



Wirtschaftspatent

Erteilt gemäÙ § 5 Absatz 1 des Aenderungsgesetzes
zum Patentgesetz

ISSN 0433-6461

(11)

154 970

Int.Cl.³

3(51) C 01 G 57/00

AMT FUER ERFINDUNGS- UND PATENTWESEN

In der vom Anmelder eingereichten Fassung veroeffentlicht

(21) WP C 01 G / 223 814
(61) 145 909

(22) 10.09.80

(44) 05.05.82

- (71) ADW DER DDR ZENTRALINSTITUT FUER ISOTOPEN- UND STRAHLENFORSCHUNG, LEIPZIG;DD;
(72) GORSKI, BRUNHILDE,DR.RER.NAT. DIPL.-CHEM.;RICHTER, MICHAEL,DR.RER.NAT. DIPL.-PHYS.;
HENNRICH, MARION,DIPL.-CHEM.;DD;
(73) siehe (72)
(74) ADW DER DDR, ZI FUER ISOTOPEN- UND STRAHLENFORSCHUNG, 7050 LEIPZIG, PERMOSERSTR.
15

(54) VERFAHREN ZUR GEWINNUNG VON TECHNETIUM UND PALLADIUM AUS
KERNBRENNSTOFFWIEDERAUFBEREITUNGSLOESUNGEN

(57)Die Erfindung betrifft eine Verbesserung des Verfahrens zur Gewinnung von Technetium und Palladium aus salpetersauren Abfallloesungen, die bei der Wiederaufarbeitung von abgebrannten Kernbrennstoffelementen, z. B. nach dem sogenannten Purex-ProzeÙ, anfallen, gemäÙ Patent 145909, und loest die Aufgabe, das Verfahren so zu veraendern, daÙ die organische Phase im Kreislauf gefuehrt werden kann. Die Verbesserung besteht darin, daÙ nach der gemeinsamen Extraktion der beiden Elemente mit einer Loesung von ternaeren Aminen in einem organischen Loesungsmittel und der Reextraktion des Palladiums mit einer waeÙrigen Loesung von Thioharnstoff das Technetium mit einer ammoniakalischen Loesung von Ammoniumrhodanid reextrahiert wird.

2 2 3 8 1 4 -1-

Erfinder: Dr. Brunhilde Gorski
Dr. Michael Richter
Marion Hennrich

Verfahren zur Gewinnung von Technetium und Palladium aus
Kernbrennstoffwiederaufbereitungslösungen

Anwendungsgebiet der Erfindung

Die Erfindung betrifft eine Verbesserung des Verfahrens zur Gewinnung von Technetium und Palladium aus salpetersauren Abfalllösungen, die bei der Wiederaufarbeitung von abgebrannten Kernbrennstoffelementen, z. B. nach dem sogenannten Purex-Prozeß, anfallen - gemäß Patent 145 909.

Charakteristik der bekannten technischen Lösungen

Die salpetersaure (Säurekonzentration etwa 2 bis 4 mol/l) Abfalllösung, die bei der Wiederaufbereitung abgebrannter Kernbrennstoffelemente nach dem Purex-Prozeß anfällt, enthält eine Reihe von Spaltprodukten, Transuranen und Korrosionsprodukten und besitzt eine hohe Radioaktivität. Von den Spaltprodukten kommt u. a. den Elementen Technetium und Palladium besondere Bedeutung zu, da beide unter Beachtung bestimmter Sicherheitsvorkehrungen fast wie inaktive Substanzen behandelt und deshalb bekannten und neuen Einsatzgebieten zugeführt werden können. Technetium liegt als Technetium-99 vor; es ist ein reiner Betastrahler niedriger Energie (0,29 MeV) und langer Halbwertszeit ($2,1 \cdot 10^5$ Jahre). Palladium fällt im Spaltgemisch in Form stabiler Isotope mit

110, sehr kurzlebi-
ntsprechenden Lager-
instabilen Isotops
tszeit von $7 \cdot 10^6$

Technetium und
en der Wiederaufbe-
orgeschlagen (Pa-
m Technetium und

ternären Aminen
einem organischen
ng extrahiert und
einer wäßrigen Lö-
sungsphase mit einer
Extraktionsphase
e Phase kann im
der in den Ex-

arin, daß sich mit
Phase im Prozeß
verschlechtert.

Minuten ausreichen, bei der Reextraktion nach mehreren bei der angegebenen Aktivität des Verfahrens der Laugenkonzentrationen Verbesserungen entstehen außerordentlich. Diese Schwierigkeiten ließ die organische Eislauf geführt die ökonomische

Ziel der Erfindung

Das Ziel der Erfindung ist die Verbesserung des Verfahrens zur Gewinnung von Technetium und Palladium aus Kernbrennstoffwiederaufbereitungslösungen - gemäß Patent 145 909.

Darlegung des Wesens der Erfindung

Es ist Aufgabe der Erfindung, das Verfahren zur Gewinnung von Technetium und Palladium aus salpetersauren Abfalllösungen der Wiederaufbereitung abgebrannter Kernbrennelemente gemäß

Patent 145 909, bei dem Technetium und Palladium gemeinsam mit einer Lösung von ternären Aminen in einem organischen Lösungsmittel aus der wäßrigen Abfalllösung extrahiert und anschließend zunächst Palladium mit einer wäßrigen Lösung von Thioharnstoff und dann Technetium mit einer Lauge reextrahiert werden, so zu verändern, daß die organische Phase im Kreislauf geführt werden kann.

Das erfindungsgemäße Verfahren zur Gewinnung von Technetium und Palladium aus salpetersauren Abfalllösungen der Wiederaufarbeitung abgebrannter Kernbrennelemente durch gemeinsame Extraktion von Technetium und Palladium mit einer Lösung von ternären Aminen in einem organischen Lösungsmittel aus der wäßrigen Abfalllösung und Reextraktion des Palladiums mit einer wäßrigen Lösung von Thioharnstoff gemäß Patent

145 909 besteht darin, daß nach der Reextraktion des Palladiums das Technetium mit einer ammoniakalischen Lösung von Ammoniumrhodanid reextrahiert wird.

Die Reextraktion des Technetiums mit der angegebenen ammoniakalischen Lösung besitzt auch nach längeren Einsatzzeiten der organischen Phase eine ausreichend schnelle Kinetik. Am vorteilhaftesten verläuft die Reextraktion mit einer Lösung von 0,4M Ammoniumrhodanid in 2M Ammoniak.

Das Verfahren zur Gewinnung von Technetium und Palladium kann

damit nach folgendem Schema erfolgen: Zunächst erfolgt die gemeinsame Extraktion von Technetium und Palladium, z. B. in einem mehrstufigen Extraktor, wobei die organische Phase aus einer 0,5M-Lösung von ternären Aminen mit einer Kettenlänge von C_6 bis C_{10} (z. B. Tri-n-octylamin) in Tetrachlorkohlenstoff besteht. Die organische Phase wird gewaschen, z. B. mit 3M Salpetersäure, wodurch die Selektivität des Trennprozesses erhöht wird. Die wäßrige Phase wird nach der Abtrennung von Technetium und Palladium weiteren Trenn- und/oder Verarbeitungsstufen zugeführt. Aus der organischen Phase wird das Palladium mit einer 0,1M wäßrigen Thioharnstofflösung selektiv gewonnen, wobei gleichzeitig eine wesentliche Verringerung der Säurekonzentration des Amins erreicht wird, was sich günstig auf die nachfolgende Technetium-Reextraktion auswirkt. Die Reextraktion des Technetiums erfolgt mit einer 0,4M Ammoniumrhodanidlösung in Ammoniak. Die organische Phase kann im Anschluß an die Technetiumabtrennung wieder in den Extraktionsprozeß zurückgeführt werden, ohne daß eine Verschlechterung der Kinetik der Technetium-Reextraktion eintritt.

Ausführungsbeispiel

Die Figur zeigt die Kinetik der Technetium-Reextraktion unter verschiedenen Bedingungen.

Als Abfalllösung wird eine Modelllösung der Zusammensetzung eingesetzt, wie sie im ersten Ausführungsbeispiel der Patents 145 909 beschrieben ist. Diese Modelllösung wird einer zweistufigen Extraktion mit einer 0,5M Tri-n-Octylaminlösung in Tetrachlorkohlenstoff unterworfen. Bei einem Volumenverhältnis der wäßrigen Phase zur organischen Phase von 1:1 werden in der ersten Stufe 95 % des Technetiums und 78 % des Palladiums und in der zweiten Stufe 4,9 % des Technetiums und 13,5 % des Palladiums in die organische Phase extrahiert. Andere Spaltprodukte werden praktisch nicht extrahiert. Die organische Phase wird nach der zweiten Extraktionsstufe mit 3M Salpetersäure

zweimal gewaschen und anschließend mit einer 0,1M Lösung von Thioharnstoff in Wasser behandelt. Mehr als 99,5 % des in der organischen Phase enthaltenen Palladiums gehen dabei in die wäßrige Phase über, während Technetium in der organischen Phase verbleibt. Um die Kinetik der anschließenden Technetiumreextraktion zu untersuchen, wird sowohl neu angesetzte als auch mehrfach im Kreislauf geführte organische Phase mit verschiedenen Reextraktionslösungen behandelt:

Organische Phase	Reextraktionslösung	Kurve
neu angesetzt	1M NaOH	1
mehrfach eingesetzt	1M NaOH	2
mehrfach eingesetzt	2M NaOH	3
mehrfach eingesetzt	0,4M NH_4SCN in 2M NH_4OH	4

Die Ergebnisse sind in der Figur dargestellt.

Aus den Kurven ist zu ersehen, daß die Kinetik der Reextraktion mit ammoniakalischer Ammoniumrhodanidlösung so gut ist, daß bei Mischzeiten von 4 bis 6 Minuten mehr als 95 % des Technetiums aus der organischen Phase extrahiert werden können - auch dann, wenn diese mehrfach im Kreislauf geführt wird.

Erfindungsanspruch

1. Verfahren zur Gewinnung von Technetium und Palladium aus salpetersauren Abfallösungen der Wiederaufbereitung abgebrannter Kernbrennelemente durch gleichzeitige Extraktion von Technetium und Palladium mit ternären Aminen in einem organischen Lösungsmittel und Reextraktion des Palladiums mit einer wäßrigen Thioharnstofflösung - gemäß Patent 145 909, - - - - - dadurch gekennzeichnet, daß nach der Reextraktion des Palladiums das Technetium mit einer ammoniakalischen Ammoniumrhodanidlösung reextrahiert wird.
2. Verfahren nach Punkt 1, dadurch gekennzeichnet, daß zur Reextraktion des Technetiums eine 0,4M Ammoniumrhodanidlösung in 2M Ammoniak eingesetzt wird.

Hierzu 1 Seite Zeichnungen

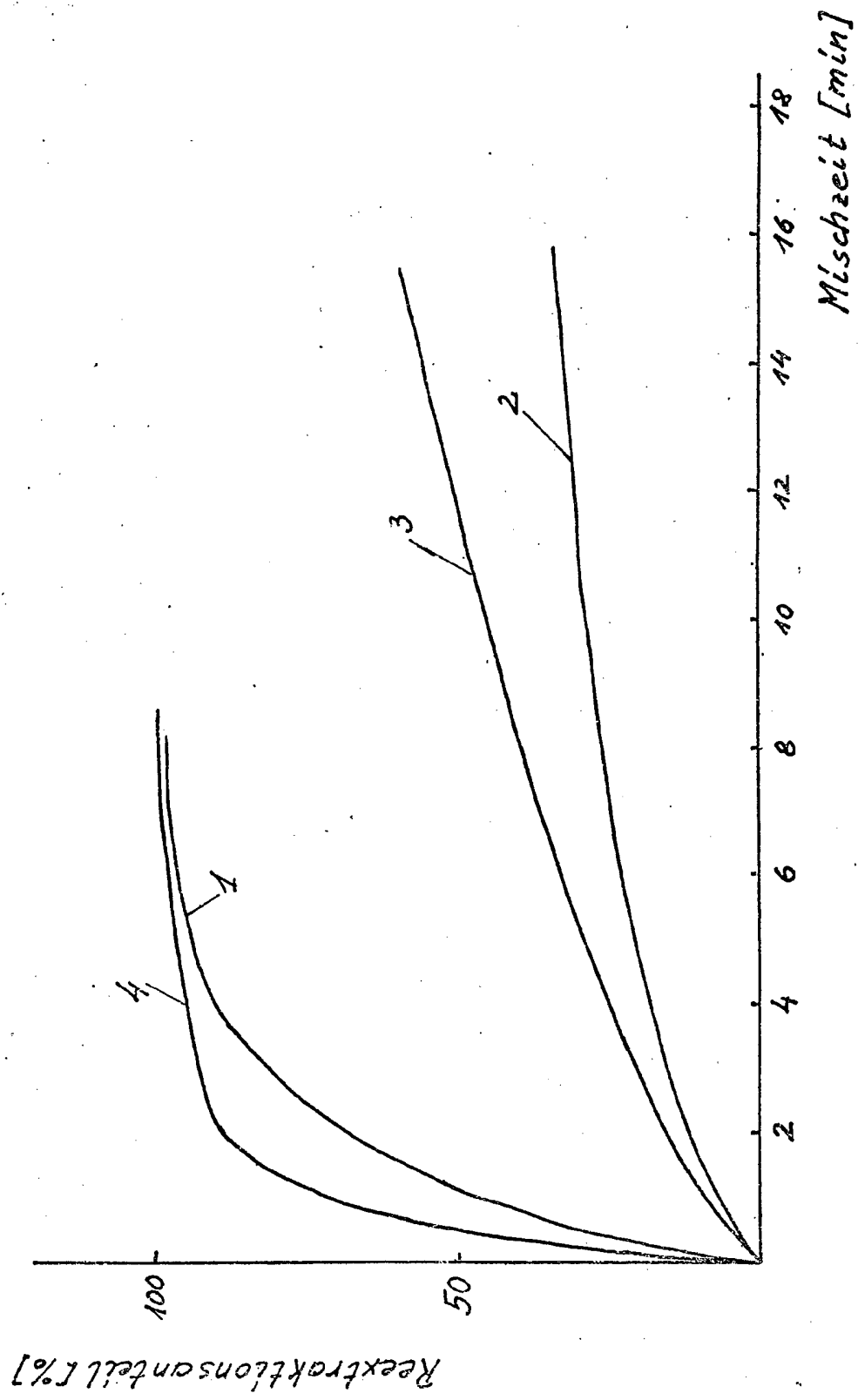


Fig.