

**KERNFORSCHUNGSZENTRUM
KARLSRUHE**

April 1973

KFK 1392

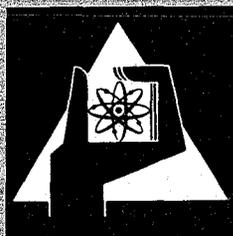
Institut für Heiße Chemie

**Das Verhalten von Uran und Plutonium im WAK-Fließschema.
Laborversuche in Mischabsetzern**

W. Ochsenfeld,

W. Hoffmann

(Gesellschaft zur Wiederaufarbeitung von Kernbrennstoffen)



**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

Kernforschungszentrum Karlsruhe

K F K 1392

Institut für Heiße Chemie

Das Verhalten von Uran und Plutonium im WAK-Fließschema.
Laborversuche in Mischabsetzern

von

W. Ochsenfeld^{a)}, W. Hoffmann^{b)}

Gesellschaft für Kernforschung m.b.H., Karlsruhe

a) Institut für Heiße Chemie

b) GWK

1. Aufgabenstellung

Das Ziel der Arbeit war das Studium des Verhaltens von Uran und Plutonium bei der Gegenstromextraktion nach den vorher von der IGK (Ingenieurgemeinschaft-Kernverfahrenstechnik) aufgrund von McCabe - Thiele Diagrammen errechneten Extraktionsbedingungen für die Wiederaufarbeitungsanlage Karlsruhe (WAK). In Laborversuchen im Institut für Heiße Chemie sollte festgestellt werden, ob mit dem vorgesehenen Fließschema die erforderlichen Uran- und Plutonium-Ausbeuten und die gewünschte Uran/ Plutoniumtrennung erreicht wird. Die Bestimmung der Dekontaminationsfaktoren für Spaltprodukte mit diesem Fließschema niedriger Säurekonzentrationen im 1. Zyklus wurde in einer anderen Arbeit (1) untersucht.

In der WAK ist ein modifizierter Purex-Prozeß vorgesehen. Zum Zeitpunkt dieser Untersuchung waren einige Prozeßstufen des vorgesehenen Verfahrens noch nicht ausreichend erprobt:

- a.) 1. Wäsche bei 25°C darauffolgende 2. Wäsche bei 60°C im 1. Extraktionszyklus
- b.) Reduktion des Plutoniums mit Uran (IV)nitrat.

2. Das WAK - Fließschema

Nach Auflösen des Brennstoffs wird in der WAK das Uran in drei, das Plutonium in zwei Extraktionszyklen gereinigt (Abb. 1). Zur Endreinigung des Urans ist Silikagel, für das Plutonium Anionenaustausch vorgesehen.

Im 1. Extraktionszyklus wird nach der gemeinsamen Extraktion und einer 1. Wäsche bei 25°C (HA Extraktor) das Uran und Plutonium enthaltende 30% TBP/Alkan^{x)} bei 60°C mit einer wässrigen salpetersauren Lösung (in HS) gewaschen. Darauf folgt die Trennung des Plutoniums von Uran mit Uran(IV)nitrat (in 1BX und 1BS). Das Pu(III) enthaltende wässrige Produkt (1 BP) wird nach Einstellung zu 4-wertigem Pu im 2. Pu - Extraktionszyklus (in 2 A und 2 B) nochmals gereinigt.

^{x)} Alkan: C₁₀ C₁₃ n-Paraffine enthaltendes Verdünnungsmittel der Gelsenberg AG.

Das nach der Trennung vom Plutonium im 1. Zyklus im Extraktionsmittel verbleibende Uran wird im 10-Extraktor rückextrahiert. Das Uranprodukt wird durch wiederholte Extraktion im 2. und 3. Uran - Extraktionszyklus und anschließend auf Silikagel gereinigt.

3. Versuchsapparatur

Die Gegenstromexperimente wurden in einer Labor-Gegenstromextraktionsanlage "Labex" durchgeführt, deren schematisches Fließbild Abb. 2 zeigt. In den in fünf Gruppen zusammengefaßten Apparaten finden folgende Arbeiten statt:

Die Einstellung der Speiselösung, die Gegenstromextraktion, die Lösungsmittelwäsche, die Uran- und Plutoniumkonzentrierung.

Vier Mischabsetzer(2)(Abb. 3) mit je 500 ml und 16 Stufen, von einem modifizierten CEN-Typ, ermöglichen durch variable Verbindungen verschiedene Schemata zu testen. Die aufgezeichnete Schaltung entspricht dem 1. Extraktionszyklus der WAK. Zum Dosieren der Lösungen wurden Dosierpumpen verwendet. Besondere Sorgfalt wurde der Flußkontrolle gewidmet, die durch Rotameter und fest eingebaute Büretten geschah.

4. Analysenverfahren

4.1 Uran -(VI)

4.11 Potentiometrische Titration. Freie Säure und U(VI) $>0,1M$, in Abwesenheit von Pu (3).

4.12 U(VI) $<0,1M$ Photometrisch mit Thioglykolat (4).

4.13 $>0,1$ mg U/ml auch neben Pu, Röntgenfluoreszenzanalyse (5)

4.14 $<0,1$ mg U/ml auch neben Pu, Polargraphie (6).

4.2 Uran (IV)

4.21 Photometrisch über den Eisen (II)phenanthrolin-komplex (7).

4.22 Polarographie (6).

4.3 Plutonium

4.31 $> 0,1$ mg/ml Röntgenfluoreszenzanalyse (5).

4.32 $< 0,1$ mg/ml α - Zählung
 α - Spektrometrie

4.33 Wertigkeit des Pu mit Spektralphotometrie (8).

4.4 Bestimmung der freien Säure

4.41 In Abwesenheit von Pu potentiometrische Titration nach 4.11 (3).

4.42 Jodsäure - Methode (9).

4.43 Titration in nichtwässrigem System (10).

5. Extraktionsversuche

Die Extraktion wurde zuerst mit Uran- Salpetersäure-Lösungen und abschließend mit Uran, Plutonium und Salpetersäure enthaltenden Lösungen getestet. Die Versuchsdauer war etwa 8 Stunden, ausreichend für die Einstellung der Gleichgewichte. Die Probenahme erfolgte aus allen Kammern der Mischabsetzer. Die Konzentrationsprofile von Pu, U und HNO_3 werden in den folgenden Diagramme mit den berechneten Konzentrationen der theoretischen Stufen verglichen. Die theoretischen Werte wurden für die Kammerzahl der Versuchsanordnung berechnet. Da diese Kammerzahlen in der Labex-Anlage vorgegeben waren und mit der Zahl der Kammern in den Batterien der WAK nicht ganz übereinstimmen, entstehen geringfügige Abweichungen gegenüber der Anlage in den Konzentrationen, insbesondere der Salpetersäure.

Die Verteilungsdaten für Uran und Salpetersäure in 30% TBP wurden der Literatur entnommen. Für Plutonium mußten fehlende Daten durch eigene Messungen ergänzt werden.

Die Konzentrationen und Flußverhältnisse wurden dem WAK-Fließschema vom 1.8.1966 entnommen. Dieses war von der IGK und der GWK mittels Mc Cabe-Thiele Diagrammen ausgelegt worden. Die Durchflußmengen der Experimente wurden unter der Voraussetzung berechnet, daß die Verweilzeiten in der Labex-Modellapparatur ebenso groß waren wie in den Kammern der WAK-Anlage.

6. Ausbeuten der Extraktionsversuche

In der Tabelle 1 sollen zur besseren Übersicht zuerst die bei den Versuchen erreichten Ausbeuten den gerechneten Werten und die notwendigen Kammerzahlen den in der Anlage vorhandenen gegenübergestellt werden. Danach soll auf die Diskussion der Extraktion in den einzelnen Batterien eingegangen werden.

In der Tabelle sind angegeben:

1. Kolonne: Zahl der notwendigen theoretischen Stufen für Uran und Plutonium, um eine Ausbeute von 99,9% zu erreichen (0,1% Verlust).
2. Kolonne: Die im Laborversuch benötigten praktischen Stufenzahlen.
3. Kolonne: Die in der WAK und im Laborexperiment faktisch zur Verfügung stehenden Stufen- bzw. Kammern.
4. Kolonne: Die prozentualen Verluste an Uran bzw. Plutonium nach der in der WAK vorhandenen Anzahl von Kammern.
5. Kolonne: Die prozentualen Verluste am Auslauf des Extraktors im Laborversuch.

1. Zyklus

Im Extraktionsteil des HA-Extraktors sind für einen Uran-Verlust von $< 0,1\%$ 4 praktische Stufen erforderlich (gegenüber 3 theoretischen). Bei Plutonium wurden dafür 5 theoretische Stufen errechnet. In 5 Kammern, die Zahl entspricht der Zahl im WAK-Extraktor, ist der U-Verlust $< 0,01\%$ und der Pu-Verlust $0,35\%$. Im 1C Extraktor für die Rückextraktion von Uran bei 60°C stehen gegenüber 5 gerechneten Stufen in der WAK 14 Kammern zur Verfügung, wobei ein Verlust von $0,3\%$ U, nach 16 Kammern $0,1\%$ gemessen wurde.

2. Uranzyklus

Im 2. Uranzyklus stehen bei der Extraktion in 2D in der WAK 5, im Labor 6 Kammern gegenüber 3 theoretischen Stufen zur Verfügung, der Verlust blieb unter $0,1\%$.

Bei der Uranrückextraktion in 2E reichten für $99,9\%$ Ausbeute 9 Kammern gegenüber 8 theoretischen Stufen aus. Bei den in der WAK zur Verfügung stehenden 14 Stufen ist der Verlust $< 0,01\%$.

2. Plutoniumzyklus

Im 2. Plutonium-Zyklus waren bei der Extraktion in der 2A-Batterie für $99,9\%$ Ausbeute 9 praktische gegenüber 7 theoretischen Stufen notwendig. Bei 10 Kammern in der WAK kann demnach mit einem Verlust $< 0,1\%$ gerechnet werden. Bei der Rückextraktion des Plutoniums in der 2B-Batterie waren für $99,9\%$ Ausbeute 11 praktische gegenüber 9 theoretischen Stufen und 10 in der WAK vorhandenen notwendig.

7. Erster Extraktionszyklus

Der 1. Extraktionszyklus wurde in 4 Mischabsetzerbatterien mit je 16 Kammern getestet (Abb. 4). In der HS-Batterie wurden nur 5 Kammern zur Wäsche benutzt. 1 BX und 1BS waren in einer Batterie untergebracht. Die Konzentrationen und Flüsse sind der Abb. 4 zu entnehmen.

7.1 Extraktion in HA

Von 16 Kammern des Extraktors wurden in verschiedenen Versuchen 8 bzw. 9 für die Extraktion und 8 bzw. 7 für die Wäsche verwendet. In der HA - Batterie der WAK sind 5 Extraktions- und 9 Waschkammern vorhanden.

Zuerst wurde das Fließschema mit 1 und 1.4 HNO_3 nur mit Uran in der Feed - Lösung mehrmals getestet. Dann wurde bei 1.4 M HNO_3 mit Plutonium und Uran das Fließschema nochmals überprüft. Die Konzentrationsprofile des Urans und der Salpetersäure von zwei solchen Versuchen mit U und Pu sind den Abb. 5 und 6 zu entnehmen. Die Speiselösung HAF in Versuch 1 (Abb. 5) enthielt 0,96 M U, 1.4 M HNO_3 und 1.3 g Pu/l. Der Rückfluß aus dem HS-Wäscher enthielt 35 g U/l, 0,41 g Pu/l, 1.8 M HNO_3 . Im Extraktionsteil (Kammern Nr. 1-8) stimmen die experimentellen und theoretischen Werte für die Salpetersäure sowohl für die organische als auch die wässrige Phase gut überein. Bei Uran sind die Tendenzen dieselben. Für 99,9% Ausbeute sind 4 praktische Stufen anstatt 3 theoretischen notwendig. Die Sättigung des organischen Produktes HAP war 57% in Abb. 5 und 62% in Abb. 6, der Rücklauf aus HSR 8% in Abb. 5 und 9,5% des Urans in Abb. 6.

Im Waschteil HAS ist die wässrige Konzentration des Urans größer als gerechnet. Dies ist darauf zurückzuführen, daß die Säurekonzentration der wässrigen Phase

kleiner als berechnet war. Die Spitze im Verlauf der Uran-Konzentration Abb. 5 deutet auf eine Rückmischung der hochkonzentrierten Speiselösung in den Waschteil hin. Mit der Waschlösung wurde dabei 5,7% des gesamten Urans anstatt der berechneten 2,9% in den Extraktionsteil zurückgeführt. In Abb.6 betrug der Rücklauf von HAS nach HA 5,9% Uran.

Das Konzentrationsprofil von Pu(IV) und zum Vergleich auch das von Pu(VI) ist in Abb. 7 dargestellt. Bei der Auflösung kann es zur Bildung von Pu(VI) kommen, außerdem könnte bei Verwendung eines Oxidationsmittels, z. B. zur besseren Extraktion des Np als Np(VI), auch Pu(VI) entstehen. Deshalb wurde hier zum Vergleich die Extraktion von reinem Pu(VI) neben Uran untersucht. Für Pu(IV) stimmen die gefundenen Werte mit den theoretischen im Bereich der höheren Konzentration gut überein. Nach 5 Kammern (WAK und theor. Stufenzahl) ist die Ausbeute 99,65% (Verlust 0,35%). Die Extraktion der letzten Reste von Plutonium verläuft nicht mehr genau nach der Verteilungskurve. Für 99,9% Ausbeute waren 8 Kammern notwendig.

Mit der Waschlösung werden 26% des gesamten Pu(IV) gegenüber den theoretisch errechneten 24,5% zurückgeführt. Infolge der geringeren Verteilungskoeffizienten des Pu(VI) (um einen Faktor von etwa 0,5) ist die Pu(VI)-Konzentration der Waschlösung und der Pu(VI) Rücklauf (40%) etwa doppelt so groß wie der des Pu(IV). Nach 5 Extraktionskammern ist max. 98,5% (1,5% Verlust) des Pu(VI) extrahiert, nach 8 Kammern war der Verlust im Raffinat 0,5% Pu(VI).

Sehr entscheidend für die vollständige Extraktion des Pu im HA-, aber auch im 2A-Extraktor ist somit die Einstellung der 4-wertigen Stufe und die Vermeidung der Bildung von Polymeren.

7.2 Wäsche bei 60°C im HS

Der HS-Extraktor der WAK hat 5 Kammern. Die Konzentrationsprofile von U(VI), Pu(IV), Pu(VI) und HNO₃ für die Wäsche bei 60°C im HS-Extraktor mit 5 Kammern zeigt Abb. 8. Die theoretischen Werte sind für 3 Stufen angegeben.

Da bei 60°C für die Berechnung weniger Daten zur Verfügung standen als bei 25°C, ist die Übereinstimmung mit den experimentellen Werten weniger gut als im HA - Extraktor. Die HNO₃-Konzentration in der wässrigen Phase ist geringer, der Rücklauf des Pu(IV) etwas größer als erwartet. Die Konzentration des Pu(VI) in der wässrigen Lösung ist etwa zweimal so groß wie die des Pu(IV).

7.3 Uran - Plutonium-Trennung in 1BX - 1BS (Abb. 9,10)

Die Trennung des Plutoniums von Uran geschieht durch Reduktion des Plutoniums mit Uran (IV) zu Plutonium (III). Schwierigkeiten bei der Trennung bereitet die Instabilität des Pu(III) und des U(IV) in salpetersauren Lösungen, insbesondere in Gegenwart von Nitrit. In einer früheren Arbeit (11) wurde festgestellt, daß für die Trennung eine maximale Säurekonzentration von 1.5 - 2M in der wässrigen Phase, etwa zehnfacher U(IV)-Überschuß und 0.2M Hydrazin zur Zerstörung des Nitrits am günstigsten sind. Eine genügende Uran(IV)-Konzentration (einige g/l) in der wässrigen Phase muß in jeder Kammer des 1BX - Extraktors gesichert sein.

Im 1BX - Extraktor wird das Pu mit den zwei wässrigen Lösungen 1BX und 1BS aus dem organischen Strom herausgewaschen. Der 1BS - Extraktor dient zur Extraktion des Urans mit frischem TBP(1BS) aus dem wässrigen Produkt (1BP).

In den Laborversuchen standen im BX und 1BS je 8 Extraktionskammern zur Verfügung. In den je 9 Kammern enthaltenden Extraktoren der WAK ist demnach eine bessere Trennwirkung zu erwarten. Die Ergebnisse zweier Versuche sind in den Abb. 9 und 10 dargestellt. In Abb. 9 enthielt die 1BXS-Lösung 0,6 M HNO_3 und 0,2 M $\text{N}_2\text{H}_5\text{NO}_3$, in Abb. 10 0,2 M HNO_3 , 0,02 M U(IV), 0,2 M $\text{N}_2\text{H}_5\text{NO}_3$. 1BX enthielt im ersten Falle 1,9 M HNO_3 , im zweiten 2,4 M HNO_3 . Im 1BX-Teil geschieht die Reduktion zu Pu(III), das Plutonium wird aus der organischen Phase bis auf 2,4 mg Pu/l am Auslauf (1BU) (Abb. 9) entfernt. Dies entspricht 37 ppm Pu im Uran. Die Konzentration des Urans in der organischen Phase bleibt konstant. Im 1BS-Teil wird das Uran aus der Pu-führenden wässrigen Phase mit frischem TBP (1BS) extrahiert. Gleichzeitig wird U(IV) zu U(VI) oxidiert. Das Plutonium-Produkt (1BP) enthält etwa 20 mg U/l, was einem Gehalt von etwa 1% U im Pu entspricht, aber ohne Schwierigkeit auf 0,3% erniedrigt werden kann. Das entspricht einem DF (U/Pu) = $5 \cdot 10^3$ bis $1,5 \cdot 10^4$. Es erwies sich, daß eine Reduktion bei Raumtemperatur günstiger als bei den ursprünglich beabsichtigten 60°C ist. Die geplante Rückführung des organischen 1BSU-Stromes in 1HS wurde in der WAK geändert, da diese durch das enthaltene U(IV) zu Plutonium-Verlusten im HAW geführt hätte.

7.4 Uran - Rückextraktion in 1C

Das Uran des organischen Produkts 1BU aus dem Trennextraktor wird im letzten Extraktor (1C) des 1. Zyklus mit verdünnter 0,02 M HNO_3 rückextrahiert. Da die Verteilungskoeffizienten des Urans bei 60°C geringer als bei 25°C sind, ist die Rückextraktion bei erhöhter Temperatur günstiger. Die Abb. 11 gibt einen Vergleich der Rückextraktion bei 60°C und 25°C .

Bei 60°C ist der Urangehalt der organischen Phase nach 14 Kammern, entsprechend der WAK-Kammerzahl, etwa 0,3% und nach 16 Kammern im organischen Auslauf 0,1% des gesamten Urans. Bei 25°C ist bei dem hier dargestellten Versuch der Fluß der wässrigen Phase um 10% geringer als vorher. Dies und die größeren Verteilungskoeffizienten gegenüber 60°C führten nach 14 Kammern zu 3,4%, nach 16 Kammern am Auslauf zu 0,2% des Urans im TBP. Die ursprünglich geplante Kammerzahl des Extraktors 1C in der WAK von 7 wurde auf 14 erhöht. Damit ist die gewünschte Ausbeute durch geringfügige Änderung des Flußverhältnisses der Phasen zu erreichen.

8. Zweiter Plutonium-Zyklus

Das Fließschema des 2. Plutonium-Zyklus zeigt Abb. 12. Die Extraktion wurde in zwei Mischabsetzern mit je 16 Kammern durchgeführt.

8.1 Extraktion in 2A (Abb. 13)

Nach Abtrennung des Plutoniums als Pu(III) wird dieses mit salpetriger Säure zu Pu(IV) oxidiert und die Salpetersäurekonzentration auf 2,5 M eingestellt.

Die Gleichgewichtskonzentration der HNO_3 betrug etwa 2,3 M im Extraktionsteil (berechnet 2,4 M) und 1,2 M im Waschteil (berechnet 1,2 M). Die errechneten und gemessenen Plutonium-Konzentrationen zeigen eine sehr gute Übereinstimmung, bis auf den Plutonium-Gehalt der wässrigen Phase der Wäsche. Berechnet waren 7 theoretische Stufen, im Experiment war der Verlust an Plutonium im Raffinat nach 9 Kammern 0,1%. In der WAK stehen 10 Kammern für die Extraktion zur Verfügung, was zusätzliche Sicherheit bietet.

Für die Wäsche sind in der Anlage 3 Kammern vorhanden, während im Experiment 7 Kammern benützt wurden. Die Plutoniumkonzentration der organischen Phase zeigt, wie errechnet, ein Maximum im mittleren Teil des Waschextraktors.

8.2 Rückextraktion in 2B (Abb. 14)

Die Säure- und Plutoniumkonzentrationen der wässrigen Phase sind im Experiment höher als die berechneten Werte. Für 99,9% Ausbeute waren 9 theoretische Stufen errechnet und 11 praktische Kammern notwendig. In der 13. Kammer war noch 0,003%, in der 16. Kammer 0,002% des Plutoniums im TBP.

9. Zweiter Uran - Zyklus (Abb. 15)

9.1 Extraktion in 2D (Abb. 16)

Wegen der hohen Dichte der Speiselösung 2 DF konnte diese nicht wie vorgesehen in die 6. Mischkammer eingespeist werden. Sie mußte vielmehr in die 6. Absetzkammer zugeführt werden, um einen einwandfreien Transport der wässrigen Phase durch die Batterie zu ermöglichen. Die Urankonzentrationen in der 6. Kammer ist daher nicht repräsentativ und nicht durch das Verteilungsgleichgewicht bestimmt. Auch die Konzentrationen in der angrenzenden Kammer 5 und 7 werden durch diese hohe Konzentration noch beeinflußt und sind deshalb ebenfalls zu hoch.

Das Konzentrationsprofil des Urans in der wässrigen Phase ist deswegen an diesen Stellen in der Abb. 16 unterbrochen. In der WAK stehen in der 2D-Batterie für die Extraktion 5, für die Wäsche 13 Kammern zur Verfügung. In den Laborversuchen wurden für die Extraktion 6 und für die Wäsche 10 Kammern verwendet,

was etwa den ursprünglich vorgesehenen Zahlen entsprach. Für 99,9% Ausbeute waren 3 theoretische Stufen errechnet und 5 praktische Kammern nötig. In der organischen Phase ist die Übereinstimmung der theoretisch errechneten und experimentell bestimmten U-Konzentrationen im Waschteil sehr gut. Im Extraktionsteil ist die Abnahme der Urankonzentrationen in beiden Phasen langsamer als errechnet, und um eine Stufe in Richtung Raffinatauslauf verschoben. Dies ist die Folge der vorher erwähnten Zufuhr der Speiselösung in die 6. Absetzkammer. Das Konzentrationsprofil des Urans in der wässrigen Phase liegt deshalb im ganzen Mischabsetzer höher als errechnet und parallel zur theoretischen Kurve. Das Profil der Säurekonzentrationen in den organischen und wässrigen Phasen folgt dem Verlauf der errechneten Profile sehr gut. Nur in der Nähe des Einlaufs der Waschlösung 2DS sind die Säurekonzentrationen der wässrigen Lösung höher als erwartet.

9.2 Rückextraktion in 2 E (Abb. 17)

Für die Rückextraktion des Urans in der 2E-Batterie sind in der WAK 15 Kammern gegenüber 8 theoretischen Stufen vorgesehen. Im Laborexperiment standen 16 Kammern zur Verfügung. Schon in 9 Kammern wurden 99,9% Ausbeuten erreicht.

Die Säurekonzentrationen sind im Versuch etwas höher als die theoretisch errechneten Werte. Die Übereinstimmung der experimentellen und errechneten Urankonzentrationen in der organischen und wässrigen Lösung ist mäßig. Während der Verteilungskoeffizient bei der theoretischen Berechnung in den letzten Stufen >1 war, war er praktisch durchgehend <1 , trotz der gefundenen etwas höheren Säurekonzentrationen.

10. Folgerungen

Die berechneten Fliebschemata der Extraktionszyklen wurden experimentell gut reproduziert. Die zur Berechnung verwendeten Daten und Annahmen waren zufriedenstellend. Die aufgrund der Untersuchung notwendigen Änderungen wurden, so weit diese die apparative Ausrüstung betrafen, beim Bau der Anlage berücksichtigt. Darüber hinaus sind gewünschte Ausbeuten durch Änderungen der Extraktionsbedingungen zu erreichen. Die in aktiven Versuchen und im Betrieb erreichten Dekontaminationsfaktoren könnten Änderungen des Fliebschemas notwendig machen.

Im Einzelnen wurden folgende Änderungen in der Anlage durchgeführt:

1. Die Kammerzahl der 1C-Batterie wurde von ursprünglich 7 auf 14 erhöht.
2. Die Kammerzahl in der 2A-Batterie wurde im Extraktionsteil von 6 auf 10 Kammern erhöht.
3. Die 1BSU Lösung wird nicht in HAS, sondern in 1 BX geführt, um Plutoniumverluste im HAW zu vermeiden.
4. Die Trennbatterie 1 BX wird bei 25°C anstatt bei 60°C betrieben.
5. Die Säurekonzentration in 1 BXS wurde von 0,6 M HNO_3 auf 0,1 M gesenkt.

Literatur:

- 1.) W. Hoffmann, Bericht GWK-13 (1969)
- 2.) W. Ochsenfeld, S. Krawczynski, KFK-170 (1963)
- 3.) K. Motojima, K. Izawa, Analytical Chemistry 36 (1964) 733
- 4.) W.H. Davenport, P.F. Thomason, Analytical Chemistry 21 (1949)
1093
- 5.) D. Ertel, W. Wettstein, KFK 747, EUR 3728 d (1968)
- 6.) E. Schwind, unveröffentlicht
- 7.) R.J.W. Streeton, E.N. Jenkins, AERE-R3938 (1962)
- 8.) W. Ochsenfeld, H. Schmieder KFK-610 (1967)
- 9.) D. Thiele, W. Bähr, KFK-503 (1966)
- 10.) H. Schmieder, E. Kuhn, Talanta 16 (1969) 691
- 11.) W. Ochsenfeld, H. Schmieder, S. Theiss, KFK-911 (1970)

Tab.1
WAK - Fließschema
Stufenzahlen und Verluste

Extraktor	Theor. Stufen- zahl *		Stufenzahl experimentell für 99,9% Ausb.		Stufenzahl in		% Verluste nach			
	U	Pu	U	Pu	WAK	Labor	WAK-Stufenz.		Labor-Stufenz	
							U	Pu	U	Pu
I. Zyklus										
HA	3	5	4	8	5	8	< 0,01	0,35	< 0,01	0,1
1 C (60°)	5	-	16	-	14	16	0,3	-	0,1	-
II. Uran-Zyklus										
2 D	3	-	5	-	5	6	0,1	-	0,07	-
2 E	8	-	9	-	15	16	< 0,01	-	< 0,01	-
II. Pu-Zyklus										
2 A	-	7	-	9	10	9	-	< 0,1	-	0,1
2 B	-	9	-	11	10	16	-	0,12	-	0,002

* Für 99,9% Ausbeute

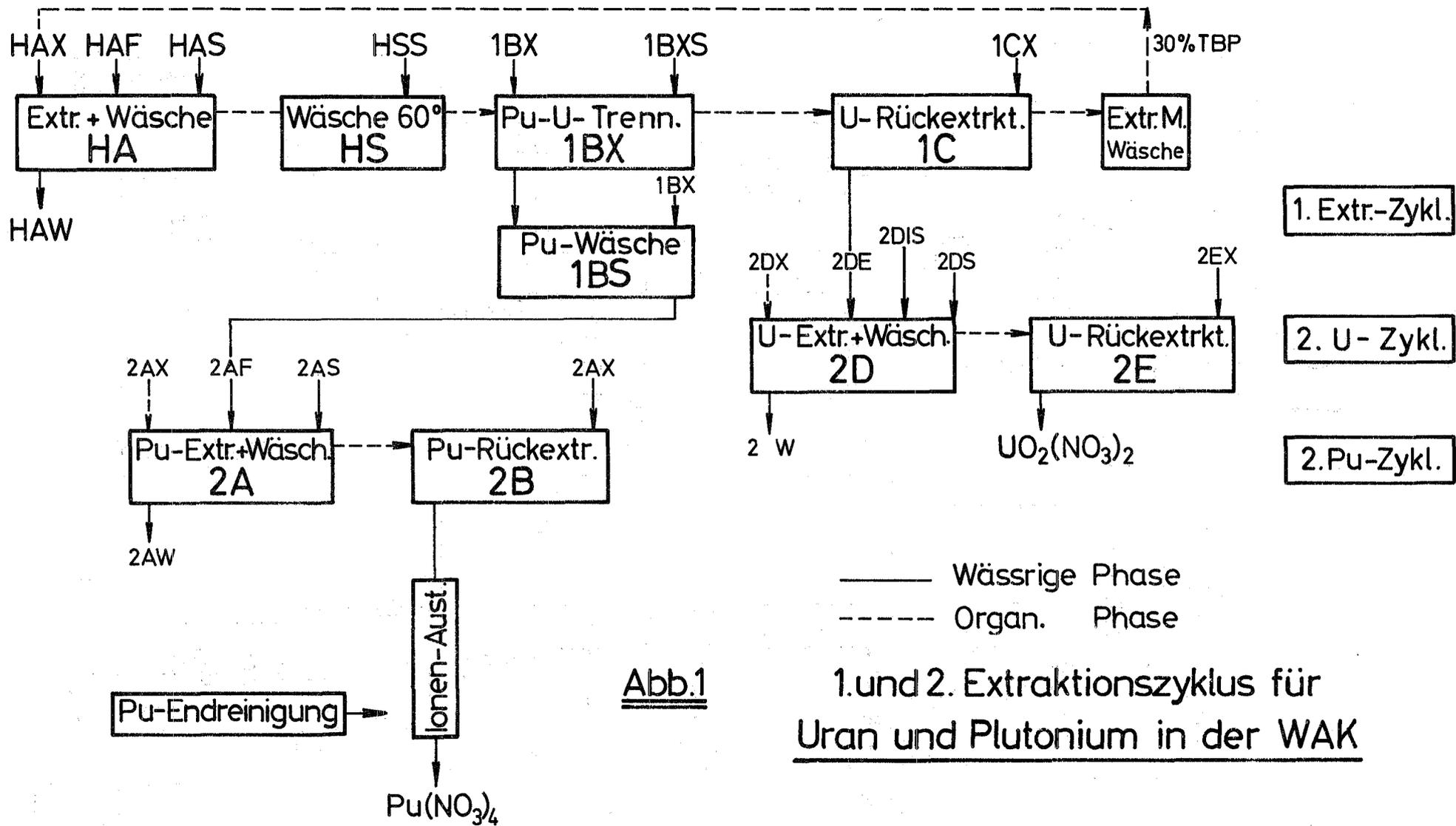


Abb.1

1. und 2. Extraktionszyklus für Uran und Plutonium in der WAK

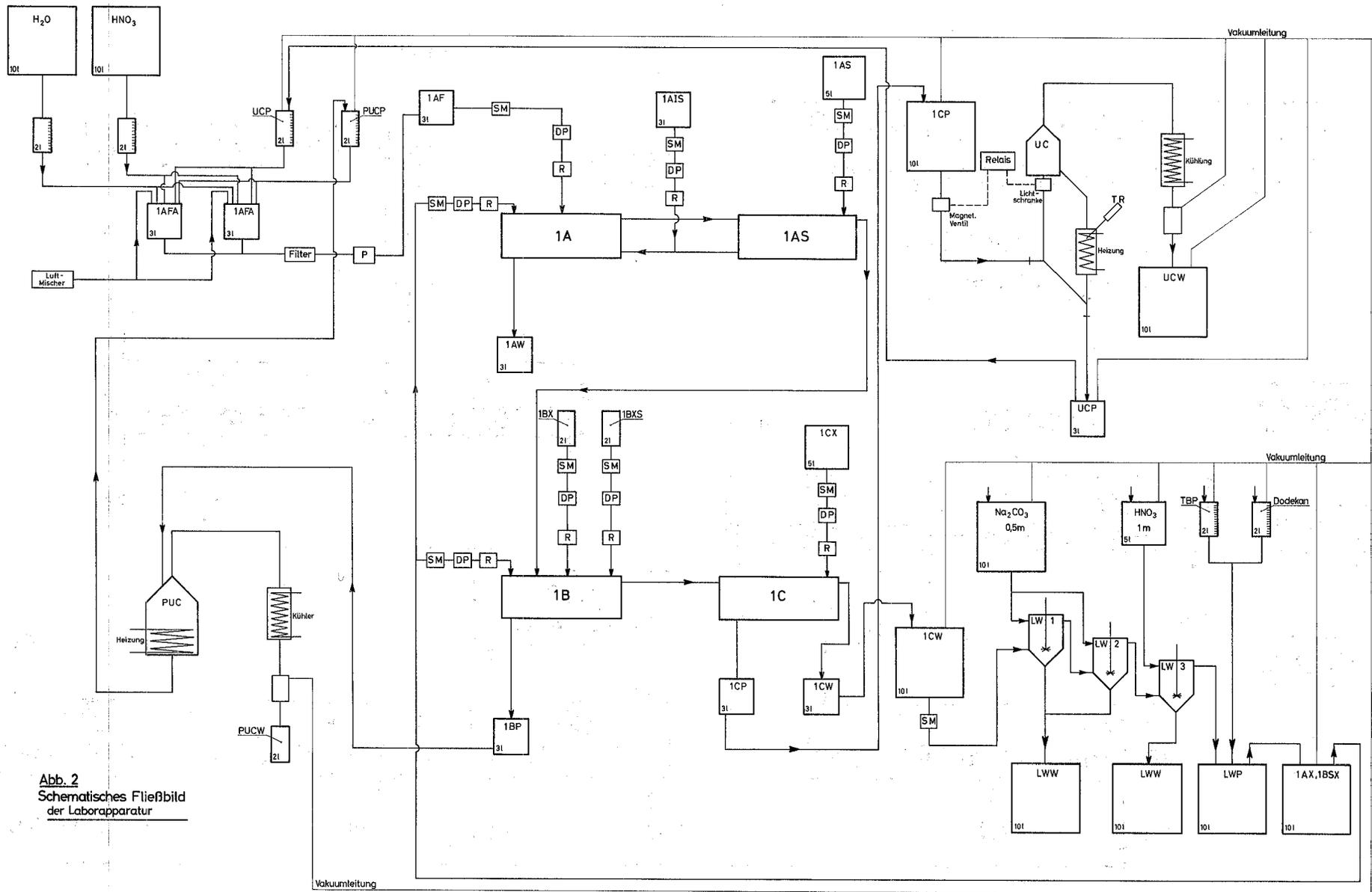
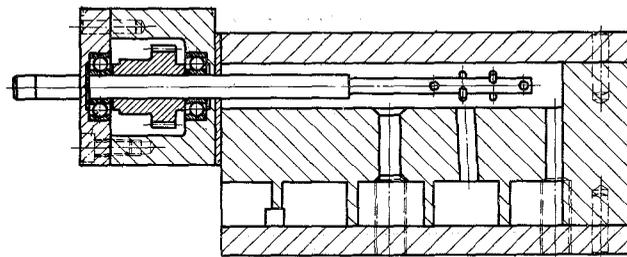
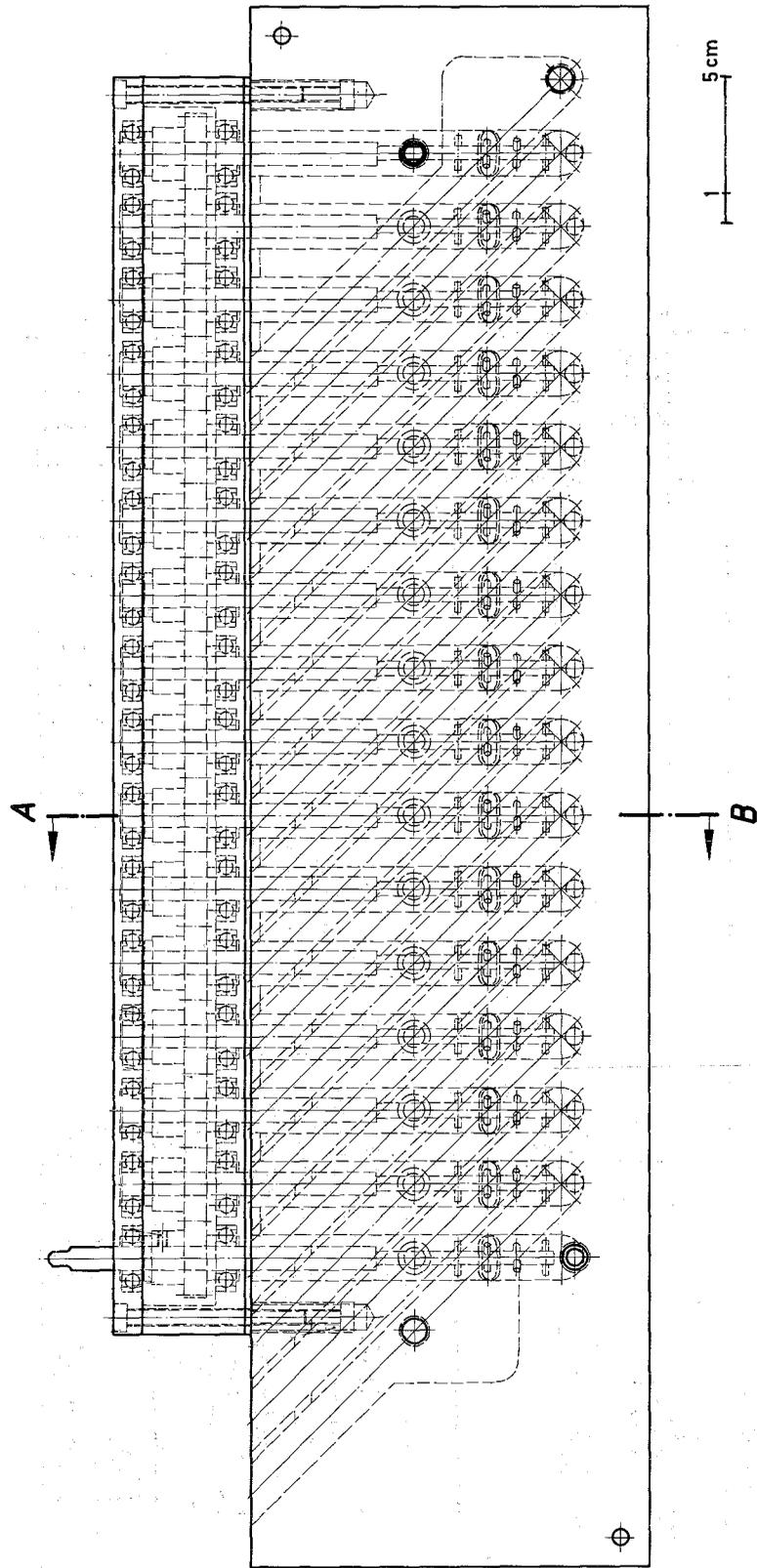


Abb. 2
Schematisches Fließbild
der Laborapparatur

Positionsliste zum schematischen Fließbild, Abb. 2

1 A	Mischabsetzer, Extraktion und Wäsche
1 AS	Mischabsetzer, Wäsche (heizbar)
1 B	Mischabsetzer, Pu-U-Trennung
1 C	Mischabsetzer, U-Rückextraktion
1 AF	Speiselösungsbehälter
1 AIS	Waschlösungsbehälter
1 AS	Waschlösungsbehälter
1 AW	Abfallösungsbehälter
1 AX , 1 BSX	Extraktionsmittelbehälter
1 BX	Reduktionsmittelbehälter
1 BXS	Behälter für Waschlösung
1 BP	Pu-Produktbehälter
1 CX	Behälter für Rückextraktionsmittel
1 CP	U-Produktbehälter
1 CW	Behälter für Extraktionsmittel nach Rückextraktion
UC	Umlaufverdampfer
UCP	Verdampferprodukt
UCW	Verdampferkondensat
LW 1, 2 und 3.	Extraktionsmittelwäscher
LWW	Behälter für Waschlösung
LWP	Behälter für gewaschenes Extraktionsmittel
PUC	Pu-Rotationsverdampfer
PUCP	Pu-Verdampferprodukt
PUCW	Pu-Verdampferkondensat
1 AFA	Behälter zur Einstellung der Speiselösung
P	Förderpumpe
DP	Dosierpumpe
SM	Durchsatzmessung
R	Rotameter

Abb. 3 Misch - Absetzer



Schnitt A - B

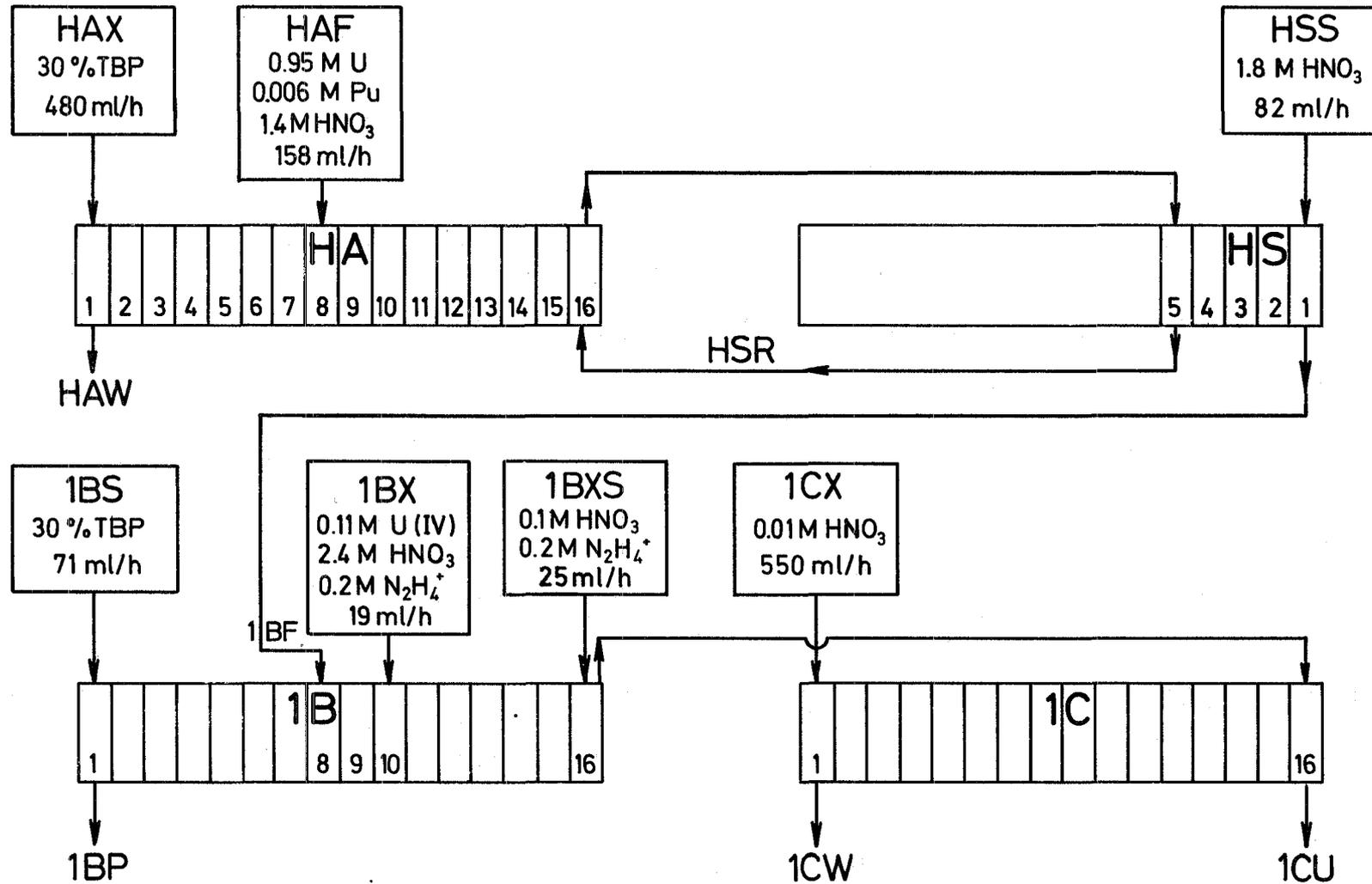


Abb.4 1.Extraktionszyklus

Abb.5 I. Extraktionszyklus - HA

Extraktion + Wäsche (25°C)

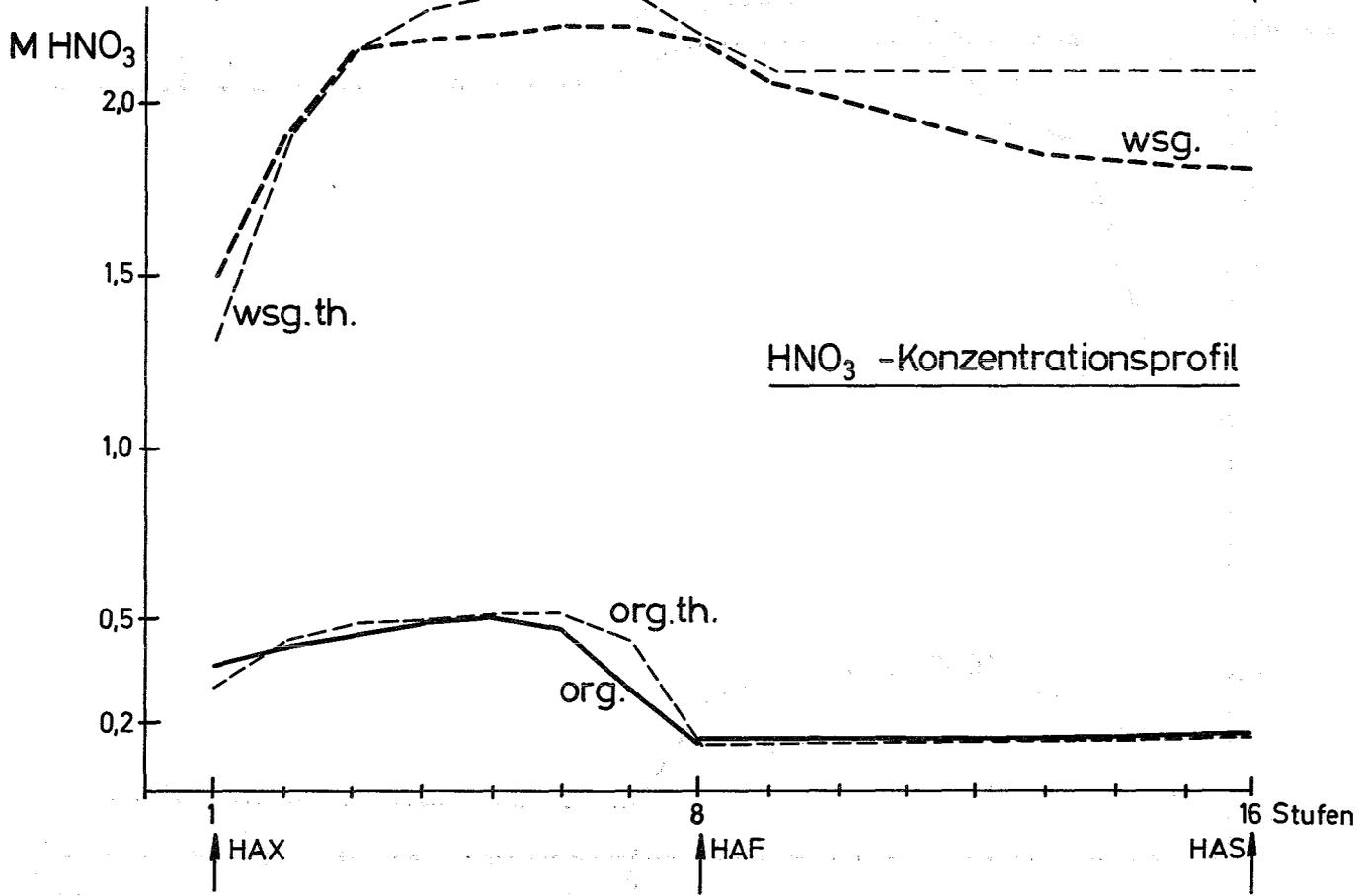
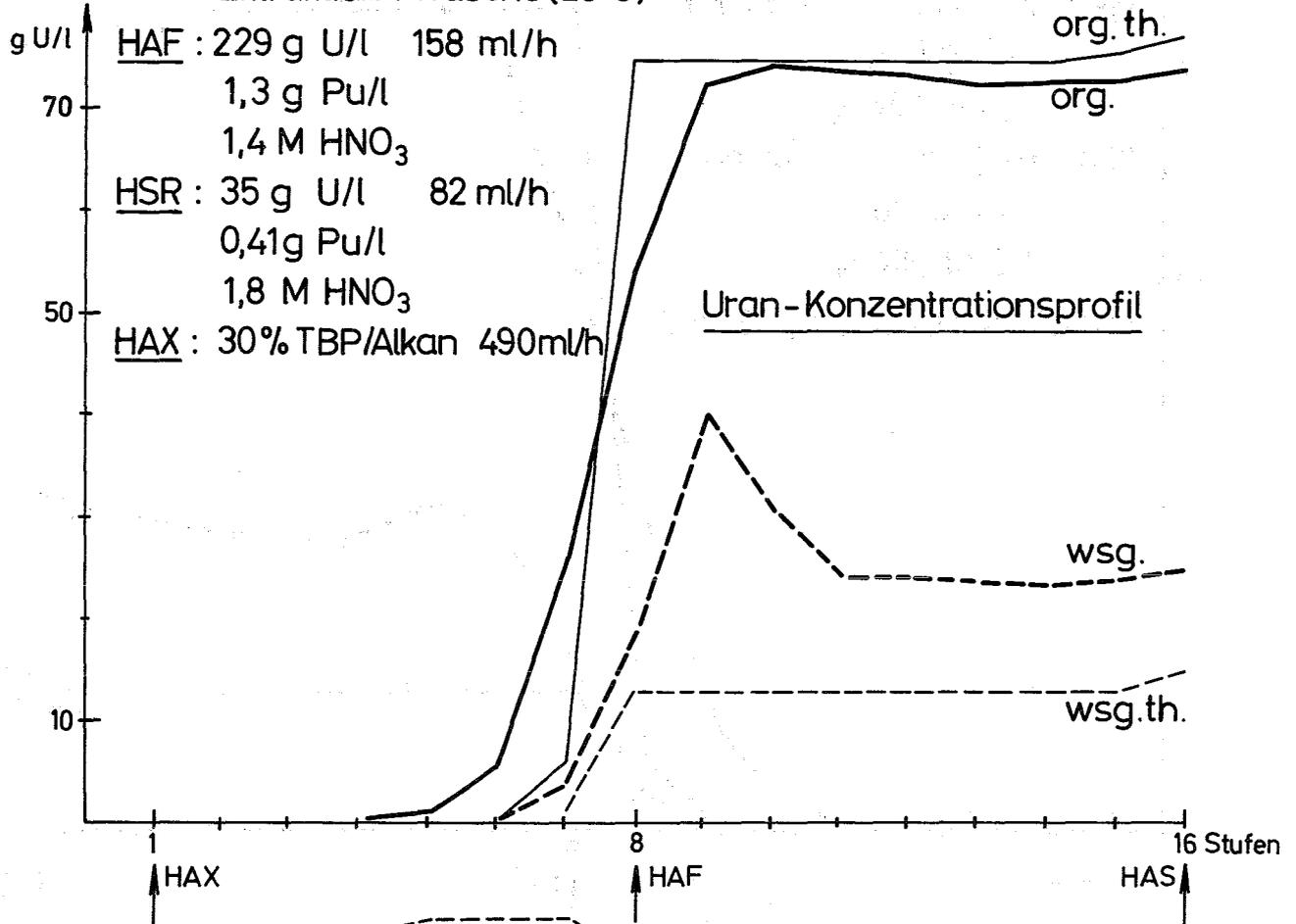


Abb.6 I. Extraktionszyklus-HA

Extraktion + Wäsche (25°C)

HAF: 227 g U/l 158 ml/h

1,3 g Pu/l

1,4 M HNO₃

HSR: 41 g U/l 82 ml/h

0,42 g Pu/l

1,8 M HNO₃

HAX: 30% TBP/Alkan, 490 ml/h

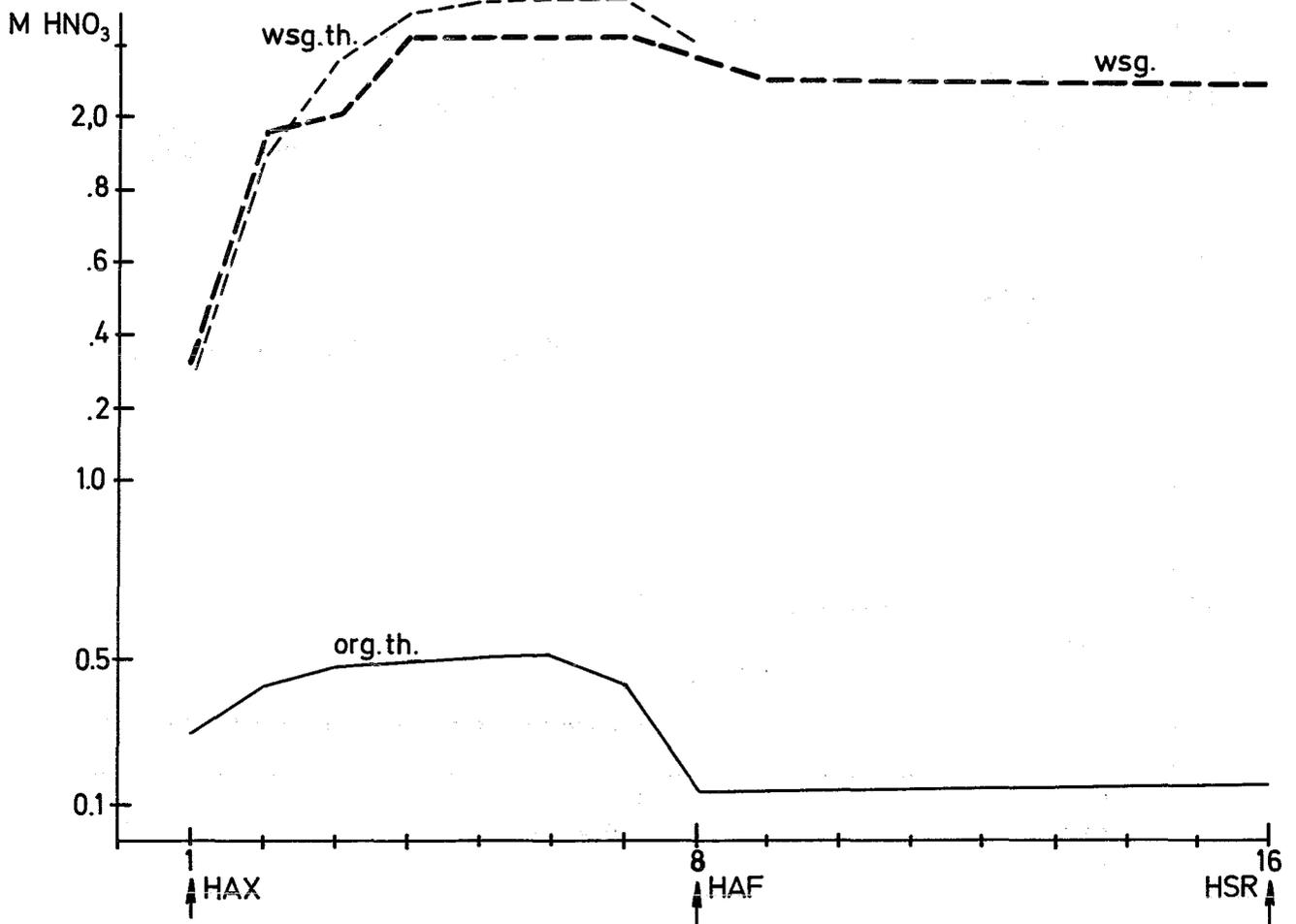
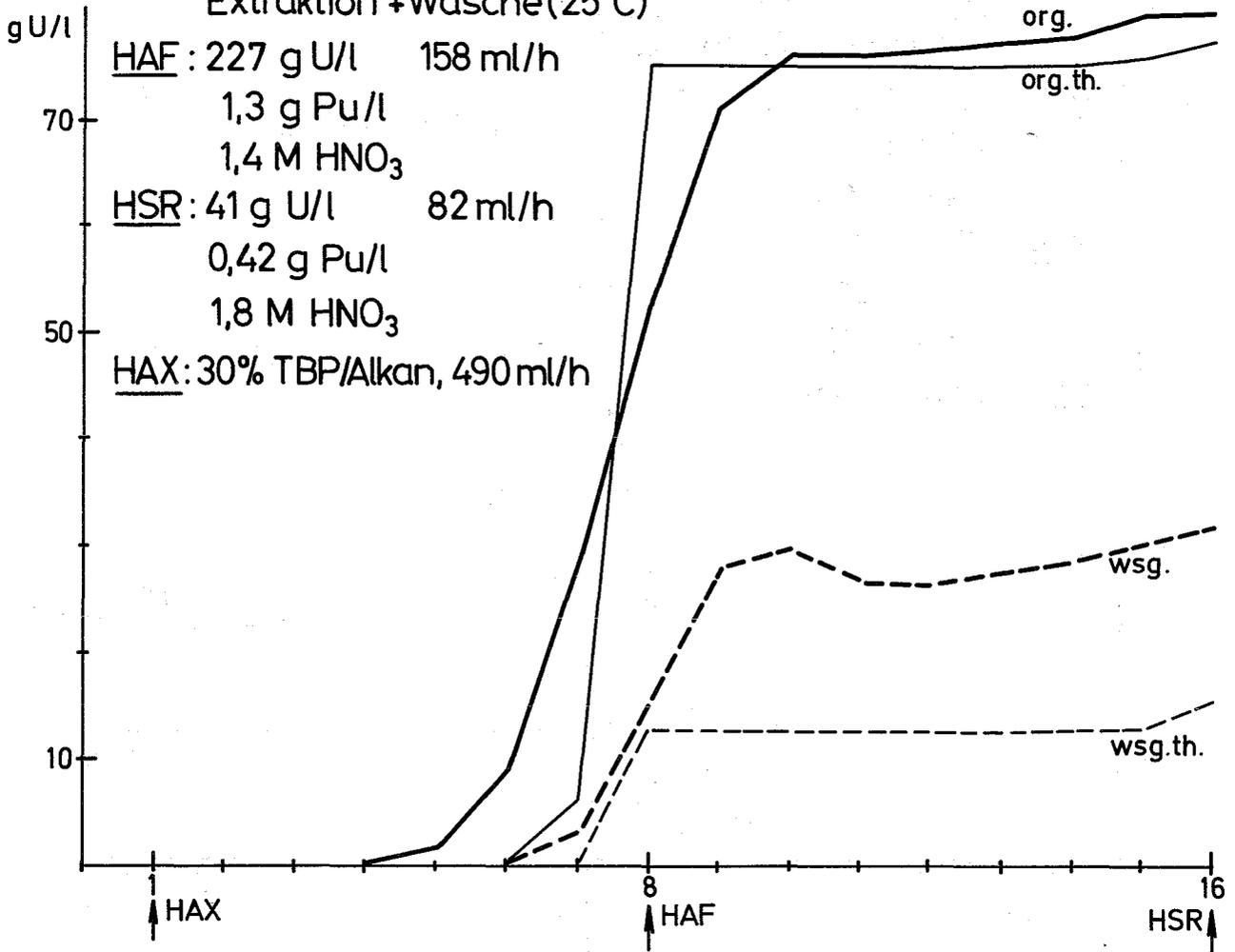


Abb.7 I. Extraktionszyklus - HA

Extraktion + Wäsche (25°C)

HAF : 158 ml/h ; 229g U/l , 1,3g Pu/l , 1,4 M HNO₃

HAX : 490ml/h ; 30% TBP/Alkan

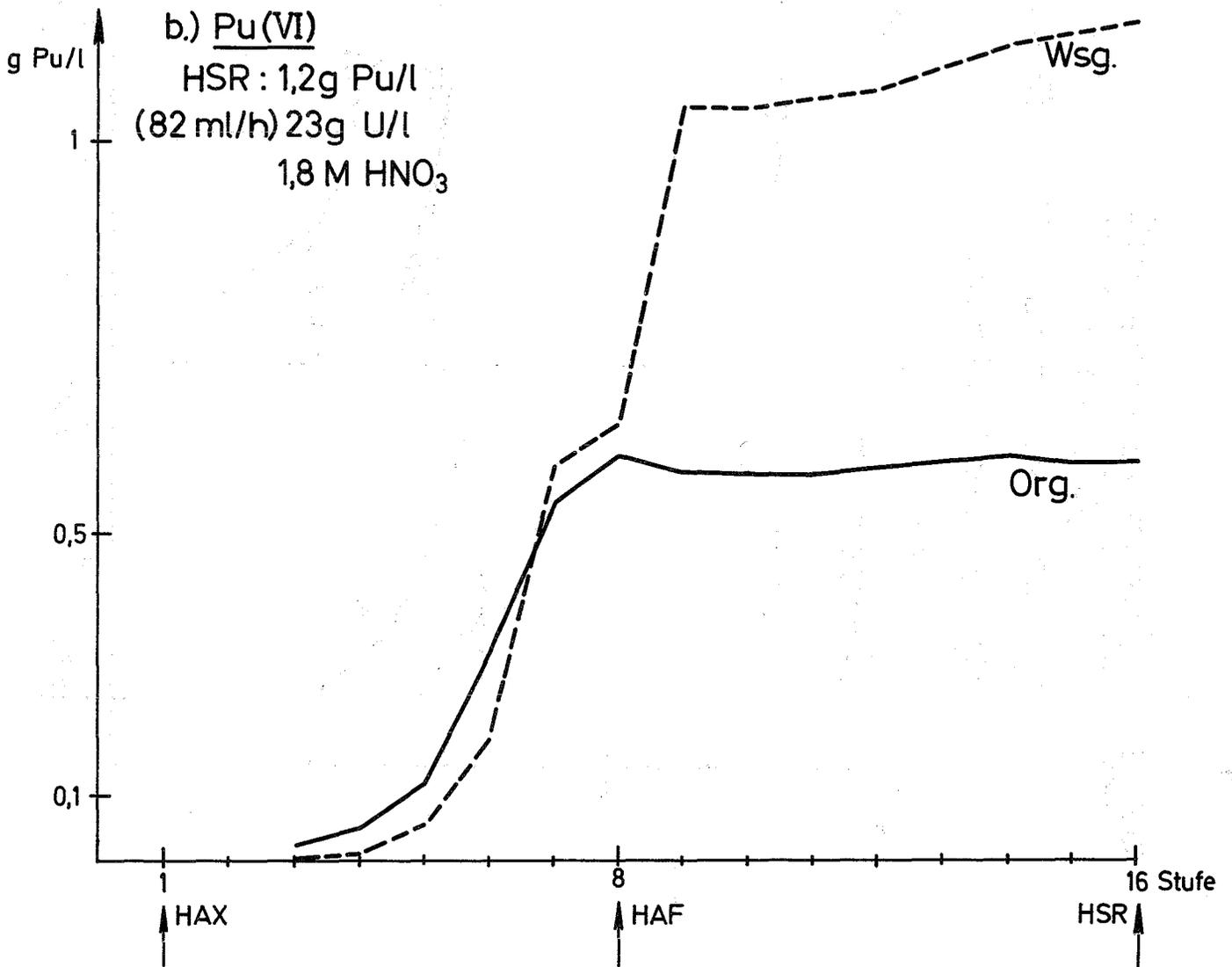
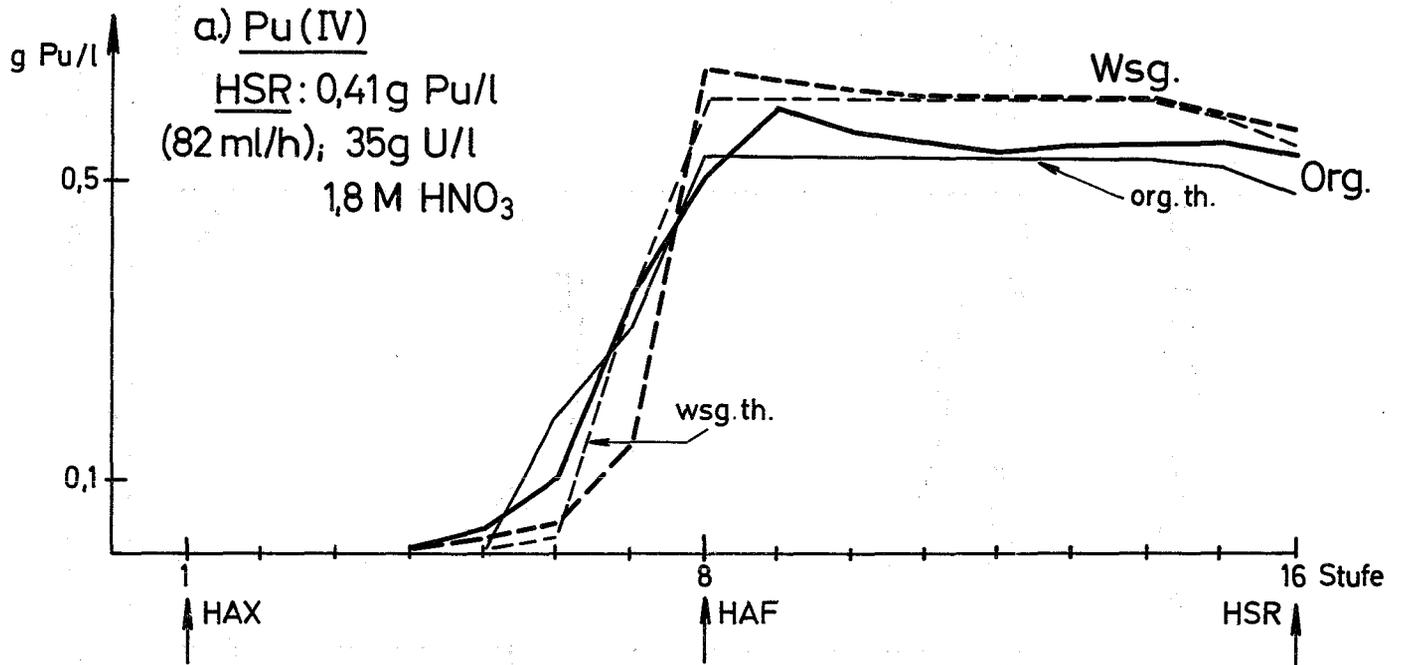


Abb. 8

I. Extraktionszyklus - HS

Wäsche 60°C

HAP : 0,16 M HNO₃ ; 75 g U/l ; 0,52g Pu(IV)/l bzw. 0,61g Pu(VI)/l ; 490 ml/h

HSS : 1,8 M HNO₃ ; 82 ml/h ;

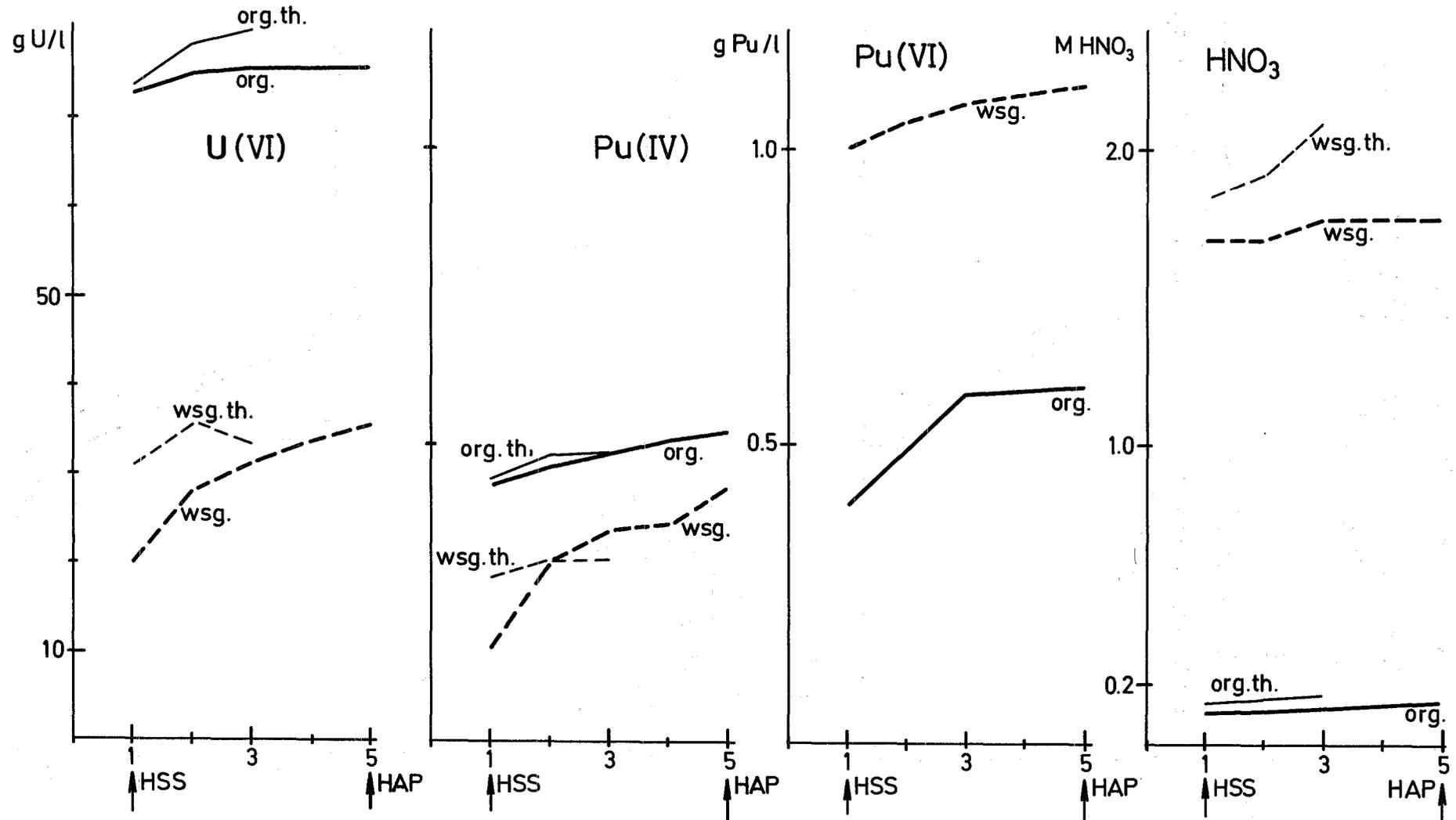


Abb.9 Plutonium-Uran Trennung

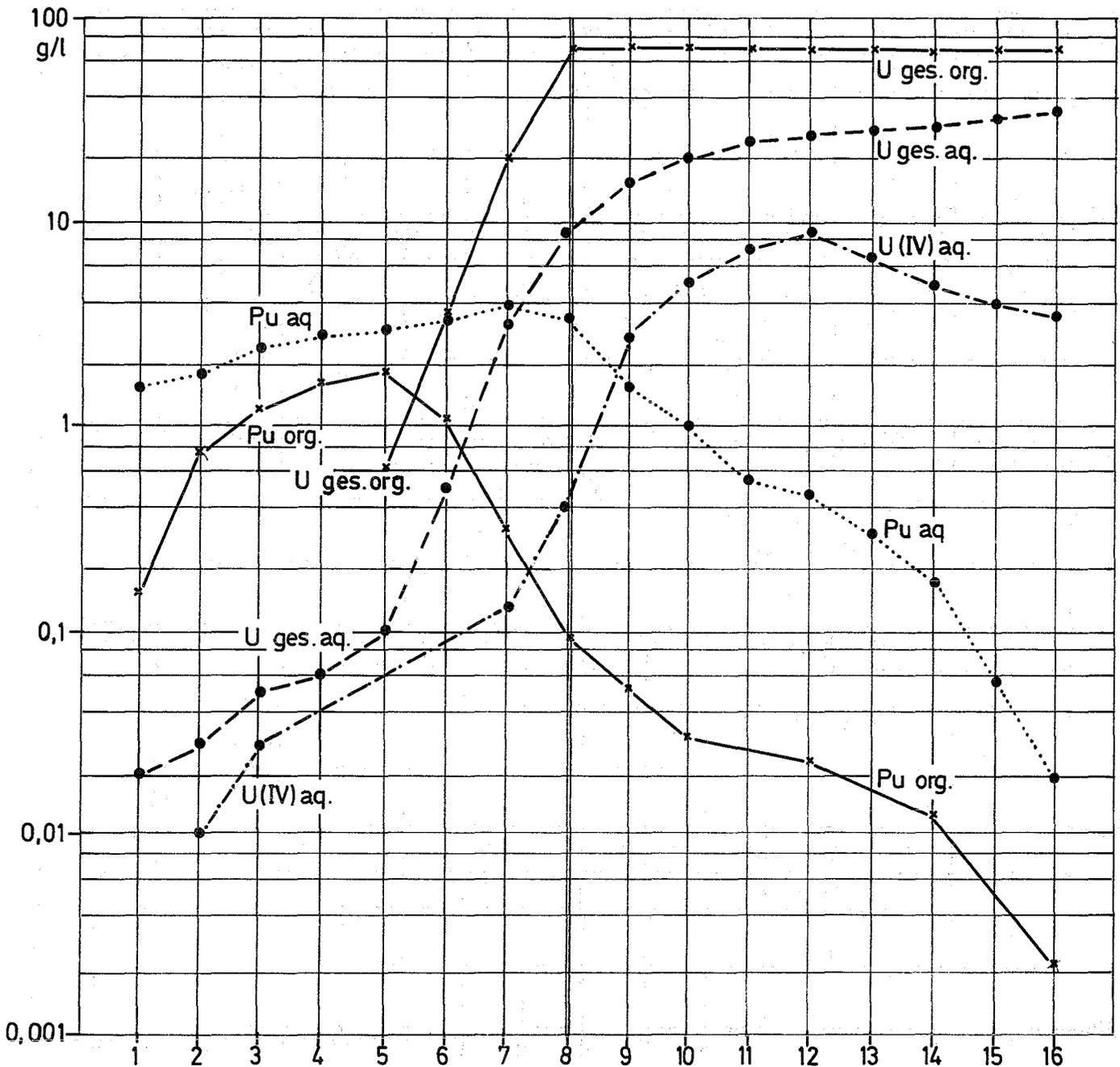
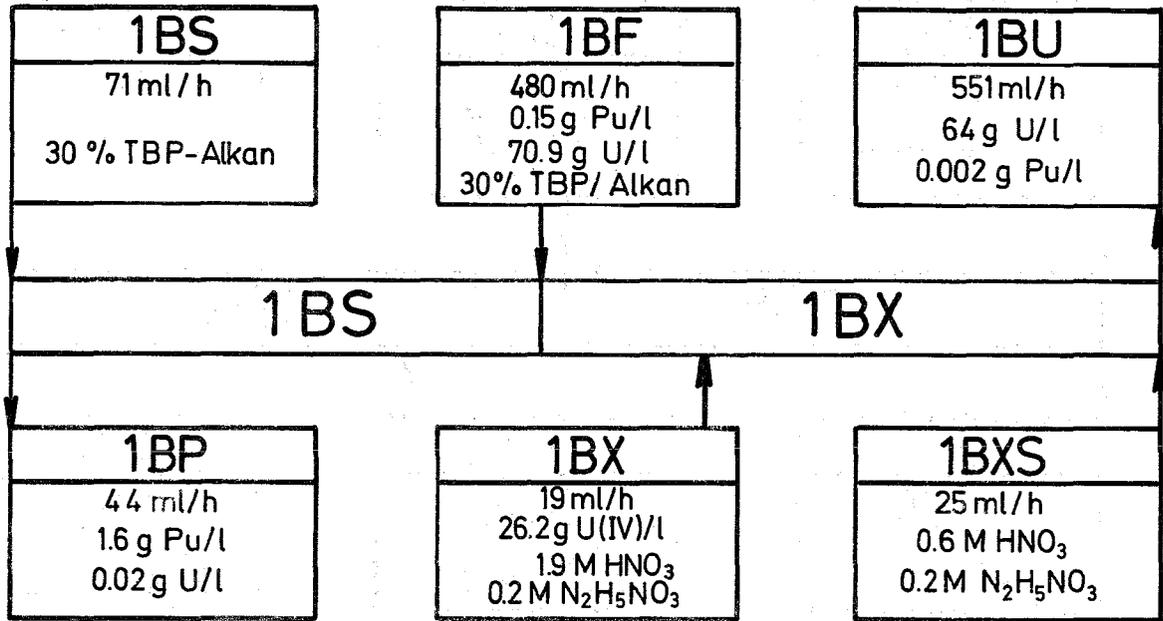


Abb.10 Plutonium-Uran Trennung

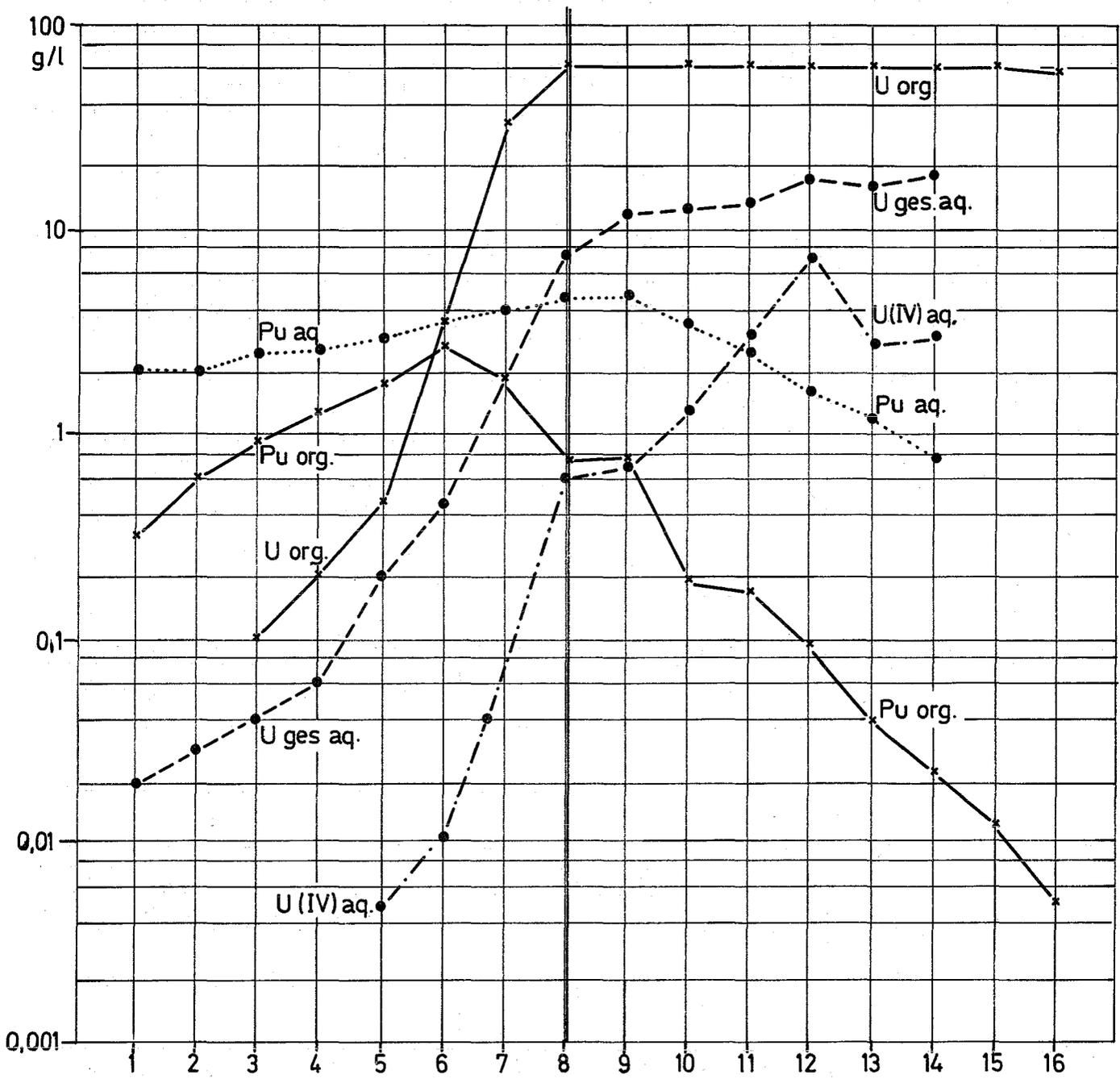
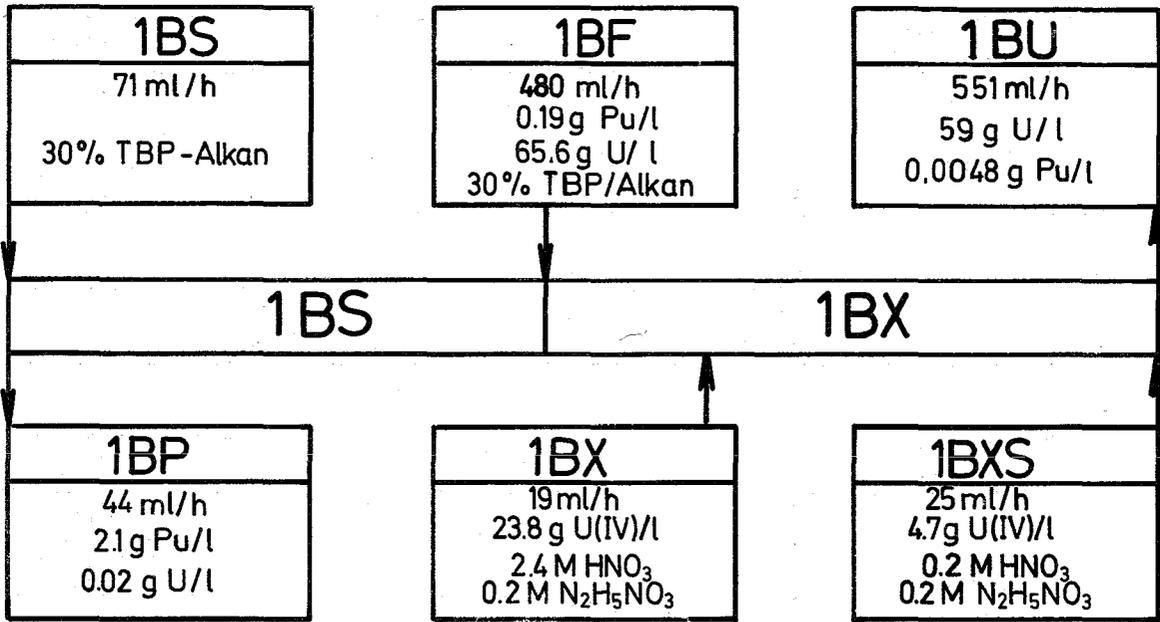
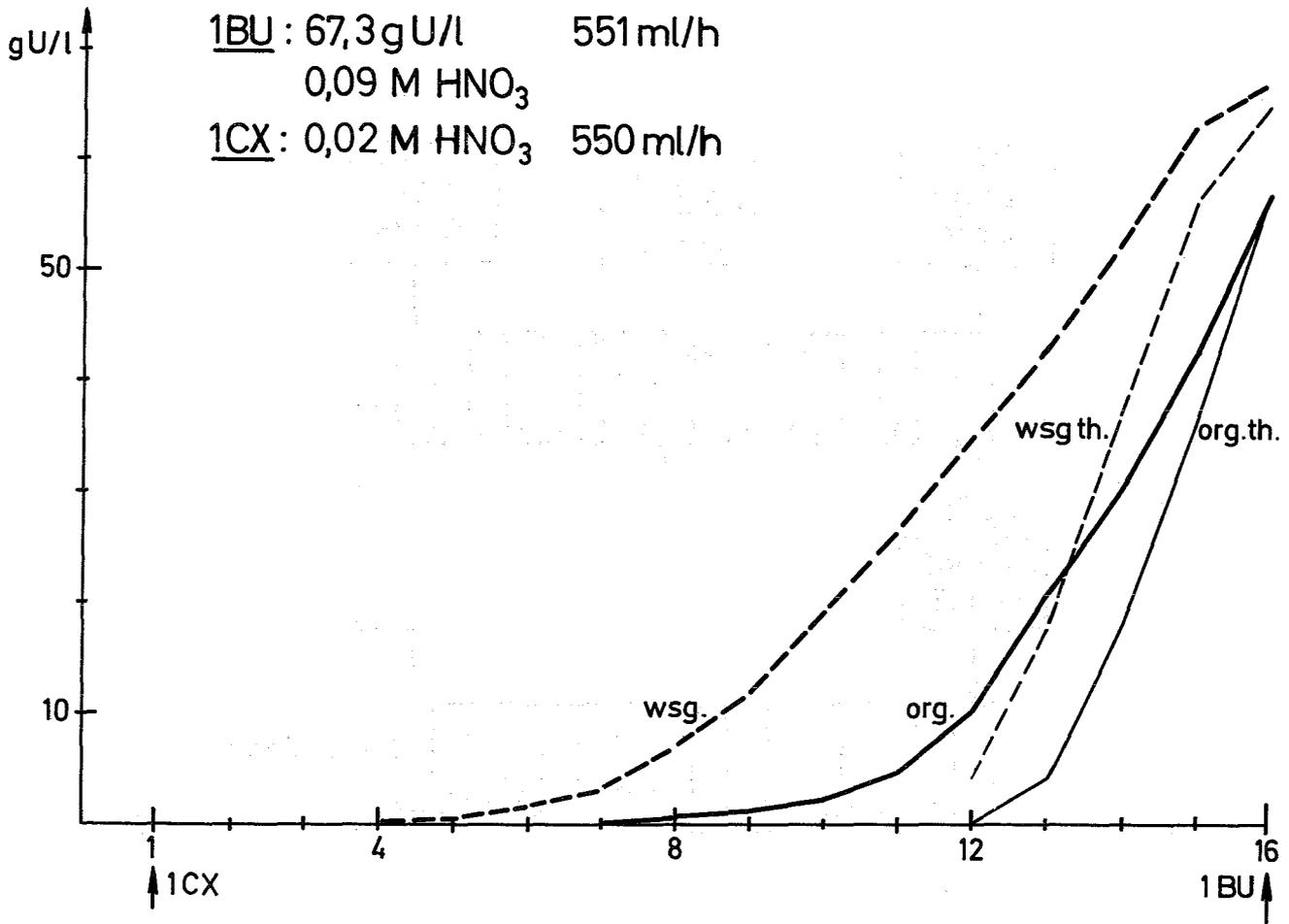


Abb.11 I. Extraktionszyklus-1C

Rückextraktion 60°C

1BU : 67,3 g U/l 551 ml/h
 0,09 M HNO₃

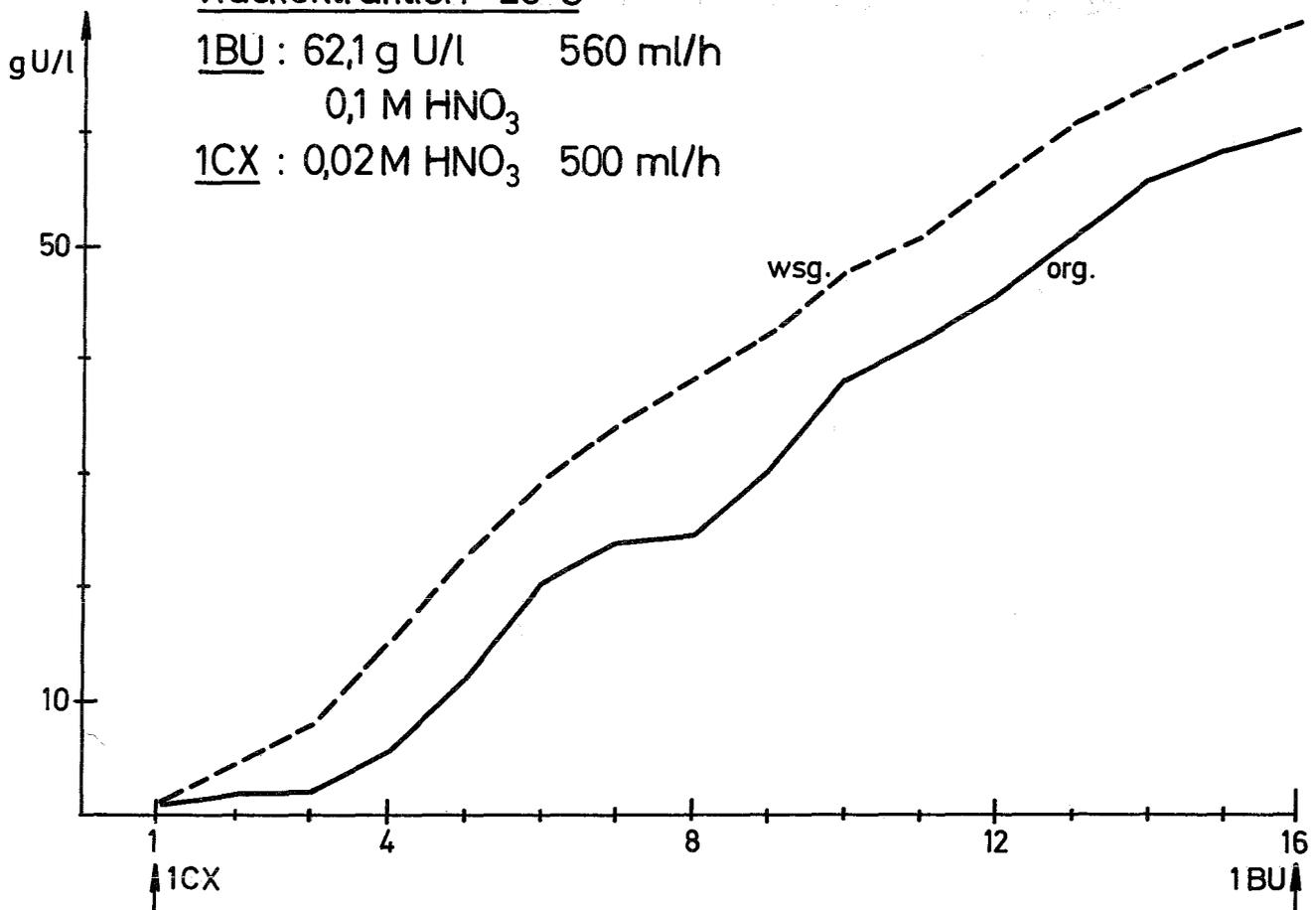
1CX : 0,02 M HNO₃ 550 ml/h



Rückextraktion 25°C

1BU : 62,1 g U/l 560 ml/h
 0,1 M HNO₃

1CX : 0,02 M HNO₃ 500 ml/h



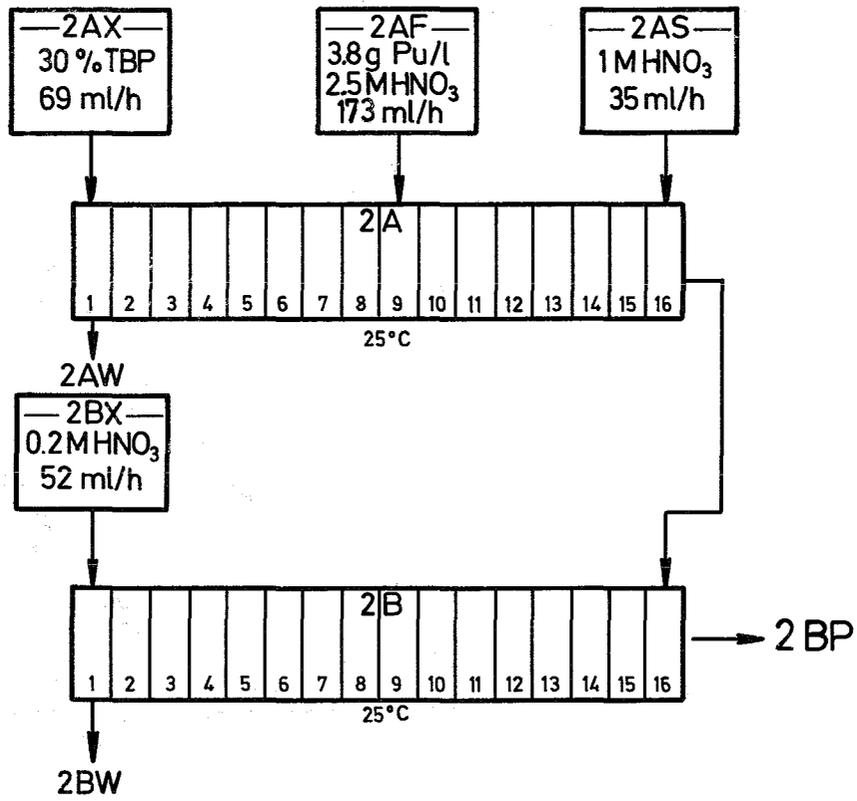


Abb.12 2. Plutonium Extraktionszyklus

Abb.13 II. Pu-Extraktionszyklus - 2 A

2AF : 3.8 g Pu/l 173 ml/h

2.5 M HNO₃

2AS : 1 M HNO₃ 35 ml/h

2AX : 30% TBP/Alkan 69 ml/h

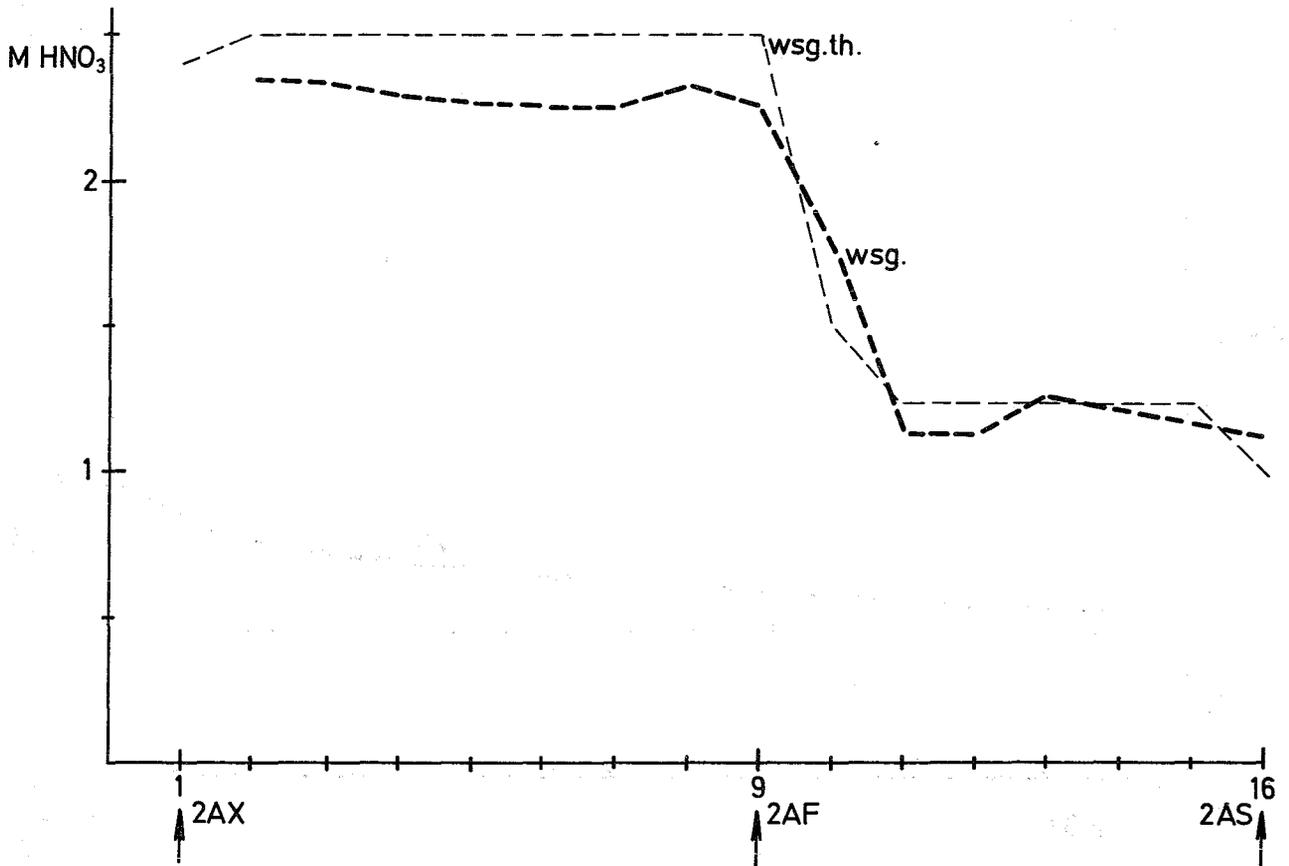
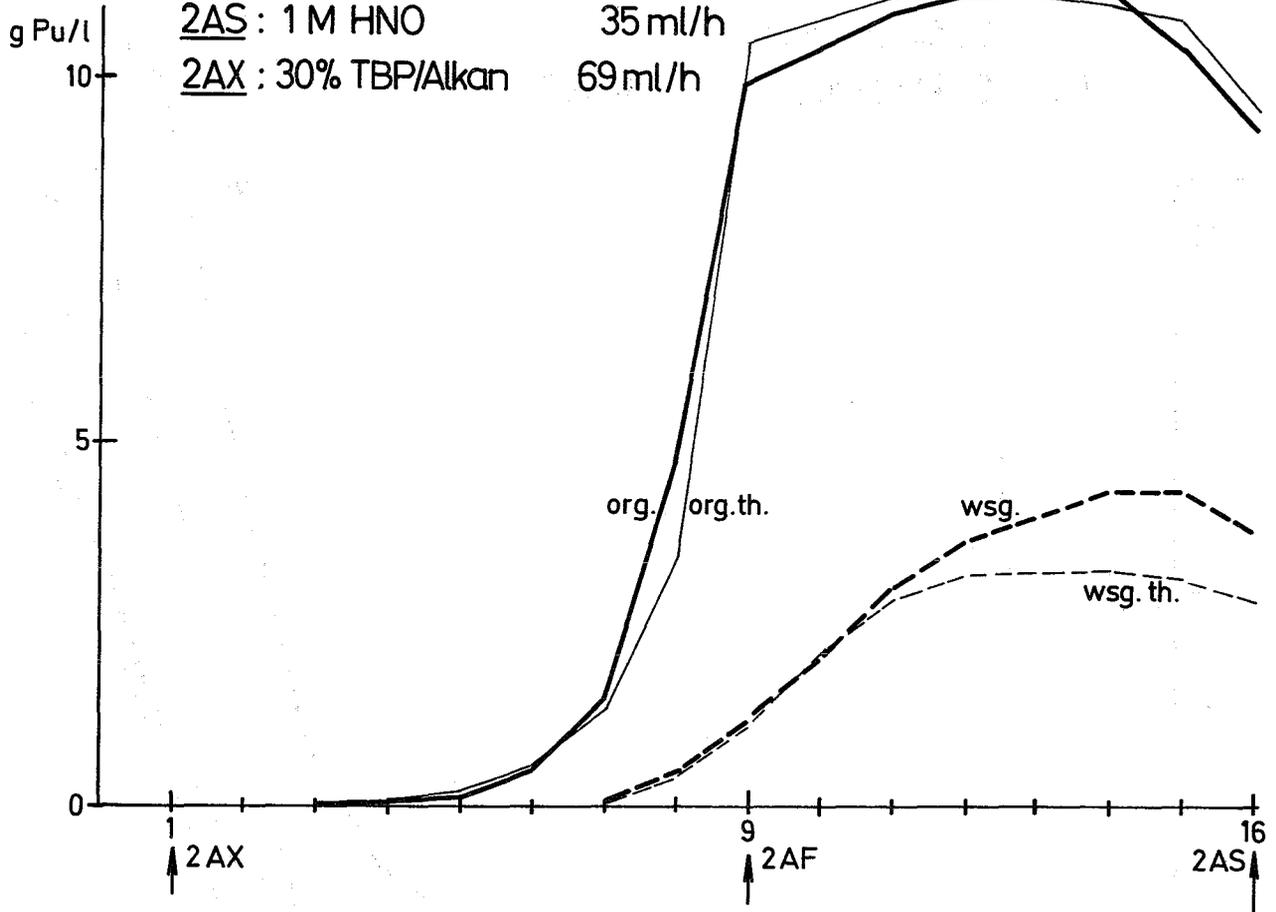
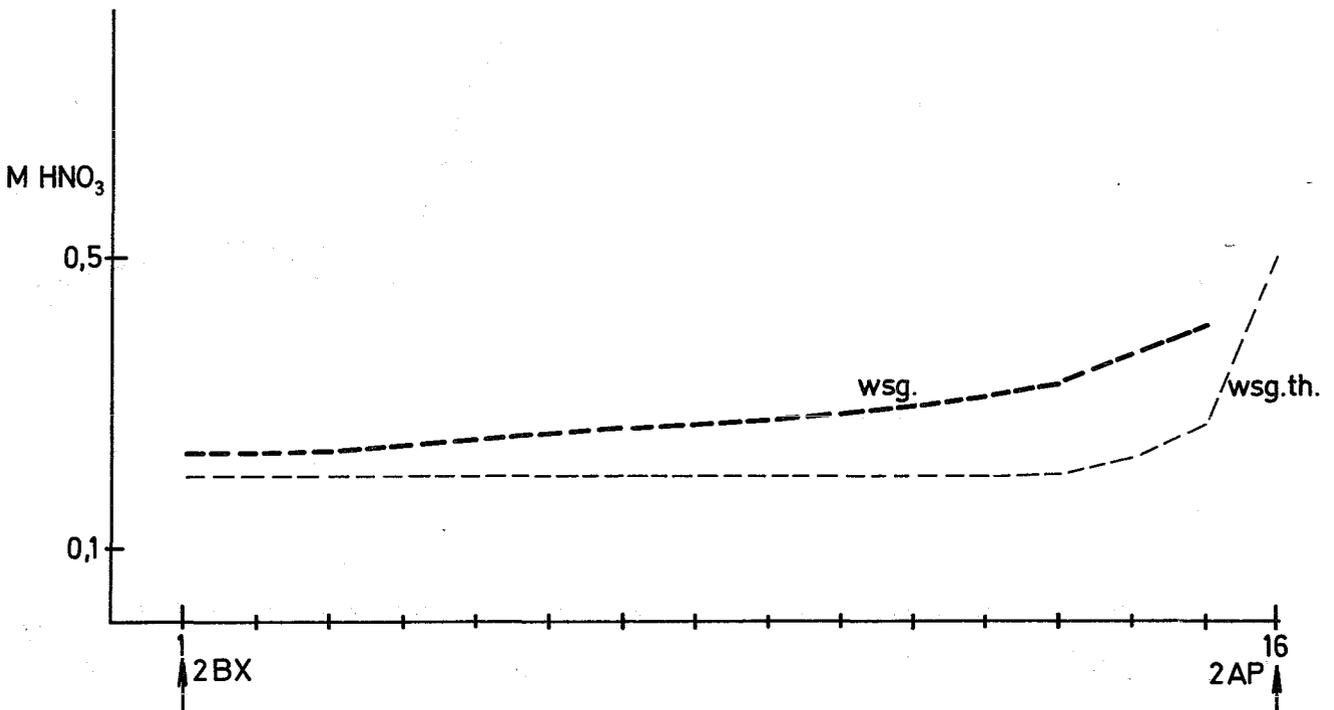
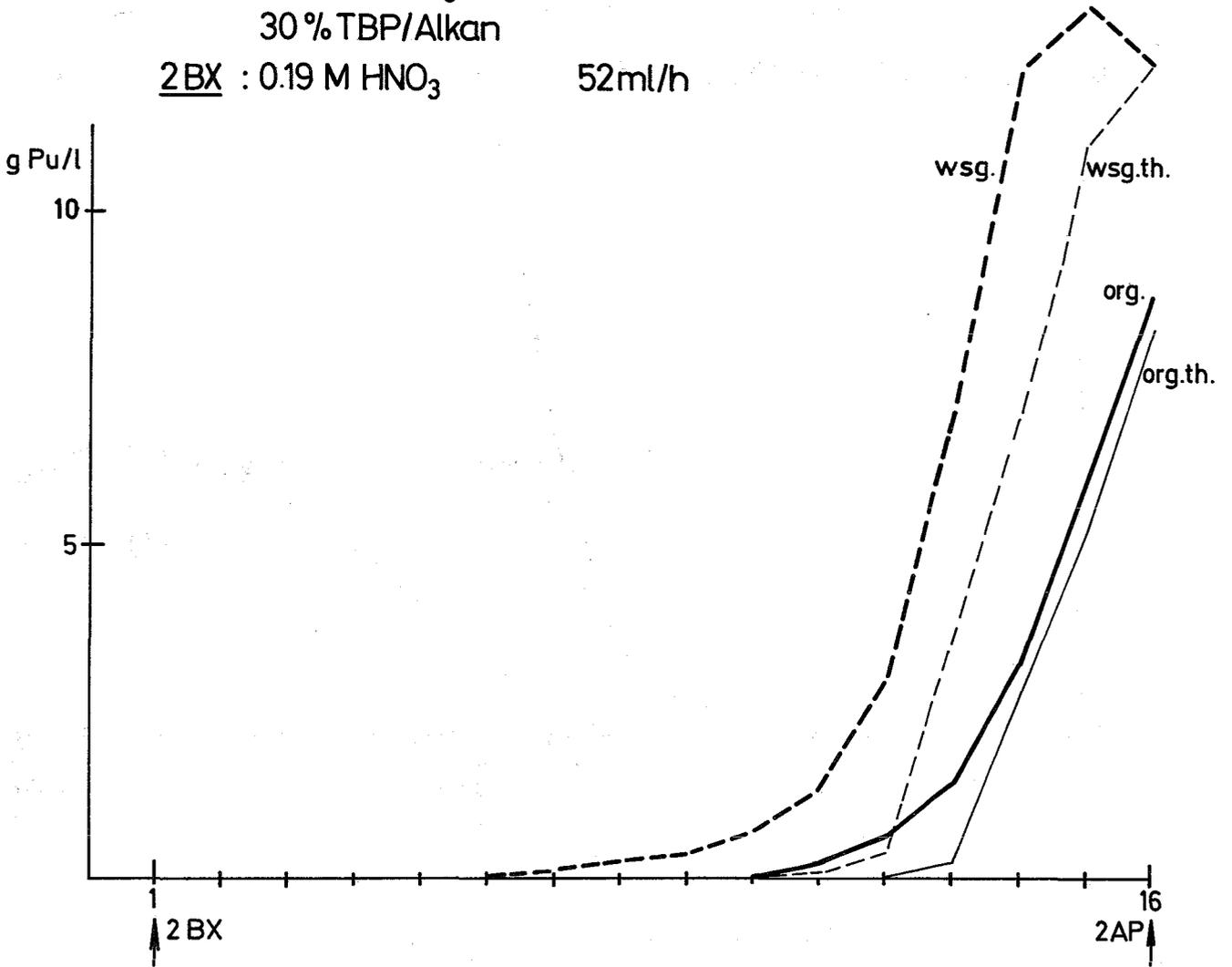


Abb.14 II. Pu- Extraktionszyklus - 2 B

2AP : 9.3 g Pu/l 69 ml/h

0.14 M HNO₃
30% TBP/Alkan

2BX : 0.19 M HNO₃ 52 ml/h



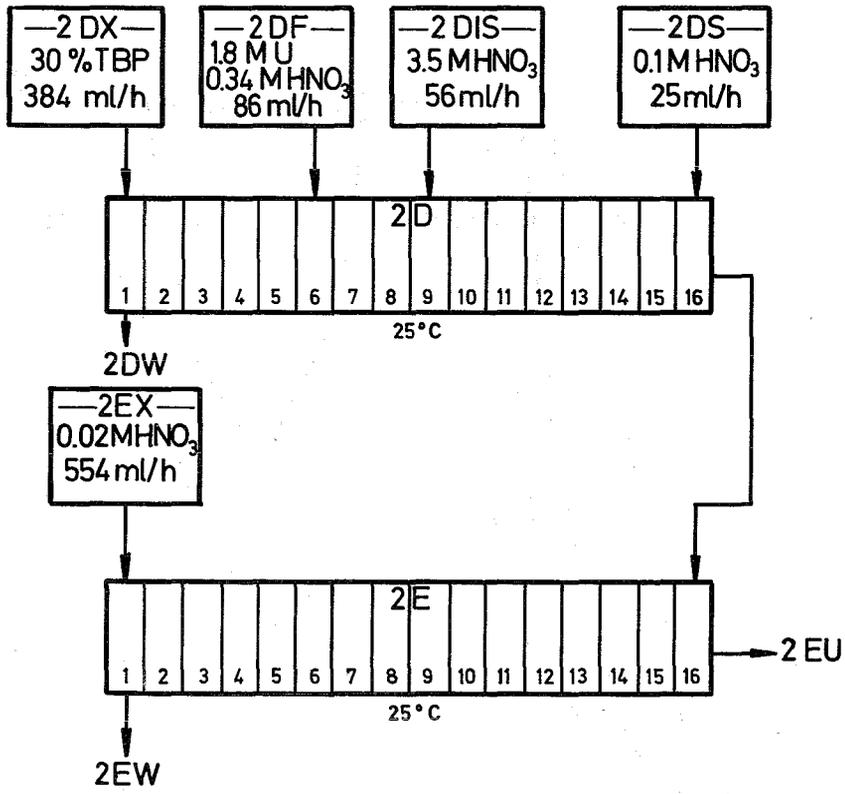


Abb.15 2. Uran Extraktionszyklus

Abb.16 II. Uran-Extraktionszyklus-2D

2 DF : 429 g U/l 86 ml/h
 0.34 M HNO₃
2 DS : 0.1 M HNO₃ 25 ml/h
2 DIS : 3.5 M HNO₃ 56 ml/h
2 DX : 30% TBP 384 ml/h

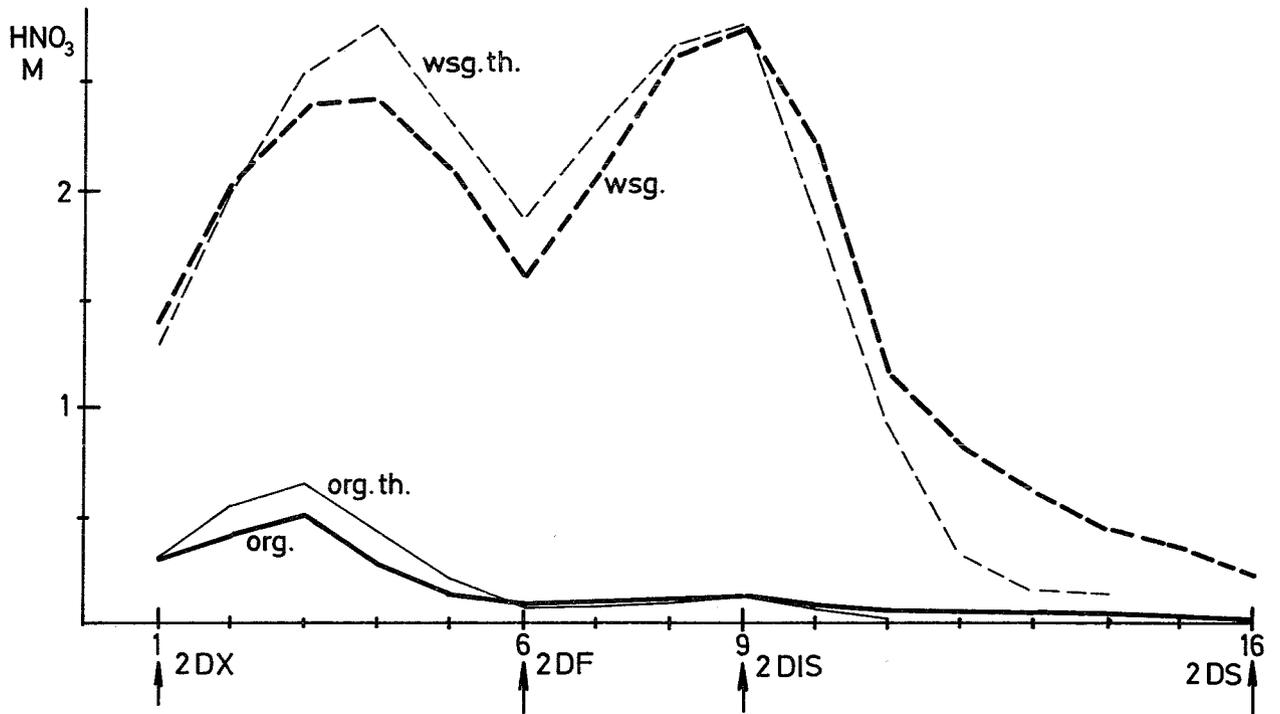
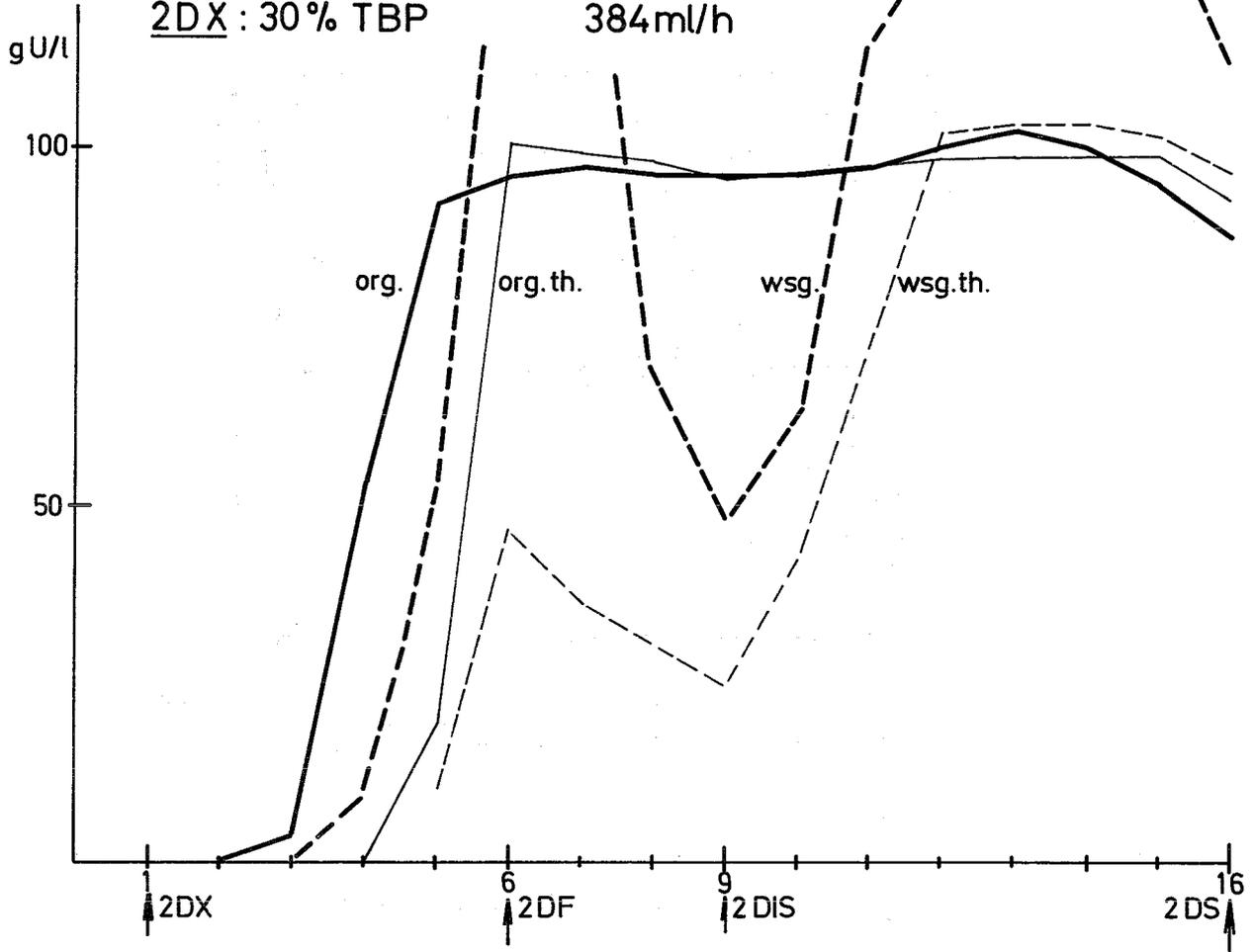


Abb.17 II. Uran-Extraktionszyklus - 2 E

2 EF : 88 g U/l 384 ml/h
 0.03 M HNO₃
 30% TBP
2 EX : 0.02 M HNO₃ 554 ml/h

