

KERNFORSCHUNGSZENTRUM

KARLSRUHE

Mai 1969

KFK 1008

Institut für Kernverfahrenstechnik

 $D_2^{O-Versorgung}$ nach dem $H_2^{/NH_3}$ -Zweitemperaturverfahren

E.W. Becker, G. Lang, U. Schindewolf



GESELLSCHAFT FUR KERNFORSCHUNG M.B.H.

KARLSRUHE



Sonderdruck aus Jhrg. XIV, Nr. 5, Mai 1969 atomwirtschaft atomtechnik 4

Verlag Handelsblatt GmbH 4 Düsseldorf, Kreuzstr. 21

D₂O-Versorgung nach dem H₂/NH₃-Zweitemperaturverfahren

Von E. W. Becker, G. Lang und U. Schindewolf, Karlsruhe

Schwerwasser-Kernkraftwerke haben den Vorteil, daß sie mit Natururan betrieben werden können. Neben den schnellen Brutreaktoren ergeben sie die beste Ausnützung des Uranvorrats und die höchste Plutonium-Produktionsrate. Eine Wiederaufarbeitung der verbrauchten Brennelemente ist für den wirtschaftlichen Betrieb von Schwerwasserreaktoren nicht erforderlich. Sie kann solange zurückgestellt werden, bis die Kosten für die Wiederaufarbeitung durch den Verkauf des Plutoniums an die Betreiber von schnellen Brutreaktoren gedeckt werden können.

Das Interesse an Schwerwasserkernkraftwerken hat in der letzten Zeit durch die Fortschritte beim Bau großer Reaktordruckgefäße beträchtlich zugenommen. Es erscheint heute möglich, Schwerwasserreaktoren in Einheiten von 600 MW_{el} und mehr zu bauen, wodurch ein Strompreis erwartet werden kann, der mit dem von Leichtwasserreaktoren konkurrieren kann.

Bisherige Versorgung mit D₂O

Ein Problem beim Aufbau der Schwerwasserreaktorlinie ist die Versorgung mit schwerem Wasser. Pro 100 MW_{el} installierter Leistung werden für die Erstausstattung etwa 80 t D2O benötigt. Der Ersatzbedarf ist demgegenüber unbedeutend.

Die USA haben in den Jahren 1950—52 für die Erstausstattung ihrer Plutonium-Produktionsreaktoren in Dana (Indiana) und Savannah River (South Carolina) je eine nach dem Schwefelwasserstoff-Verfahren arbeitende Schwerwasser-Produktionsanlage mit einer Jahreskapazität von je etwa 450 t D₂O errichtet [1]. Bei der Anlage in Dana wurde offenbar kein besonderer Wert auf lange Lebensdauer gelegt. Sie wurde schon 1957 stillgelegt und anschließend abgerissen. Auch bei der Anlage in Savannah River traten befrächtliche Korrosionsprobleme auf. Sie wurde im Jahre 1958 auf ein Drittel ihrer Kapazität reduziert. Mit der Restproduktion von etwa 150 t D₂O/Jahr und dem erzeugten Vorrat wurden bisher die meisten Forschungs- und Leistungsreaktoren der westlichen Welt versorgt.

In Kanada sind gegenwärtig zwei Schwefelwasserstoff-Anlagen

Anschrift der Verfasser:

Prof. Dr. E. W. Becker, Dipl.-Phys. G. Lang, Prof. Dr. U. Schindewolf. alle Institut für Kernverfahrenstechnik der Univ. und des Kernforschungszentrums Karlsruhe, 75 Karlsruhe, Postfach 3640. Auf Grund umfangreicher, mit einer Pilotanlage durchgeführter experimenteller Untersuchungen wurde eine Studie über die optimale Auslegung und Produktkosten einer H₂/NH₃-Zweitemperaturanlage mit Zweitemperatur-Abstreifsystem angefertigt, deren Ergebnisse in dieser Arbeit mitgeteilt werden. Mit den in der Bundesrepublik üblichen Energie- und Kapitalkosten ergibt sich für die betrachtete 100-jato-Anlage ein Gestehungspreis für das schwere Wasser, der deutlich unter dem des anderen Verfahrens liegt. Sollten bei weiterer Steigerung des Schwerwasserbedarfs die industriellen Wasserstoffquellen nicht ausreichen, kann das Verfahren durch Verwendung von Wasser als Ausgangsmaterial in seiner Kapazität beliebig erweitert werden.

mit je 400 jato D₂O im Bau (Glace Bay und Port Hawkesbury, Nova Scotia), mit deren Fertigstellung in diesem bzw. im nächsten Jahr gerechnet wird [2]. Wegen der erwarteten starken Zunahme des Schwerwasserbedarfs wird die Erstellung weiterer D₂O-Produktionsanlagen in Erwägung gezogen. Die beiden jetzt gebauten 400-jato-Anlagen stellen Weiterentwicklungen der US-amerikanischen Anlagen dar, wobei besonders durch Korrosionsinhibitoren die Lebensdauer der Anlageteile erhöht werden soll.

In der UdSSR, der Bundesrepublik Deutschland, der Schweiz, in Frankreich und in Indien wurden Schwerwasserproduktionsanlagen auf der Basis der Wasserstoffdestillation gebaut [3]. Von diesen Anlagen konnten aus wirtschaftlichen Gründen nur die jenigen in Betrieb gehalten werden, die in Kombination mit einer zur Vorkonzentrierung benutzten Wasserelektrolyse arbeiten. Die Kosten der Wasserelektrolyse werden dabei weitgehend von einem anderen chemischen Prozeß, z. B. der NH₂-Synthese, getragen. Da mit Wasserelektrolyse arbeitende chemische Prozesse nur an Stellen mit besonders niedrigen Stromkosten durchgeführt werden können, ist die Anwendbarkeit der Kombination von Wasserelektrolyse und Wasserstoffdestillation sehr begrenzt.

Möglichkeiten zur Anwendung von Wasserstoff-Austauschverfahren

In unserer Arbeitsgruppe haben wir uns seit längerer Zeit mit der Möglichkeit befaßt, die sehr viel größeren, durch Umsetzung von Kohle, Erdgas oder Erdöl erzeugten Wasserstoffmengen durch Anwendung von Hochdruck-Austauschverfahren für die Schwerwassergewinnung nutzbar zu machen. Unsere Bemühungen konzentrierten sich auf die Anwendung der Austauschsysteme Wasserstoff/Wasser [4, 5, 6] und Wasserstoff/Ammoniak [7] in einem Zweitemperaturverfahren. Gegenüber dem Austauschsystem H2S/H2O, das die Grundlage des ebenfalls nach dem Zweitemperaturprinzip arbeitenden Schwefelwasserstoff-Verfahrens ist (siehe oben), haben die mit Wasserstoff arbeitenden Systeme einmal den Vorteil eines wesentlich größeren elementaren Trennfaktors. Darüber hinaus bieten sie die Möglichkeit, die im Gleichgewicht an Deuterium verarmte Phase (Wasserstoff) als Ausgangsmaterial zu verwenden, wodurch die bei einem Zweitemperaturverfahren für eine bestimmte Produktionsleistung erforderlichen Materialströme im Vergleich zum Schwefelwasserstoff-Verfahren weiter erheblich reduziert werden [4]. Die relativ kleine Deuteriumausbeute des Zweitemperatur-Anreicherungssystems kann mit einem ZweitemperaturAbstreifsystem [8] ohne wesentliche Kostensteigerung bis auf etwa $80^{0}/_{0}$ erhöht werden.

Bei den mit Wasserstoff arbeitenden Austauschsystemen ist eine genügende Austauschgeschwindigkeit der Isotope nur mit Katalysatoren zu erreichen. Für das System Wasserstoff/Wasser wurde ein Platinsuspensionskatalysator entwickelt, der mit der flüssigen Phase umläuft [5]. Bei dem System Wasserstoff/Ammoniak konnte die von Claeys, Dayton und Wilmarth [9] gefundene katalytische Aktivität von in flüssigem NH3 gelösten KNH2 ausgenutzt werden. In beiden Fällen haben wir, in Zusammenarbeit mit der Fa. Friedrich Uhde GmbH., Dortmund, zunächst in einer Vorversuchsanlage geeignete Siebböden mit Überlaufwehren entwickelt, die dann in einer halbtechnischen, nach dem Zweitemperatur-Prinzip arbeitenden Hochdruck-Anreicherungsanlage zum Einsatz kamen [6, 7] (Abb. 1). Die Anreicherungsanlage wurde von Uhde auf dem Gelände der Farbwerke Hoechst AG. in Frankfurt/M.-Höchst errichtet und unter der Leitung von S. Walter betrieben. Bei beiden Austauschsystemen stimmten die in der Anreicherungsanlage erzielten Anreicherungsfaktoren innerhalb der Fehlergrenze mit den auf Grund der Vorversuche mit der Theorie von K. Bier [10] vorausberechneten Werten überein.

Die auf der Basis der erzielten experimentellen Ergebnisse durchgeführten Abschätzungen der Wirtschaftlichkeit der beiden Verfahren ließen im Fall des Zweitemperatur-Betriebes eine Überlegenheit des Systems H2/NH2 erwarten, bei dem mit keinerlei Korrosionsproblemen zu rechnen ist. Nach einer eingehenden Untersuchung über die Feinstreinigung des als Ausgangsmaterial zu verwendenden Wasserstoffs bzw. Synthesegases durch Wäsche mit flüssigem NH2 bzw. NH3/KNH2-Lösung [11] haben wir eine genauere Studie über die optimale Auslegung und die zu



Abb. 1: Ansicht der nach dem Zweitemperaturprinzip arbeitenden Versuchsanlage, mit der die Eignung der Austauschsysteme H_2/H_2O [6] und H_2/NH_3 [7] für die technische Schwerwassererzeugung erprobt wurde.

erwartenden Produktkosten einer mit dem System H2/NH3 arbeitenden Zweitemperatur-Anlage durchgeführt. Das Ergebnis dieser Studie wird im folgenden mitgeteilt. Es zeigt sich, daß bei einer Anlage mit einer Jahreskapazität von 100 t D2O, in der das Zweitemperaturprinzip sowohl für die Anreicherung als auch für die Abstreifung benutzt wird, mit den in der Bundesrepublik üblichen Energie- und Kapitalkosten ein Gestehungspreis für das Schwere Wasser von etwa 165 DM/kg erreicht werden kann. Dieser Wert liegt deutlich unter den für die anderen Verfahren bekannt gewordenen Preisen. Besonders bemerkenswert ist, daß sich der relativ niedrige Gestehungspreis bereits mit einer verhältnismäßig kleinen Produktionskapazität erzielen läßt, wodurch das finanzielle Risiko bei der Einführung der Schwerwasserreaktorlinie erheblich reduziert werden kann.

Nach der beschriebenen Methode ließen sich bei Ausnützung der Wasserstoffkapazitäten der größeren NH₃-Syntheseanlagen in der Bundesrepublik insgesamt etwa 400 jato schweres Wasser erzeugen. Damit könnte jedes Jahr ein neues 500-MW_{el}-Schwerwasserkraftwerk ausgerüstet werden. Durch die stufenweise Ausnützung der verschiedenen Wasserstoffquellen ließe sich die Schwerwassererzeugung auf besonders wirtschaftliche Weise dem allmählich steigenden Schwerwasserbedarf anpassen.

Sollten bei weiterer Steigerung des Schwerwasserbedarfs die industriellen Wasserstoffquellen nicht ausreichen, kann das H₂/NH₃-Zweitemperatur-Verfahren durch Verwendung von Wasser als Ausgangsmaterial in seiner Kapazität beliebig erweitert werden. Dazu wird die Anlage mit Wasserstoff betrieben, der im Kreis gefahren und dessen Deuteriumgehalt in einer Regenerierkolonne durch Isotopenaustausch mit Wasser bei hoher Temperatur und hohem Druck fortlaufend ergänzt wird. Die notwendige Beschleunigung des Isotopenaustausches läßt sich mit dem früher entwickelten Platinsuspensionskatalysator [5] oder mit verdünnter Natronlauge [12] erreichen.

Auch bei Einsatz einer Regenerierkolonne kann die Verwendung eines Zweitemperatur-Abstreifsystems vorteilhaft sein, da durch das Abstreifsystem die in der Regenerierkolonne umzusetzenden Materialströme vermindert werden. Die Ankoppelung an Wasser bedingt zwar ein um etwa 35% höheres spezifisches Anlagevolumen und eine entsprechende Steigerung des spezifischen Energieverbrauches. Dieser Nachteil wird sich aber in den Schwerwasserkosten kaum bemerkbar machen, da infolge der Kostendegression bei steigender Anlagengröße die einzelnen Anlageteile spezifisch billiger werden und der Mehrverbrauch an Energie durch die gewonnene Freiheit bezüglich der Wahl des Standortes (niedrigere Energiepreise) kostenmäßig aufgefangen werden kann.

In Mazingarbe (Frankreich) wurde in der Zwischenzeit eine mit dem System H_2/NH_3 arbeitende *Eintemperctur*anlage mit einer Jahreskapazität von etwa 25 t D₂O iu Betrieb genommen [13]. Die ebenfalls etwa 80% betragende Deuteriumausbeute dieser Anlage wird durch beidseitige Phasenumkehr mit Ammoniaksynthese bzw. Ammoniakspaltung erreicht. Neuerdings befaßt sich auch die französische Gruppe mit der Möglichkeit, das Austauschsystem H₂/NH₃ in einer Zweitemperaturanlage anzuwenden [14].

In den letzten Jahren ist auch von der kanadischen Atomenergiekommission eine Studie angefertigt worden [2], die zu einem für das H2/NH3-Zweitemperaturverfahren sehr günstigen Ergebnis kommt.

Prinzip der Zweitemperatur-Anreicherungsanlage mit Zweitemperatur-Abstreifsystem

Das den Wirtschaftlichkeitsbetrachtungen zugrunde gelegte Anlagenschema ist in Abb. 2 wiedergegeben.



Abb. 2: Schema der den Wirtschaftlichkeitsbetrachtungen zugrunde gelegten Zweitemperatur-Anreicherungsanlage mit Zweitemperatur-Abstreifsystem. Die angegebenen Stromstärken gelten für eine Jahresproduktion von 100 t D₂O.

Das als Ausgangsmaterial vorgesehene Synthesegas durchläuft, zusammen mit einem etwa gleich großen im Kreislauf durch alle Kolonnen geführten Synthesegasteilstrom, zunächst die heiße und die kalte Kolonne K_2 und K_1 des Anreicherungssystems. In der heißen Kolonne K2 wird der D-Gehalt des aufwärtsströmenden Gases auf Kosten des entgegenströmenden D-reichen Ammoniaks erhöht. In der kalten Kolonne K1, in die D-armes Ammoniak sowohl aus der heißen Kolonne K2 als auch aus der kalten Abstreifkolonne K1 eingespeist wird, gibt das angereicherte Synthesegas seinen D-Uberschuß wieder an das Ammoniak ab. Durch den D-Aufwärtstransport mit dem Gas in der heißen Kolonne und den D-Abwärtstransport mit dem Ammoniak in der kalten Kolonne ergibt sich zwischen beiden Kolonnen eine D-Anreicherung in beiden Phasen. Auf Grund der Isotopenentnahme zwischen K1 und K2 ist der K1 verlassende Gasstrom gegenüber dem in K2 eingespeisten Gas an D verarmt. Bei den in der Praxis anwendbaren Kolonnentemperaturen (K₁ —20 bis —30° C, K₂ 50 bis 70° C) ist die Ausbeute des einfachen Heiß-Kalt-Anreicherungskolonnenpaares auf 30-40% beschränkt.

Zur Ausbeuteerhöhung wird das bereits an D verarmte Synthesegas aus K₁ durch die kalte Abstreifkolonne $\overline{K_1}$ geschickt, in der sein D-Gehalt durch Gegenstrom mit D-armem Ammoniak aus der heißen Abstreifkolonne $\overline{K_2}$ weiter vermindert wird (hier auf 20%) der Ausgangskonzentration). Der die Kolonne $\overline{K_1}$ verlassende Gasstrom wird aufgespalten: ein dem Ausgangsstrom entsprechender Teilstrom wird an das Synthesegaswerk zurückgegeben, der Reststrom wird in der heißen Abstreifkolonne $\overline{K_2}$ wieder bis zur Ausgangskonzentration angereichert, bevor er zusammen mit dem Ausgangsgas in die heiße Anreicherungskolonne K₂ eingespeist wird.

Die zwischen dem Kopf der heißen und dem Fuß der kalten Anreicherungskolonne (K_2 bzw. K_1) erzielte Deuteriumanreicherung kann durch Verlängern der Kolonnen im Prinzip beliebig gesteigert werden. Zur Verminderung der Investierungskosten und der zum Aufbau des stationären Konzentrationsprofils erforderlichen Zeit wird in der Praxis die von K_1 und K_2 bewirkte Anreicherung jedoch auf einen Faktor 5 bis 10 beschränkt. Die weitere Anreicherung erfolgt in zwei zusätzlichen Heiß/Kalt-Kolonnenpaaren K_4/K_3 und K_6/K_5 mit vermindertem Durchsatz. Für die Hochkonzentrierung kann wegen der vergleichsweise geringen zu verarbeitenden Materialströme ein spezifisch teureres, dafür aber besonders betriebssicheres Verfahren gewählt werden. Infrage kommt vor allem die Wasser- bzw. Ammoniakdestillation.

Die untersten Abschnitte der Kolonnen K₁, K₂ und K₂ haben die Funktion von Direktwärmetauschern (DWT). Sie werden, außer von den Prozeßströmen, von den Ammoniak-Hilfsströmen q₁, q₂ und q₂ durchflossen. Diese Hilfsströme übertragen in den Wärmetauschern WT_{1,2} und WT<u>1,2</u> die durch den Synthesegasstrom von der Kolonne K₂ in die Kolonne K₁ überführte, an dieser Stelle nicht kompensierbare Wärme auf die unteren Enden der Kolonnen K₂ und K₂. Der Ammoniakhilfsstrom q₁ wird in dem Wärmetauscher WT_G durch den an das Ammoniakwerk zurückzugebenden Synthesegasstrom weiter abgekühlt. Die Endtemperatur von q₁ wird in dem Wärmetauscher WT_K mit einer Kältemaschine so eingeregelt, daß sich in der kalten Kolonne K₁ die vorgesehene Temperatur T₁ ergibt. Zwischen den auf verschiedenen Temperaturniveaus arbeitenden Wärmetauschern WT_{1,2} und WT_{1,2} kann ein Teil der Überschußwärme im Wärmetauscher WT_W mit Kühl wasser abgeführt werden. Die vorgesehene Temperatur T₂ der heißen Kolonnen K₂ und K₂ wird durch weitere Wärmezufuhr über die Wärmetauscher WT_D mit Dampf eingestellt.

Der mit dem Ausgangsgas aus der Feinstreinigungsanlage [11] eingeschleppte Ammoniakstrom wird in dem Verdampfer KM bei niedrigem Druck aus dem die Abstreifkolonnen überbrückenden NH₈-Teilstrom abgepumpt und in die Reinigungsanlage zurückgeleitet [15]. Der mit hoher Temperatur anfallende Ammoniak-Teilstrom kühlt sich dabei soweit ab, daß er ohne Wärmeaustausch auf den Kopf der kalten Kolonne K₁ gegeben werden kann.

Wirtschaftlichkeitsberechnung für eine 100-jato-Anlage

Die angenommene Jahreskapazität von 100 t D₂O entspricht bei einer D-Ausbeute von $80^{9}/_{0}$, einer Betriebszeit von 8000 h/a und einem Deuteriumgehalt des Synthesewasserstoffs von 125 ppm¹) einer Ammoniak-Tagesproduktion von 1700 t. Ammoniakfabriken dieser Größenordnung gibt es an verschiedenen Stellen der Welt.

 Tabelle 1: Bei der Wirtschaftlichkeitsberechnung benutzte Kostenfaktoren

Kapitaldienst	; (z	ei	tlic	h	ko	ns	ta	nt).					۰.			•	•		17,6 %/a
Elektrische E	ne	rg	ie	·	٠	٠	•	•	·	•	·	•	·	·	·	•	·	•	·	0,04 DM/kWh
Kühlwasser.	:	:	1	:	:	:		:	:	÷	:	:	:	:	:	:	1	:	:	0,03 DM/m ³
Kalium	·	•	•	•	·	•	•	٠	•	•	٠	٠	•	•	•	٠	٠	۶	·	25,— DM/kg

Die Optimalrechnung wurde mit den bei den Labor- und Pilotversuchen [7] gewonnenen experimentellen Daten unter Benutzung der in Tab. 1 zusammengestellten Kostenfaktoren durchgeführt. Für die Kolonnenlängen wurde ein Sicherheitszuschlag von 15% vorgesehen. Es wurde angenommen, daß das Synthesegas mit 40° C unter 300 at zur Verfügung steht und unter gleichem Druck an das Ammoniakwerk zurückgegeben werden muß [16]. Als optimale Temperaturen für die heißen und kalten Kolonnen ergaben sich 60° C bzw. — 25° C. Die Anreicherung in der H $_2$ /NH $_3$ -Anlage nach Abb. 2 wurde auf 10 Atom-% D begrenzt. Die erforderlichen Materialströme sind in Abb. 2 angegeben.

¹) Der D-Gehalt des Synthesegases ist niedriger als der von natürlichem Wasser (ca. 150 ppm), D-Verluste des Wasserstoffs ergeben sich bei der mit Wasserdampfüberschuß ablaufenden Erdgas- oder Erdölspaltung und der sich anschließenden CO-Konvertierung. Das D reichert sich dabei durch Isotopenaustausch im Wasserdampf an, Die D-Verluste können durch Rückführung des Kondenswassers in den Prozeß vermieden oder wenigstens vermindert werden.

In Tab. 2 sind die errechneten Abmessungen und die durch Anfragen bei der Industrie ermittelten Preise der Hochdruckkolonnen einschließlich Flansche und Einbauten zusammengestellt. Die gesamten Kolonnenkosten betragen demnach 17,7 Mio. DM.

Die weitere Kalkulation zeigte, daß die nächst teureren Anlagenelemente die Wärmetauscher sind. Ihr Gesamtwert beträgt jedoch nur etwa 15% des Kolonnenwertes. Die Kolonnen können damit als finanzielle Hauptpositionen im Sinne von Kölbel und Schulze [17] angesehen werden, so daß alle Nebenpositionen wie Wärmetauscher, Rohrleitungen, Pumpen, Ventile, Meß- und Regeleinrichtungen zusammen mit den Gebäude-, Montage- und sonstigen Nebenkosten mit hinreichender Genauigkeit durch einen globalen Zuschlag erfaßt werden können. Nach den bei Destillationsanlagen gemachten Erfahrungen wurde der Zuschlag mit 200% der Kolonnenkosten angesetzt. Damit ergibt sich ein Gesamtpreis der Anlage von 53 Mio. DM.

Die Betriebskosten der Anlage werden überwiegend durch den Energieverbrauch bestimmt. Elektrische Energie ist vor allem für den Antrieb der Gasgebläse, der Kältemaschinen und der Flüssigkeitspumpen erforderlich. Die Anlage benötigt eine Netto-Anschlußleistung von 7 MW. Für die Restaufheizung der in die heißen Kolonnen eintretenden Gasströme sind 28 t Dampf pro Stunde erforderlich. Der Kühlwasserbedarf beträgt 2100 m³/h.

Tabelle 2: Kolonnendimensionen und Preise einschließlich Einbauten und Flansche

Bezeichnung der Kolonne in Abb. 2	innerer Durchmesser (m)	innere Länge einschl. DWT (m)	Preis (10 ^s DM)
K ₁	2,5	80	6,3 2 5
$\frac{\mathbf{K}_{2}}{\mathbf{K}_{1}}$	2,5	51	4,0
$\overline{\mathbf{K}}_{2}$	1,9 1.0	39 80	2,0 1.7
K K	1,0 0.4	31 105	0,65 0.41
K ₆	0,4	35	0,14
		Summe	17,70

Da die Schwerwasseranlage in Verbindung mit einer Ammoniaksyntheseanlage betrieben wird, ist der auf die Schwerwasseranlage entfallende zusätzliche Personalbedarf verhältnismäßig gering. Für den Betrieb in drei Schichten werden insgesamt 20 Facharbeiter und 4 Ingenieure als erforderlich angenommen.

Ein verhältnismäßig großer Betriebskostenanteil ergibt sich noch durch den Chemikalienverbrauch der Gasreinigung. Wie früher gezeigt wurde [11], lassen sich zwar CO₂- und H₂O-Spuren aus dem Synthesegas durch Waschen mit flüssigem Ammoniak ohne nennenswerte Kosten praktisch vollständig entfernen. Für die Beseitigung der CO- und O₂-Spuren ist jedoch nach der bisherigen Konzeption eine Nachwäsche mit kaliumamidhaltigem flüssigen Ammoniak erforderlich, bei der eine der durchgesetzten CO- bzw. O₂-Menge äquivalente Kaliummenge fortlaufend eingesetzt werden muß. Bei einem angenommenen Restgehalt an CO und O₂ von 15 bzw. 7,5 ppm ergibt sich ein Kaliumbedarf der Anlage von 6,5 kg/Stunde.

In Tab. 3 sind die mit den genannten Aufwandsgrößen und den in Tab. 1 zusammengestellten Kostenfaktoren berechneten Kostenanteile pro kg D2O zusammengestellt. Als Summe ergibt sich der Gestehungspreis von 1 kg D2O zu 165,— DM.

Im Jahre 1962 haben *Proctor* und *Thayer* [18] Konstruktionspläne und Wirtschaftlichkeitsanalysen für eine fortgeschrittene, nach dem Schwefelwasserstoffverfahren arbeitende 200-jato-Schwerwasseranlage veröffentlicht. Die Autoren erwarten eine spezifische Investierung von etwa

 Tabelle 3: Gestehungskosten pro kg D2O, berechnet mit den in

 Tabelle 1 zusammengestellten Kostenfaktoren

Kapitaldienst Personalkosten Strom Dampf Kalium Kühlwasser	· · · · · · · · · · · · · · · · · · ·	· · · ·	· · · · · · · · · · · · · · · · · · ·	· · · · · · · · · · · · · · · · · · ·	· · · · · · · · · · · · · · · · · · ·	• • • • • •	· · · · · · · · · · · · · · · · · · ·	· · · · · · · · · · · · · · · · · · ·	93,— DM 6,— DM 22,40 DM 17,60 DM 13,— DM 5,— DM
Hochanreicherung	und	Sonst	iges.	• •		• •	• •		8,— DM
Summe	• •		• •	• •		• •	•••	• •	165,— DM

148 \$/(kg D2O/a), einen spezifischen Stromverbrauch von etwa 265 kWh/kg D2O und einen spezifischen Dampfverbrauch von etwa 11 t/kg D2O. Mit den von uns benutzten, in Tab. 1 zusammengestellten Kostenfaktoren würde sich damit ein Gestehungspreis für das schwere Wasser von über 200 DM/kg ergeben. Dabei wurde nicht berücksichtigt, daß das H2S-Verfahren Dampf unter 24 ata, also spezifisch teureren Dampf als das H2/NH3-Verfahren benötigt.

DK 621.039.532.46.001.5/.6(43)

Literatur

- W. P. Bebbington, J. F. Proctor, W. C. Scotten und V. R. Thayer, Proc. 3. Genfer Konferenz (ICPUAE) 1964, Bd. 12, S. 334, United Nations, New York 1965.
- [2] A. R. Bancroft, AECL 3044 (1968).
- [3] Vgl. E. W. Becker: Heavy Water Production, IAEA Rev. Series, No 21, Wien 1962.
- [4] E. W. Becker, Z. Angew. Chem. 68, S. 6 (1956).
- [5] E. W. Becker, R. P. Hübener, R. W. Kessler, Z. Chem.-Ing.-Techn. 30, S. 288 (1958).
- [6] S. Walter, E. Nitschke, C. Bode, E. W. Becker, R. P. Hübener, R. W. Kessler, U. Schindewolf, Z. Chem.-Ing.-Techn. 34, S. 7 (1962).
- [7] S. Walter, U. Schindewolf, Z. Angew. Chem. 77, S. 620 (1965); Z. Chem.-Ing.-Techn. 37, S. 1185 (1965).
- [8] E. W. Becker, DBP 1 032 233 (einger. 30. 4. 1956, erteilt 22, 1, 1959).
- [9] Y. Claeys, J. Dayton, W. K. Wilmarth, J. Chem. Phys. 18, S. 759 (1950).
 Diana and A. Santara M. Okt. (2014) 573 dia Schwarzen and A. Santara M. Chem. 2014 (2014) 573 dia Schwarzen and A. Santara M. Schwarzen and A. Santara M. Schwarzen and A. Santara M. Schwarzen and Schwarzen an

Die Verwendung des Systems Hs/NHs/KNHz für die Schwerwassergewinnung wurde von J. Bigeleisen vorgeschlagen. BNL-Document C-4027 (1950). Weitere, von anderen Autoren im Labormaßstab durchgeführte Untersuchungen über dieses System sowie Pläne zu seiner Benutzung für die Schwerwasser-Anreicherung sind in [7] und [3] zitiert.

- [10] K. Bier, Z. Chem.-Ing.-Techn. 28, S. 625 (1956); 31, S. 22 (1959).
- [11] U. Schindewolf und J. Hornke, Z. Chem.-Ing.-Techn. 41, im Druck (1969).
- [12] U. Schindewolf, Deutsche Patentanmeldung G 44 487 IV a/12 i vom 21. 8. 1965. U. Schindewolf, J. Hornke, Z. Chem.-Ing.-Techn. 40, S. 29 (1968).
 Die katalytische Aktivität von Alkalilauge für den Isotopenaustausch zwischen Wasserstoff und Wasser wurde von K. Wirtz und K. F. Bonhoeffer gefunden; Z. Physik. Chem. 177 A, 1 (1936).
- [13] E. Roth, B. I. S. T. Commissariat à l'Énergie Atomique, 123, Febr. 1968, S. 3; B. Lefrançois, ebenda S. 11; J. Le Chatelier, ebenda S. 21.
- [14] M. Rostaing, B. I. S. T. Commissariat à l'Énergie Atomique 123, Febr. 1968, S. 27.
- [15] S. Walter und U. Schindewolf, Deutsche Patentanmeldung U 10 838 IV a/12 i 1964.
- [16] Durch Einführung einer Übertragungskolonne (E. W. Becker, DBP 1 038 542, einger. 8. 12. 1956, erteilt 5. 3. 1959) lassen sich die Betriebsbedingungen der Schwerwasser-Anlage von den Betriebsbedingungen des Wasserstoff-Erzeugers weitgehend entkoppeln. U. a. kann die Schwerwasseranlage mit reinem Wasserstoff betrieben werden, während die Übertragungskolonne von Synthesegas durchströmt wird. Bei geeigneter Dimensionierung der Übertragungskolonne können die spezifischen Aufwandsgrößen der gesamten Trennanlage merklich kleiner sein als die einer Anlage ohne Übertragungskolonne [10].
- [17] H. Kölbel u. J. Schulze, Projektierung und Vorkalkulation in der chemischen Industrie, Springer Verlag, Heidelberg 1960.
- [18] J. F. Proctor und V. R. Thayer, Chem. Eng. Progr. 58, No. 4, S. 58 (1962).