

33452

GOUVERNEMENT DE LUXEMBOURG

TITRE N°

du 24 JUIN 1981

Titre délivré :



Monsieur le Ministre  
de l'Économie Nationale et des Classes Moyennes  
Service de la Propriété Industrielle  
LUXEMBOURG

## Demande de Brevet d'Invention

### I. Requête

Europäische Atomgemeinschaft (EURATOM) (1)

Bâtiment Jean Konat, Plateau du Kirchberg, Luxembourg

(2)

dépose ce 24 JUIN 1981 (3)

à 15.00 heures, au Ministère de l'Économie Nationale et des Classes Moyennes, à Luxembourg :

1. la présente requête pour l'obtention d'un brevet d'invention concernant :

"Verfahren zur Wiederaufbereitung von bestrahlten Kernbrennstoffen"

déclare, en assumant la responsabilité de cette déclaration, que l'est inventeur(s) est (sont) :

Lothar Löffel, Bleidämmung 1, D-7504 Weinheim (5)

Reiner Leibholz, Parkierweg 1, D-7515 Lärzheim-Holz

Wolfgang Kühnle, Erich Reckeistrasse 69, D-7501 Kaiserslautern

2. la déclaration de priorité déposée

3. la description en langue allemande de l'invention en deux exemplaires ;

4. deux planches de dessin en deux exemplaires ;

5. la quittance des taxes versées au Bureau de l'Enregistrement à Luxembourg.

le 24 JUIN 1981

révendique pour la susdite demande de brevet la priorité d'une (des) demande(s) de

(6) déposée(s) en (7)

le (8)

au nom de EURATOM (9)

élit domicile pour lui (elle) et, si désigné, pour son mandataire, à Luxembourg

Europäische Atomgemeinschaft, Bâtiment Jean Konat, Plateau du Kirchberg, Luxembourg (10)

solicite la délivrance d'un brevet d'invention pour l'objet décrit et représenté dans les annexes susmentionnées, — avec ajournement de cette délivrance à mois.

Le Fondé de pouvoir

J. LANNOY

### II. Procès-verbal de Dépôt

La susdite demande de brevet d'invention a été déposée au Ministère de l'Économie Nationale et des Classes Moyennes, Service de la Propriété Industrielle à Luxembourg, en date du :

24 JUIN 1981

à 15.00 heures

Pr. le Ministre

de l'Économie Nationale et des Classes Moyennes,  
p. d.



A 68067

11. Nom, prénom, firme, adresse — (2) si l'invention est déposée par une personne agissant en qualité de mandataire — 12. date du dépôt en toutes lettres — 13. titre de l'invention — 14. noms et adresses — 15. brevet certificat d'admission, modèle d'utilité — 16. pays — 17. date — 18. déposant original — 19. adresse — (10) 6 à 12 ou 18 mois.

EUROPAEISCHE ATOMGEMEINSCHAFT (EURATOM)

Patentanmeldung

Verfahren zur Wiederaufbereitung von bestrahlten  
Kernbrennstoffen

Erfinder: L. KOCH, R. DE MEESTER und M. COQUERELLE

Bei der Wiederaufarbeitung von plutoniumhaltigen Brennstoffen nach dem bekannten PUREX-Verfahren fallen unlösliche Rückstände an, die unter anderem Plutonium enthalten. Entsprechend den Herstellungsbedingungen des Brennstoffes und den Bestrahlungsbedingungen können die Rückstände bis zu einigen Prozente des eingesetzten Plutoniums betragen.

Die Rückstände sind hochradioaktiv und sehr gefährlich und müssen unbedingt in lösliche Form gebracht und weiterverarbeitet werden.

Die Erfindung besteht nun darin, die trockenen, nicht in Salpetersäure oder anderen starken Säuren löslichen Rückstände, die bei der ersten Stufe des PUREX-Verfahrens anfallen, mit trockenen Alkalihydroxiden unter oxidierenden Bedingungen bei erhöhter Temperatur zu behandeln.

Vorzugsweise erhitzt man den trockenen Rückstand im Mol-Verhältnis 1:4 innigst mit bei 120°C getrocknetem NaOH vermischt und in  $\text{CO}_2$ -freier und trockener Luft oder einem äquivalenter, oxidierenden Gasstrom ca 12 Stunden zwischen 550 - 800°C.

Dabei wird unter anderem das Pu, enthalten in den in Salpetersäure unlöslichen Rückständen, in das ternäre Oxid der Bruttoformel  $\text{Na}_6\text{PuO}_7$  übergeführt. Bei der Reaktionsbedingungen bilden sich zum Teil auch lösliche ternäre Oxide der Spaltprodukte. Der Umsatz zu der entsprechenden Americiumverbindung ist unvollkommen, da bei diesen Temperaturen die höherwertigen ternären Americiumoxide nicht mehr stabil sind.

Es wurden mehrere Versuche nach dem oben beschriebener Verfahren ausgeführt. Von den 270 mg im Rückstand von 1100 mg vorliegenden  $\text{PuO}_2$  sind mindestens 99% aufgelöst worden. (Da noch ungelöstes  $\text{AmO}_2$  vorlag, waren 3 mg die Nachweisgrenze für Pu.) Bei einem angenommenen Rückstand des  $\text{PuO}_2$  von 2% bedeutet ein Aufschluss von 99% des Rückstandes, dass dem Wiedergewinnungsprozess 95% des Plutoniums zugeführt werden kann.

Es sei erwähnt, dass das Reaktionsprodukt in 3 - 6 molarer  $\text{HNO}_3$  (entsprechend den Anforderungen der PUREX-Feed-Lösung) aufgelöst werden kann. Die zusätzliche Zufuhr am  $\text{NaNO}_3$  in den Prozess wird in der Größenordnung des ohnehin vorhandenen  $\text{NaNO}_3$  liegen.

Beim Verfahren gemäss der Erfindung werden wie erwähnt die Plutoniumverluste bei der Wiederaufarbeitung reduziert. Dadurch wird nicht nur die Oekonomie des Pu-Zyklus verbessert, sondern auch die Toxizität des Abfalls verringert. Kostspielige Herstellungsverfahren, die zu einer Vervielfachung des Herstellungspreises plutoniumhaltiger Brennstoffe führen, können vermieden werden.

Beispiel

Es wurden 1100 mg Rückstand mit 270 mg  $\text{PuO}_2$  und 7 mg  $\text{AmO}_2$  in einem Behälter aus Silber gemäss der Erfindung mit NaOH 12 Stunden auf 600°C erhitzt. Das erhaltene Produkt wurde in Salpetersäure gelöst und filtriert. Im Rückstand waren im Filter Pu und Am nicht mehr messbar.

Patentansprüche

1. Verfahren zur Wiederaufbereitung von bestrahlten Kernbrennstoffen, wobei in Säure unlösliche Rückstände anfallen, dadurch gekennzeichnet, dass die trockenen Rückstände längere Zeit bei hoher Temperatur mit Alkalihydroxid unter oxidierenden Bedingungen behandelt werden.
2. Verfahren gemäss Anspruch 1, wobei die Rückstände 12 Stunden bei 550-600°C mit NaOH erhitzt werden.

\*

\*

\*

