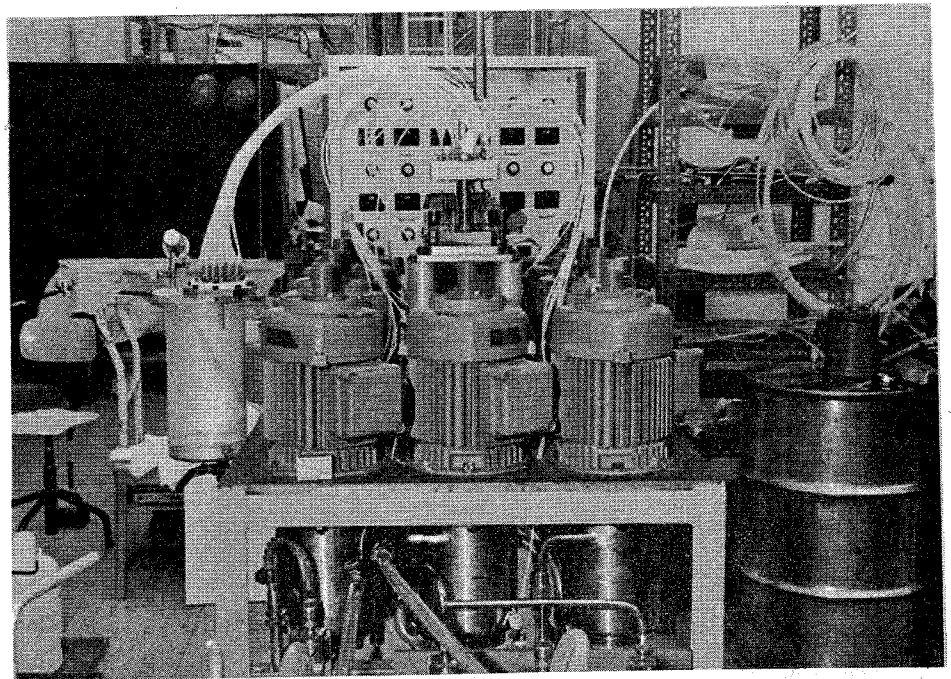
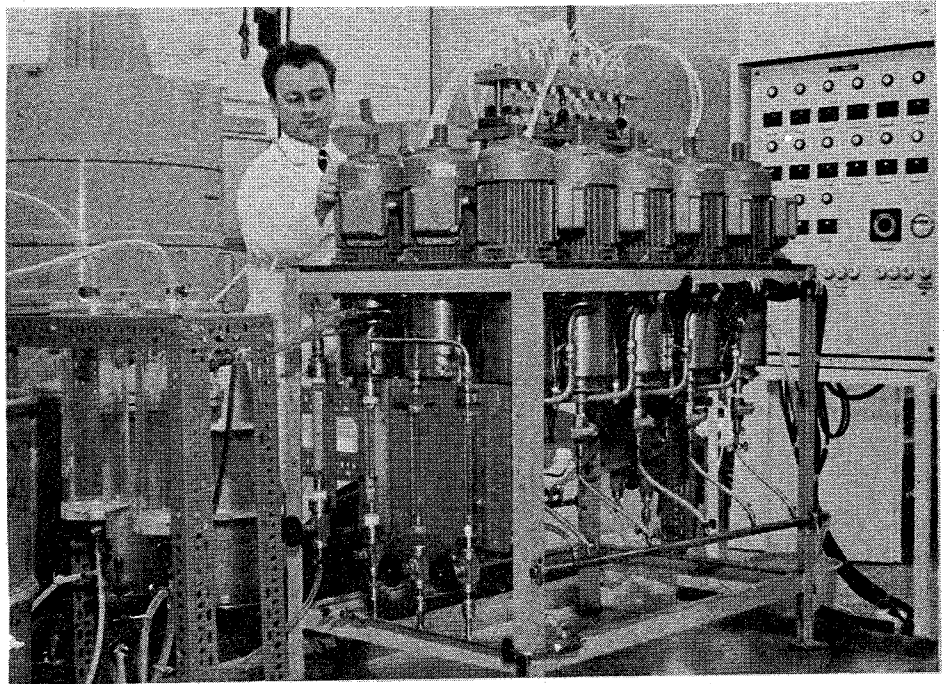


Abb. 11/12
12-stufige Zentrifugalextraktorbatterie

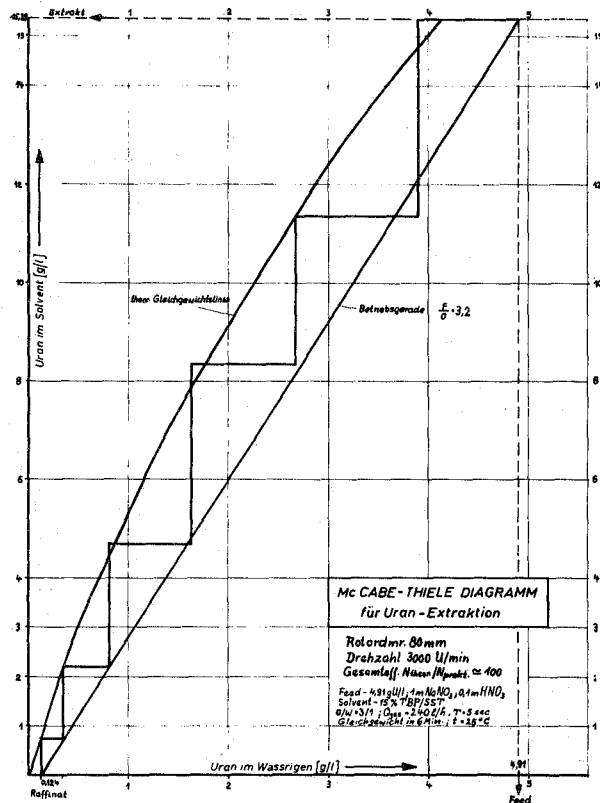


Abb. 13
 Mc. Cabe-Thiele-Diagramm
 der 12-stufigen Zentri-
 fugalextraktorbatterie

Größenvergleich von Zentrifugalextraktor und
 Mischer/Absetzer gleicher Kapazität

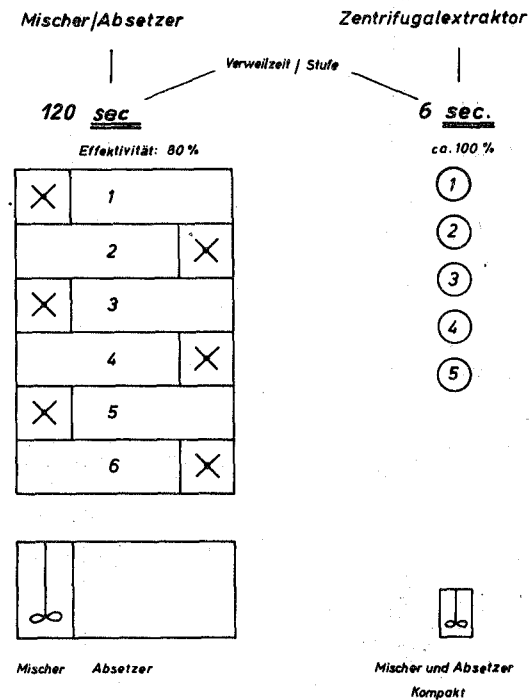


Abb. 14

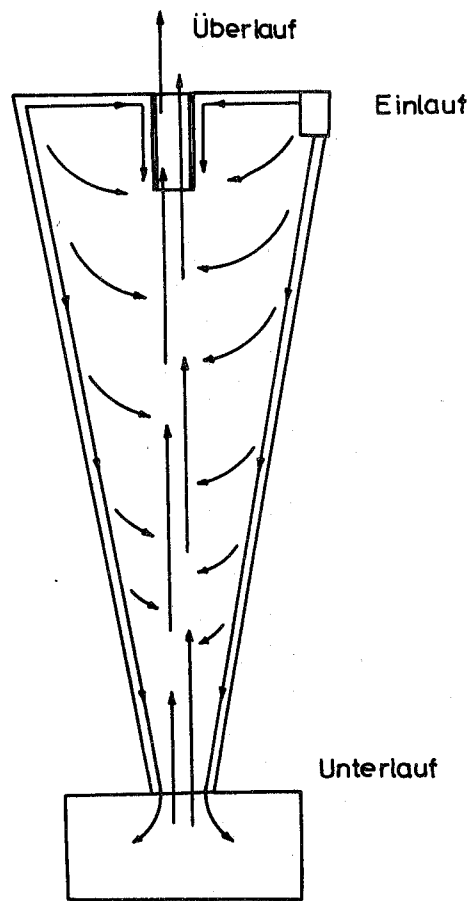


Abb. 15

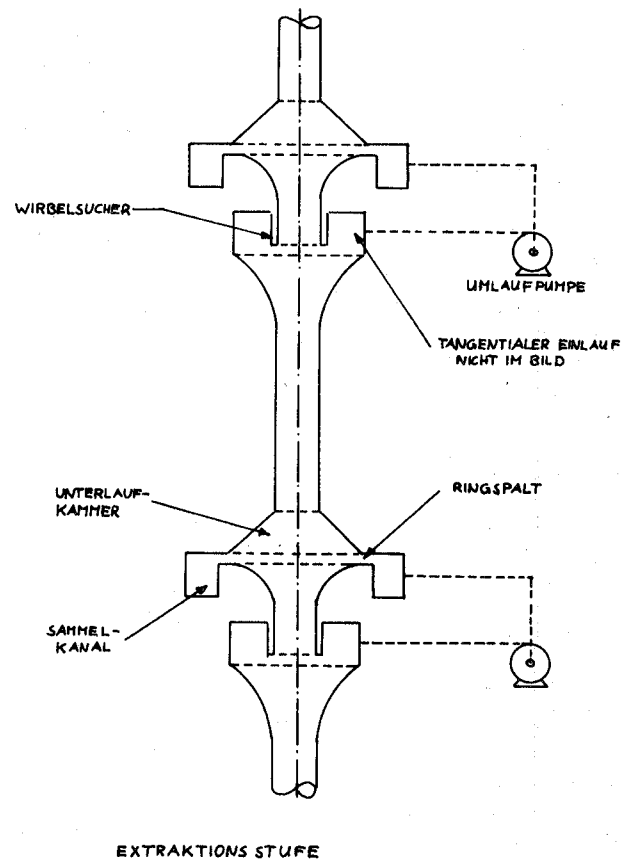


Abb. 16

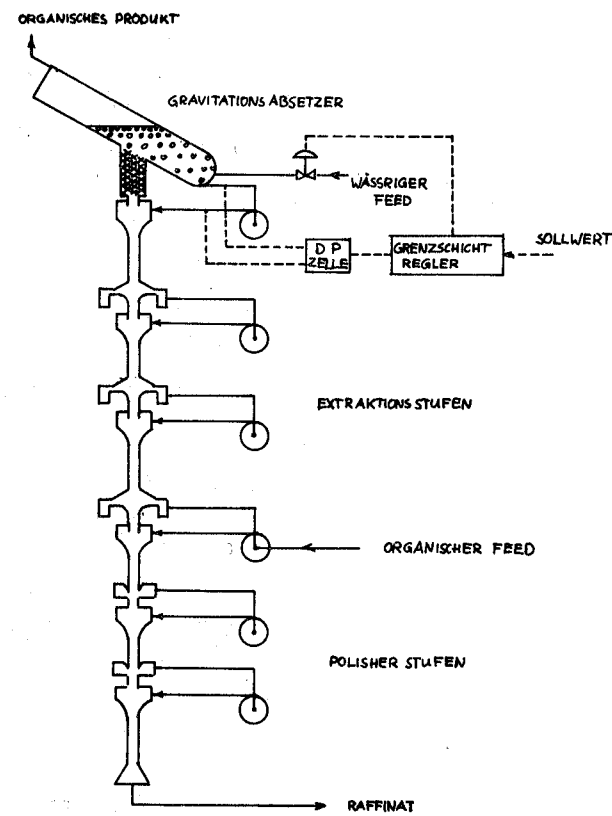


Abb. 17

FLUTUNGS GRENZEN

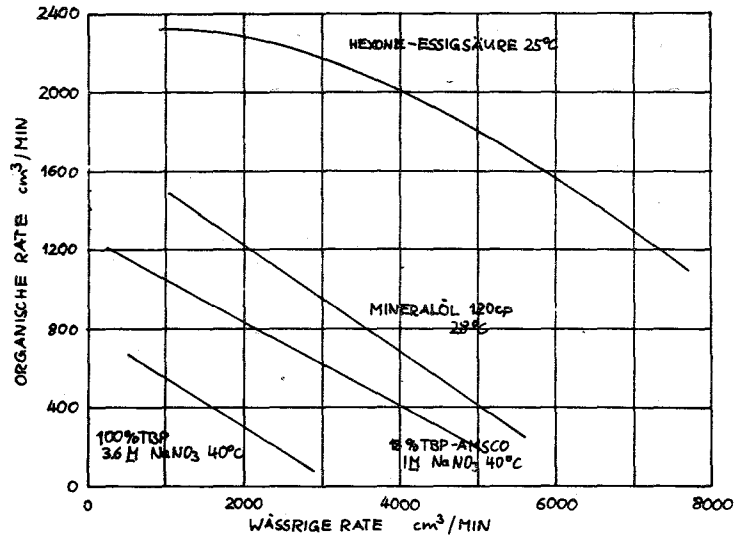
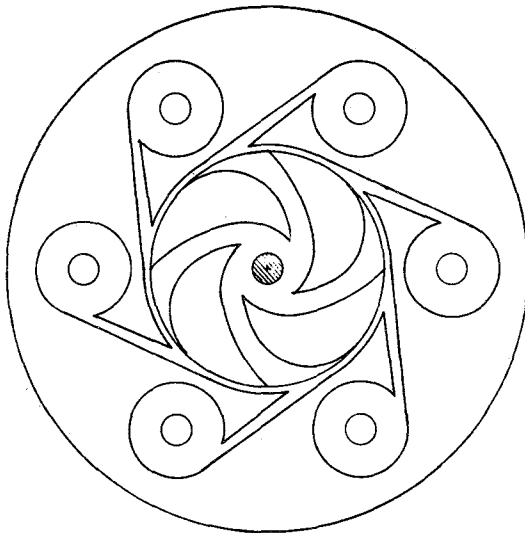


Abb. 18



INTEGRIERTER HYDROZYKLONEXTRAKTOR

Abb. 19