



KERNFORSCHUNGSANLAGE JÜLICH
GESELLSCHAFT MIT BESCHRÄNKTER HAFTUNG

Institut für Chemische Technologie

in Zusammenarbeit mit

NUKEM GmbH, Wolfgang bei Hanau

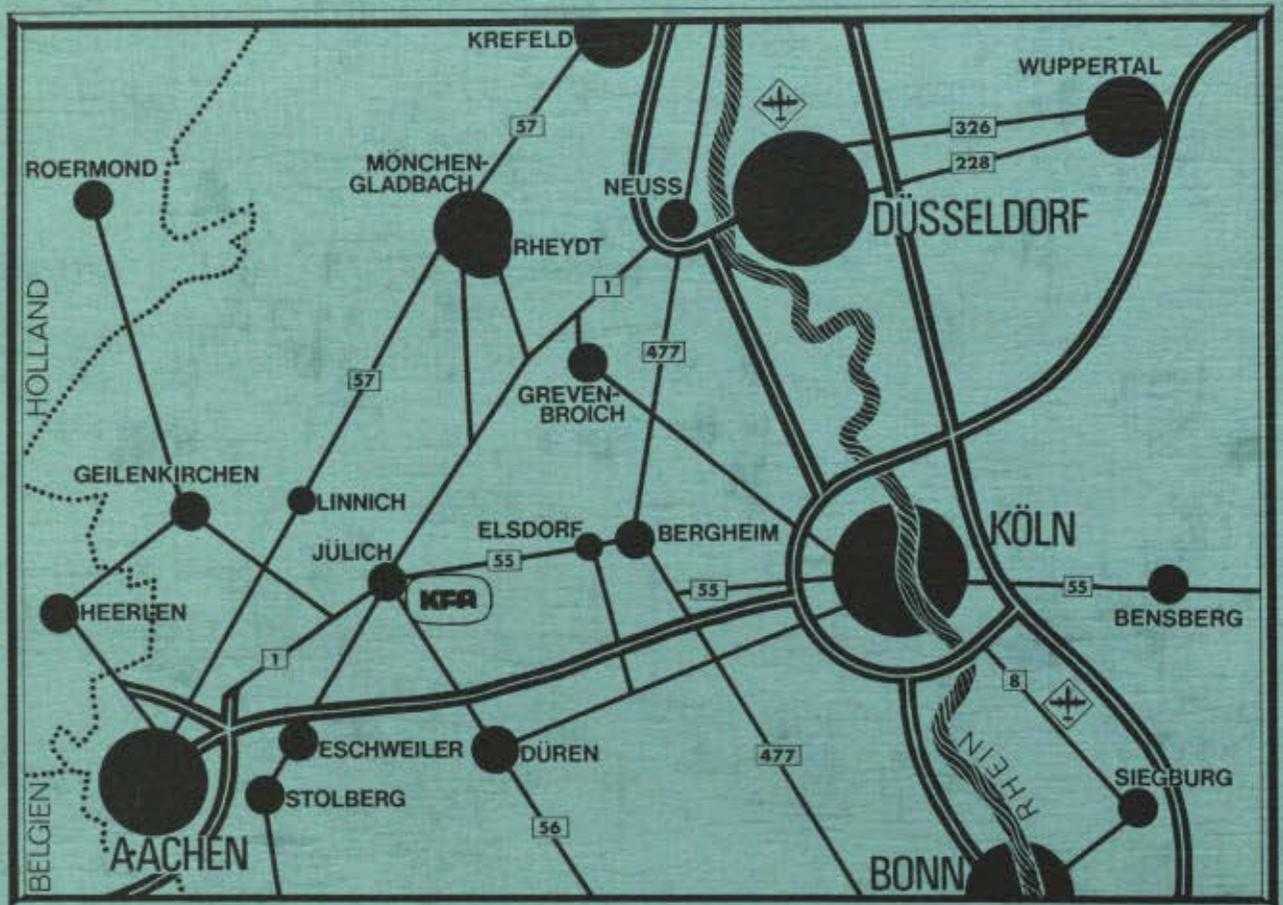
**HTR-Verbrennungs-Head-End
Gegenüberstellung des Schachtofen-
und Wirbelschichtverfahrens**

von

R. Böhnert, G. Kaiser, H. Pirk, U. Tillessen

JüI - 1152
Januar 1975

Als Manuskript gedruckt



Berichte der Kernforschungsanlage Jülich – Nr. 1152

Institut für Chemische Technologie Jül – 1152

Dok.: Reactor Fuel Reprocessing
 Combustion
 Fixed Bed
 Fluidized Bed

Im Tausch zu beziehen durch: ZENTRALBIBLIOTHEK der Kernforschungsanlage Jülich GmbH,
 Jülich, Bundesrepublik Deutschland

HTR-Verbrennungs-Head-End Gegenüberstellung des Schachtofen- und Wirbelschichtverfahrens

von

R. Böhnert, G. Kaiser, H. Pirk, U. Tillessen

I n h a l t

	<u>Seite</u>
1. Zusammenfassung	1
2. Problemstellung	1
3. Beschreibung des Schachtofenverfahrens	4
3.1 Verfahrenskonzept	4
3.2 Stand der Technik	6
3.2.1 Handhabung der Brennelemente	6
3.2.2 Kontrolle der Verbrennung	9
3.2.3 Abzug und Weiterbehandlung der Schwermetall-Partikeln	16
3.2.4 Beschreibung der existierenden Technikumsanlage	17
3.3 Entwicklungsmöglichkeiten	22
3.3.1 Basierend auf dem Stand der Technik	22
4. Beschreibung des Wirbelschichtverfahrens	27
4.1 Verfahrenskonzept	27
4.2 Stand der Technik	29
4.2.1 Handhabung der Brennelemente	30
4.2.2 Verbrennung	30
4.2.3 Abzug und Weiterbehandlung der Schwermetall-Partikeln	32
4.2.4 Beschreibung der Technikumsanlage	33
4.3 Entwicklungsmöglichkeiten	35
4.3.1 Stand der erprobten Technik	35
4.3.2 Ausblick auf mögliche Entwicklungen	38
5. Zusammenstellung des Standes der Technik und der Entwicklungsmöglichkeiten beider Verfahren	45
6. Literaturverzeichnis	47

1. Zusammenfassung

Es werden zwei Verfahren zur Verbrennung des Graphits von HTR-Brennelementen erläutert, wobei die Grundlagen nur insoweit behandelt werden als sie zum Verständnis der Verfahren notwendig sind. Sodann wird der Stand der Technik beider Verfahren unter Einbeziehung der Ergebnisse der Gulf General Atomic einander gegenübergestellt. Abschließend werden die Möglichkeiten der Weiterentwicklung am Beispiel einer Pilotanlage für eine zu bedienende Reaktorleistung von 7.000 MWe beschrieben.

Der Bericht ist eine Faktensammlung. Er beinhaltet weder eine Wertung noch eine Empfehlung. Eine kurzgefaßte Gegenüberstellung des Standes der Technik sowie der Entwicklungsmöglichkeiten ist aus der Tabelle 4 ersichtlich (s. Kapitel 5.).

2. Problemstellung

Das besondere Problem bei der Wiederaufarbeitung von HTR-Brennelementen besteht darin, daß hier der größte Teil des Moderators mit in die Wiederaufarbeitungsanlage geht. Während in der Eingangsstufe, dem sogenannten Head-End, einer LWR-Anlage für eine Leistung von 50.000 MWe jährlich z. B. nur ca. 250 m³ fester Abfall in Form von Hüll- und Strukturmaterialien anfallen, wären es in einer HTR-Anlage gleicher Größe ca. 4.000 m³ kompakter oder ca. 7.000 m³ gemahlener Graphit, würde man diesen als hochaktiven Abfall lagern wollen.

Nachdem gezeigt worden ist, daß das Verbrennungsabgas nach entsprechender Reinigung über einen Kamin ins Freie abgelassen werden kann (1, 2, 3), wurde als Konzept für das HTR-Head-End die pyrochemische Verbrennung gewählt. Eine Wiederaufarbeitungsanlage der genannten Größe erzeugt daher ca. 1.200 Nm³/h CO₂ und braucht zur Abfuhr der Verbrennungswärme von ca. 7 Gcal/h ($\hat{=}$ 8 MW_{th}) einen geschlossenen Kühl-

kreislauf, für den je nach Kühlmedium 10 t Dampf/h erzeugt oder $150 \text{ m}^3 \text{ H}_2\text{O}/\text{h}$ bzw. mindestens 130.000 Nm^3 Luft/h umgewälzt werden.

Der aus konventioneller Sicht geringe Wärmeumsatz (siehe Tabelle 1) würde bei Verwendung nur eines Ofens zu einem Feuerraum von mindestens 30 m^3 führen. Es ist heute schwer vorstellbar, daß ein so großer Ofen fernbedient betrieben und gewartet werden kann. Selbst wenn man die Limitierung der Baugröße durch die Kritikalität außer acht läßt, ist es - abgesehen vom Problem der Reservehaltung - erforderlich, anstelle eines großen Ofens mehrere kleine vorzusehen, die bei Defekten ausgewechselt werden können.

Im folgenden werden die Ofentypen der engeren Wahl einander gegenübergestellt. Betrachtet werden im wesentlichen nur der Schachtofen und der Wirbelschichtofen; der Whole-Block-Burner, in dem unzerkleinerte Brennelemente verbrannt werden, wird lediglich am Rande als Sonderform des Schachtofens behandelt. Alle Öfen dürften die gleichen kritischen Schachtabmessungen und nachgeschalteten Verfahrensstufen zur Reinigung des Verbrennungsabgases vom C-Staub und flüchtigen Radionukliden haben. Den beiden Verfahrensprinzipien ist weiterhin gemein, daß sie auf Brennelemente mit PyC-beschichteten Oxidpartikeln (BISO-Partikeln) abgestimmt sind.

Der Bericht ist eine Faktensammlung; er beinhaltet weder eine Wertung noch eine Empfehlung. Es werden theoretische Grundlagen, bisherige praktische Erfahrungen und ihre Konsequenzen für ingenieurmäßige Überlegungen und einen technischen Betrieb dargelegt.

Branche	Kesseltyp	max. Wärme- umsatz (Gcal/h)	max. Feuerraum- belastung (Gcal/m ³ · h)
Kraft- werke (4)	Staubfeuerung	2.000	0,15 - 0,25
	Wirbelschmelz- kammer	2.000	0,60 - 0,80
	Öl- und Gas- feuerung	2.000	0,25 - 0,35
	Wanderrost	70	0,25 - 0,40
Chemie und Hütten- wesen (5)	Wirbelschicht (Pyrit)	40	max. 1,5

Tabelle 1: Vergleich verschiedener Feuertechniken

3. Beschreibung des Schachtofenverfahrens

3.1 Verfahrenskonzept

Schon zu Beginn der 60er Jahre hat man das Schachtofenverfahren im ORNL erprobt (6). Dieses Vorhaben ist damals wegen der Schwierigkeiten bei der Temperatursteuerung und der Sauerstoffausnutzung zugunsten des Wirbelschichtverfahrens aufgegeben worden.

Die Nukem hat das Schachtofenverfahren wieder aufgegriffen und folgende Verbesserungen gegenüber dem ORNL-Ofen eingeführt:

- a) niedrige O_2 -Anreicherung (lange Brennzonen, Vermeidung von lokalen Überhitzungen)
- b) Wasserkühlung (Kaltwandreaktor, CO-Nachverbrennung in kalten Zonen, hohe O_2 -Ausnutzung)
- c) Zwei-Stufen-Verfahren:
 - Verbrennung des Matrixgraphits bei $1000 - 1200^\circ C$
 - Verbrennung des PyC bei $900 - 1000^\circ C$
(Vermeidung von Schlackenbildung)

Dieses Zwei-Stufen-Prinzip hat sich in Heißzellenversuchen bei der Verbrennung von 450 bestrahlten Kugelbrennelementen bewährt. Der in den großen Heißen Zellen der KFA betriebene Labor-Schachtofen ist über 200 Betriebsstunden störungsfrei gelaufen. Dieses günstige Ergebnis hat Nukem veranlaßt, das Schachtofenverfahren bevorzugt im Technikum weiter zu entwickeln und auf die Verarbeitung von Blockbrennelementen auszudehnen.

Das Verfahrenskonzept läßt sich wie folgt kurz beschreiben (s. Abb. 1):

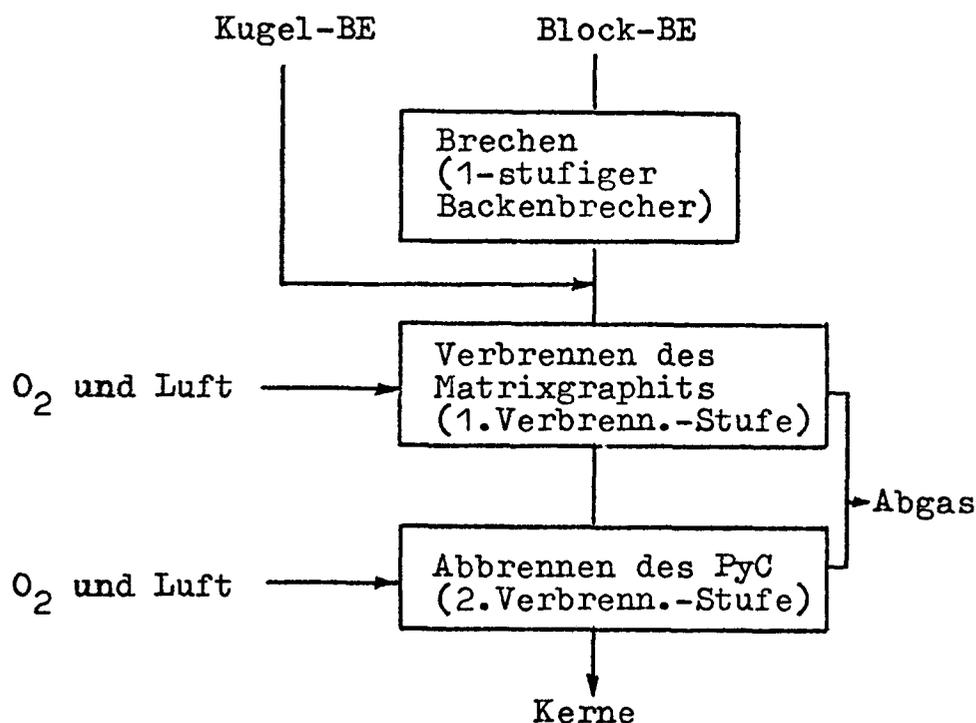


Abb. 1: Prinzip des Schachtofenverfahrens

In der ersten Stufe wird der Graphit, in der zweiten Stufe der verbrennungsträge pyrolytische Kohlenstoff (PyC) verbrannt. Die erste Stufe wird in einem Festbettreaktor durchgeführt. Dieser Schachtofen ist ein vom bewährten Hausbrand-Zentralheizungskessel abgeleiteter Ofentyp, allseitig wassergekühlt und mit wassergekühltem Rost versehen. Dieser wird mit unzerkleinerten Kugel-BE oder grobzerkleinerten Block-BE beschickt, die in einer Ruheschüttung mit O_2 -angereicherter Luft verbrannt werden. Dabei verbrennt fast ausschließlich nur der Matrixgraphit, während die beschichteten Partikeln, noch bevor der PyC im Schacht gänzlich abgebrannt ist, aus der Schüttung durch den Rost nach unten herausrieseln.

Der PyC wird in der zweiten Stufe in einem Mischbettreaktor, einer Kombination aus Fließbett- und Festbettreaktor, durch Verbrennung mit O₂-angereicherter Luft restlos beseitigt.

Anstelle von O₂-angereicherter Luft kann man selbstverständlich auch CO₂/O₂-Gemische verwenden, wobei das CO₂ zweckmäßigerweise dem Abgas entnommen und im Kreislauf geführt wird, um die Abgasmenge zu vermindern. Die Verwendung von O₂-angereicherter Luft im "once-through"-Verfahren bringt allerdings Vereinfachungen in der Abgasführung.

Die Zündung des Ofens geschieht durch Beschicken mit vorgeheiztem Graphit.

3.2 Stand der Technik

3.2.1 Handhabung der Brennelemente

Kugelförmige Brennelemente werden unzerkleinert dem Schacht-ofen zugeführt, so daß keinerlei Handhabungsprobleme im Dauerbetrieb entstehen; denn das Lagern, Fördern, Umfüllen, Vereinzeln, Zählen und Dosieren von Kugel-BE ist reaktor-seitig hinreichend erprobt worden. Die dort entwickelten Techniken werden einfach übernommen.

Auch für die Handhabung von Blockelementen existiert bereits ein erprobtes Konzept, nachdem eigene Versuche zur schonenden Grobzerkleinerung von Blöcken mit einem Backenbrecher (7) sowie das sehr umfangreichen Versuchsmaterial der GGA (8) zeigen, daß ein einstufiger Brechvorgang in einem Backenbrecher (s. Abb. 2) ausreicht, die mittlere Korngröße von ca. 60 mm zu erzielen. Mit einem handelsüblichen Fabrikat kann man ein Block-BE in weniger als 1 Minute zerkleinern. Abb. 3 zeigt die Kornverteilung bei verschiedenen Spaltweiten des Brechers. Das Brechgut wurde auf zerbrochene

- PARTS LIST**
- 1 MAIN FRAME
 - 2 PITMAN
 - 3 STATIONARY JAW PLATE
 - 4 MOVABLE JAW PLATE
 - 5 CHEEK PLATE(S)
 - 6 VERTICAL RIBS

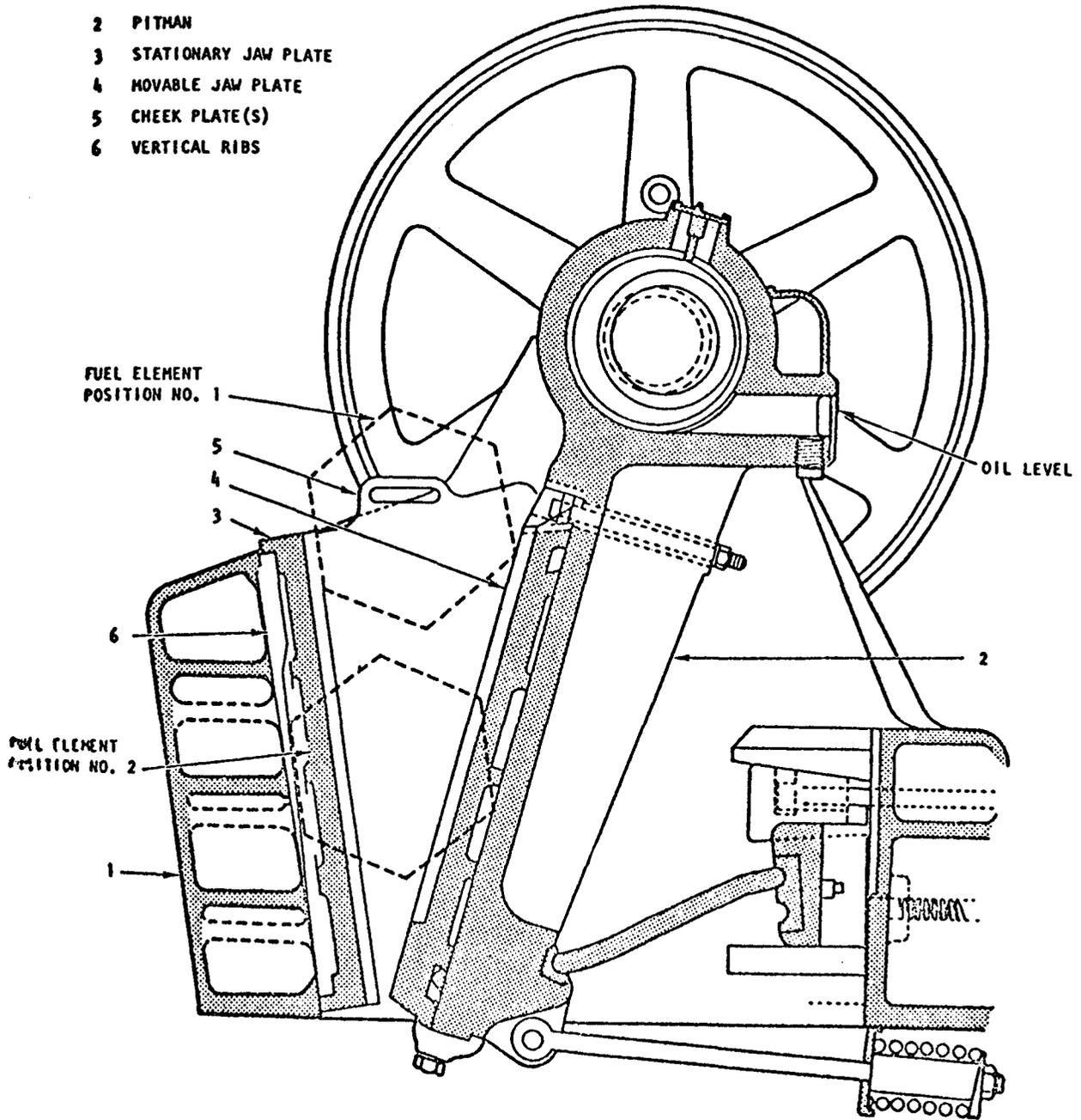


Abb. 2

Backenbrecher der Gulf General Atomic

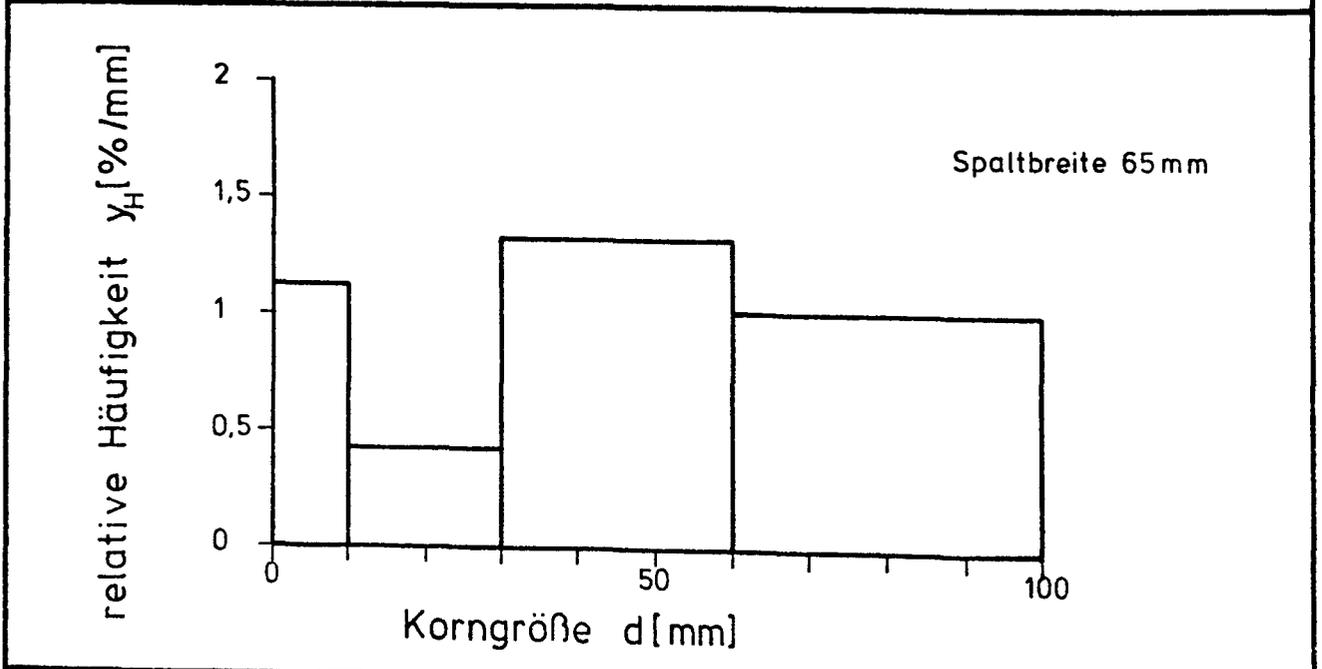
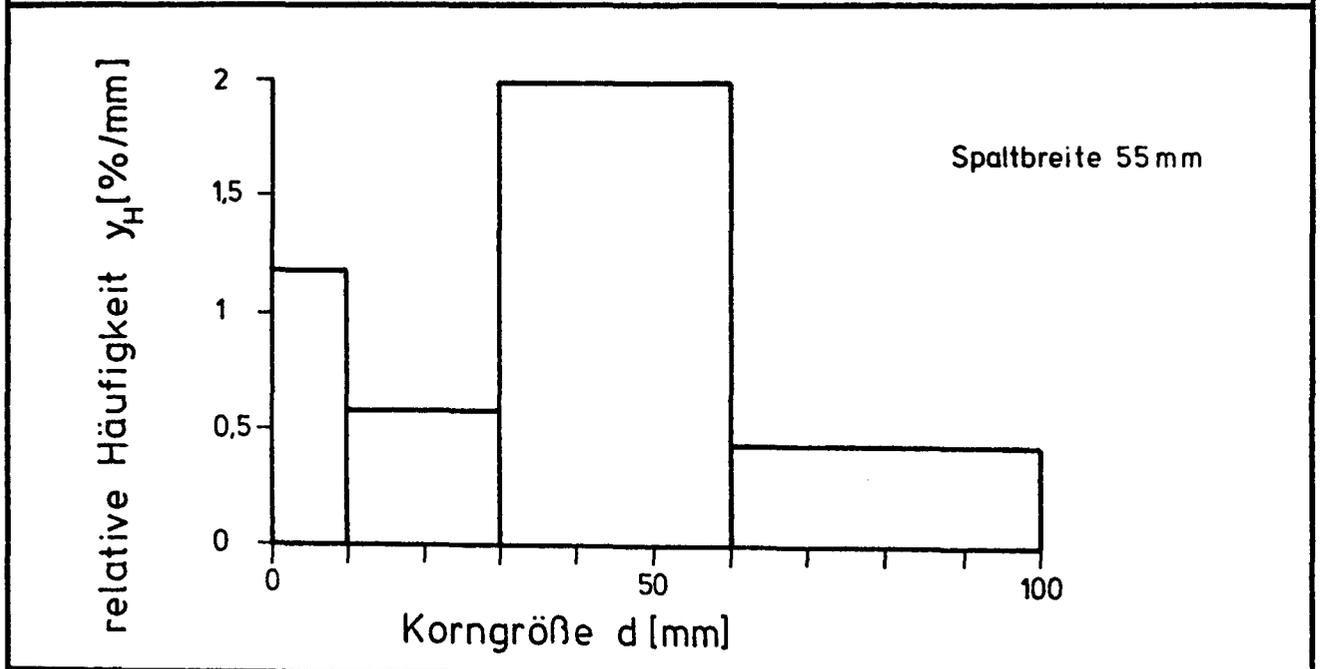
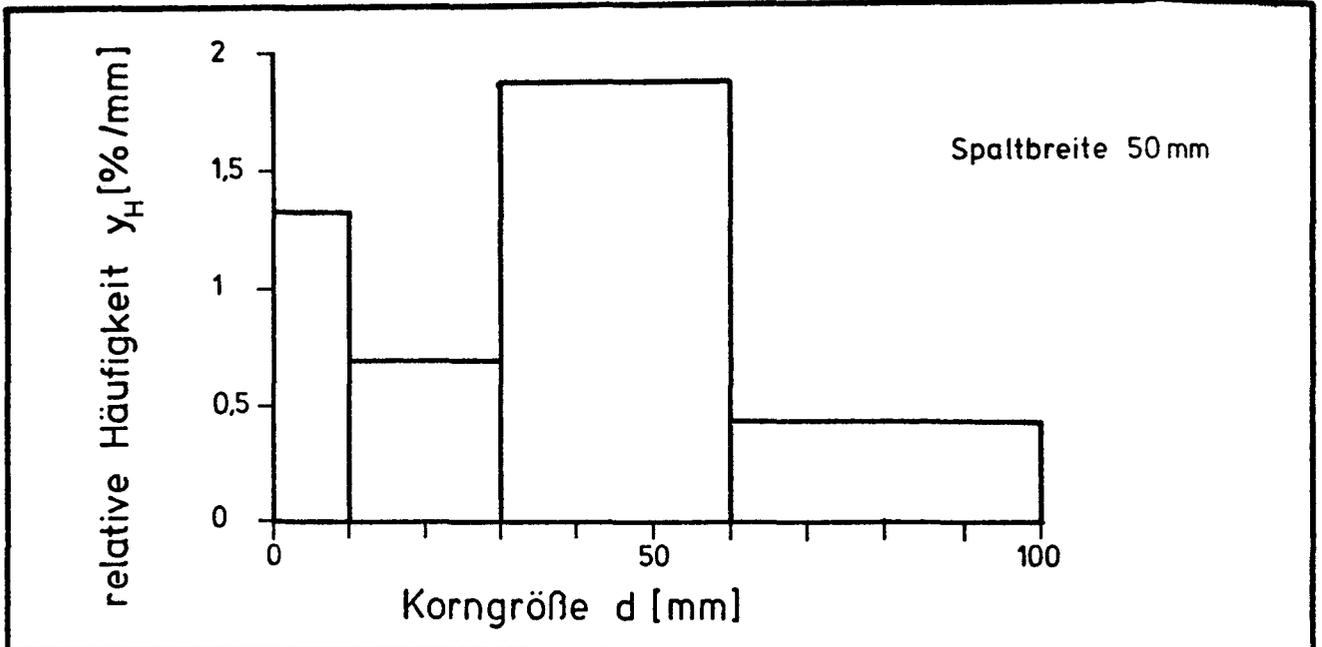


Abb. 3 Korngrößenverteilung bei verschiedenen Backenbrecherspalteinstellungen

Partikeln und Kerne untersucht. Bei der Auszählung von 1000 Stück konnten keine zerbrochenen Kerne entdeckt werden.

Das Brechgut kann dem Ofen über Fallrohre oder mit einem Horizontalförderer, über dessen Konstruktion bereits ein Konzept erarbeitet wurde, schubweise zugeteilt werden, so daß eine umständliche Zwischenbunkerung entfällt (s. Kapitel 3.4.1.1).

3.2.2 Kontrolle der Verbrennung

3.2.2.1 Wärmeabfuhr

Beim wassergekühlten Schachtofen ist die Wärmeabfuhr problemlos:

$$q = k \cdot \Delta t$$

q = Wärmestromdichte der Kühlfläche ($\text{kcal}/\text{m}^2 \text{ h}$)

k = Wärmedurchgangszahl ($\text{kcal}/\text{m}^2 \text{ }^\circ\text{C h}$)

Δt = Temperaturgefälle zwischen dem Inneren des Ofens und dem Kühlmedium ($^\circ\text{C}$)

Der Wärmedurchgangskoeffizient k setzt sich aus mehreren Parametern zusammen, dem Wärmewiderstand von der Schüttung zur Wand, dem Wärmeleitungswiderstand in der Wand und dem Wärmewiderstand von der Wand an das Kühlmedium. Am Nukem-Schachtofen wurde ein k -Wert von 100 - 120 $\text{kcal}/\text{m}^2 \text{ }^\circ\text{C h}$ gemessen. Die Abb. 4 zeigt das Temperaturprofil im Schachtofen.

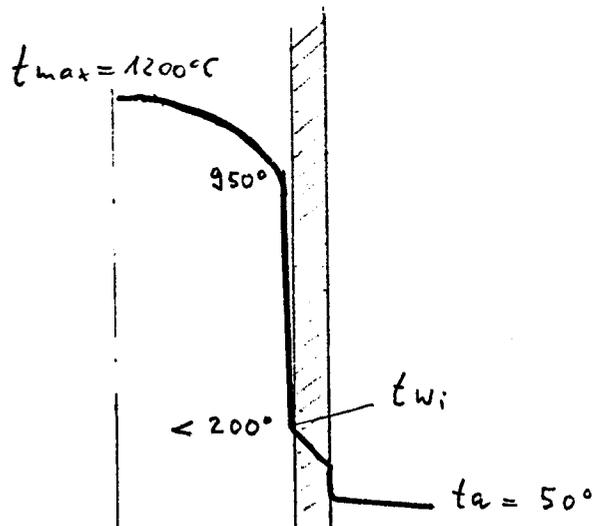


Abb. 4: Temperaturprofil im Schachtofen
(Kaltwandreaktor)

Die Tatsache, daß der Schachtofen mit wassergekühlten Wänden gefahren wird, führt zu erfreulich hohen Temperaturgradienten von 900°C zwischen der inneren Grenzschicht und dem Kühlmedium. Die Innentemperatur der Reaktorwand steigt dadurch auf nicht mehr als 200°C an, was für die konstruktive Auslegung, die Sicherheit im Heißzellenbetrieb und die Lebensdauer des Reaktors von überragender Bedeutung ist.

Für den Schachtofen ergibt sich damit rechnerisch folgende Wärmestromdichte, die sich auch im Technikumsbetrieb bestätigt hat:

$$\begin{aligned} q &= k \cdot \Delta t \\ &= 110 \cdot 900 = 100.000 \text{ kcal/m}^2 \cdot \text{h} \end{aligned}$$

Im allgemeinen wird bei der Maßstabsvergrößerung von zylindrischen Öfen das Verhältnis von Kühlfläche zu Rauminhalt kleiner, wodurch die Wärmeabfuhr erschwert wird und die Feuerraumbelastung sinkt, es sei denn, man wählt die Form eines Ringspalt mit konstanter Schichtdicke. Bei gegebener Kühlfläche ist aufgrund der begrenzten Kühlflächenbelastung die maximale Feuerraumbelastung festgelegt. Diese beträgt beim zylindrischen Technikumsofen der Nukem $1,6 \text{ Gcal/m}^3 \text{ h}$. Dieser Ofen von $350 \text{ mm } \varnothing$ hat im Zentrum ein wassergekühltes Rohr, welches die Zentraltemperatur im Ringspalt auf 1150°C begrenzt.

Alle der glühenden Schüttung ausgesetzten Teile werden nicht heißer als 200°C . Die Lebensdauer ist daher unbegrenzt lang und es kann 18/8-Stahl (V2A) verwendet werden.

3.2.2.2 Kinetik

a) Kugelelemente

Die Abb. 5 zeigt die Umsatz/Zeit-Kurven für verschiedene Sauerstoffpartialdrücke, gemessen an einem kugelförmigen Element. Man ersieht daraus, daß es natürlich lang dauert, bis eine Kugel gänzlich verbrannt ist (siehe auch Tabelle 2). Um in dem schraffierten Arbeitsbereich zu bleiben, wartet man nicht ab, bis die Kugeln endgültig verbrannt sind, sondern beschickt den Ofen durch eine Schleuse kontinuierlich bzw. schubweise mit neuen Kugeln. Die Verbrennungsgeschwindigkeit bei einem mittleren Sauerstoffpartialdruck von 0,15 und einer mittleren Korngröße von ca. 30 mm ist bereits so hoch, daß bei voller Ausnutzung dieser Reaktionsgeschwindigkeit die entstehende Wärme nicht mehr durch die Wand abgeführt werden kann, es sei denn, man nähme höhere Zentraltemperaturen in Kauf.

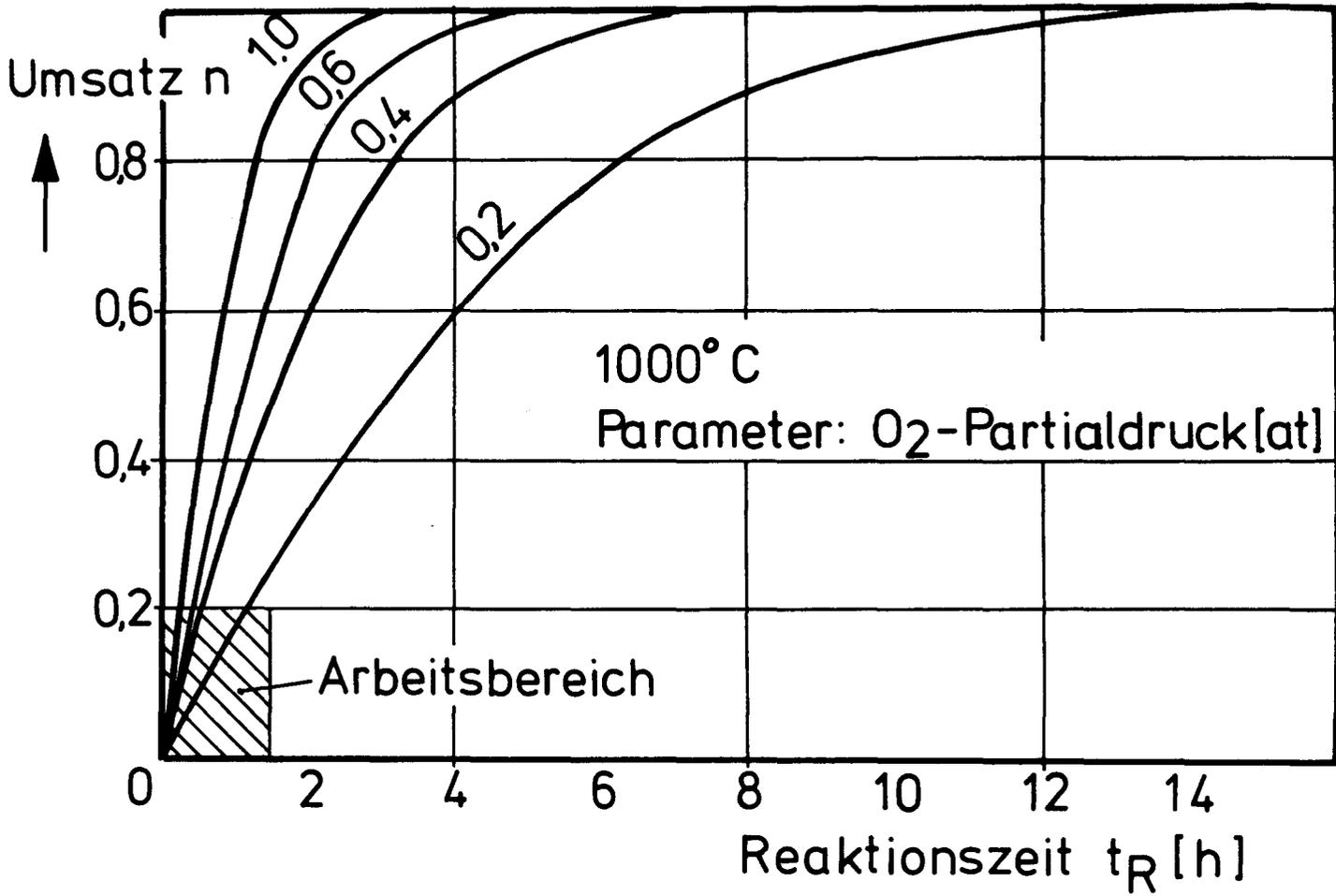


Abb. 5: Umsatz/Zeit-Kurven

$P_{O_2}(at)$	$t_{R ges.}(h)$
1	3,0
0,8	3,8
0,6	5,0
0,4	7,6
0,2	15,1
1,175	17,2

Tab. 2: Gesamtreaktionszeit in Abhängigkeit vom O_2 -Partialdruck bei $1000^\circ C$

Der mittlere O_2 -Partialdruck von 0,15 bedeutet, daß die Verbrennungsluft mit einer Anreicherung auf 30 Vol.% O_2 in den Ofen eintritt und diesen mit ca. 1 % O_2 verläßt.

Würde man auf eine Anreicherung der Verbrennungsluft mit Sauerstoff gänzlich verzichten, so wäre die Verbrennungsgeschwindigkeit und somit die Wärmeentwicklung so gering, daß der Ofen ausginge.

Anstelle von Verbrennungsluft kann man auch recycliertes Abgas, d.h. Kohlendioxyd, dem man 30 Vol.% frischen Sauerstoff zumischt, verwenden. Das hat auf die Kinetik keinen negativen Einfluß.

b) unzerkleinerte Blockelemente

Überträgt man den o.a. Sachverhalt auf unzerkleinerte blockförmige Elemente, so ergibt sich aufgrund theoretischer Überlegungen folgendes Ergebnis, das bei Nukem durch Experimente gestützt worden ist (9):

Unter der Voraussetzung, daß auch die Oberfläche der Kühlkanäle an der Reaktion teilnimmt, dauert es bei 30 Vol.% O_2 -Anreicherung im eintretenden Gas ca. 20 h bis ein Block verbrannt ist, wobei die Umsatz/Zeit-Kurve ein Maximum durchläuft. Gegen Ende der Verbrennung ist die Feuerraumausnutzung extrem schlecht. Daher die augenblicklichen Überlegungen im ORNL, die Blöcke horizontal anzuordnen und kontinuierlich nachzuschieben. Auch in diesem Fall brennt nur der vorderste Block. Nach unserer Berechnung würde es 8 h dauern, bis das Äquivalent eines Blockes verbrannt ist. Eine Verkürzung dieser Zeit mit höherer O_2 -Anreicherung ist nicht möglich, wenn die Zentraltemperatur $1200^{\circ}C$ nicht überschreiten soll. Die kommerzielle Anlage für 50.000 MWe benötigt somit 60 Öfen. Der Ganzblockbrenner wird daher im folgenden nicht weiter betrachtet.

c) gebrochene Blöcke

Die für Kugeln angestellten Überlegungen gelten in gleicher Weise auch für den gebrochenen Block. Das Schachtofenverfahren steht somit zwischen dem Whole-Block-Burner, bei dem überhaupt nicht zerkleinert wird, und dem Wirbelschichtverfahren, bei dem feiner gemahlen wird als kinetisch notwendig ist. Die Stückgröße beim Schachtofenverfahren muß nur so beschaffen sein, daß das gebrochene Gut kontinuierlich oder schubweise in den Ofen gefördert werden kann. Wählt man eine Stückgröße von 60 mm, so hat man gegenüber der Kugel sogar einen geringfügigen Oberflächengewinn, der aber aus den genannten Gründen der Wärmeabfuhr nicht ausgenutzt werden kann.

3.2.2.3 Schlußfolgerungen

Arbeitet man mit O_2 -angereicherter Luft von mindestens ca. 30 Vol.% O_2 und stückigem Aufgabegut von ca. 60 mm Korngröße, so ist die aus anderen Gründen festgelegte Temperatur im Innern der Schüttung der einzige Parameter, der den Durchsatz eines gegebenen, im Hinblick auf Kritikalität (10) sicher ausgelegten Schachtofens begrenzt.

Andere Parameter, wie Korngröße des Graphits, Strömungsgeschwindigkeit des Gases in der Schüttung, O_2 -Partialdruck $> 0,3$, Art des Inertgases (Stickstoff oder CO_2) wirken nicht limitierend und sind in weiten Grenzen frei wählbar, was den Betrieb des Ofens stark vereinfacht. Bei der Zerkleinerung und der Verbrennung entsteht relativ wenig Staub, der pneumatisch direkt und ohne das Betriebsverhalten zu stören, in den Schachtofen zurückgeführt wird.

Um das Temperaturprofil in axialer Richtung zu vergleichmäßigen, wird das Verbrennungsgas in übereinanderliegenden

Zonen radial in die Schüttung geblasen.

Auf eine Temperaturmessung kann verzichtet werden, wenn die Untersuchung des Temperaturverhaltens der Schüttung in Abhängigkeit von der angebotenen O_2 -Menge und vom O_2 -Partialdruck abgeschlossen worden ist. Eine Regelung der Verbrennung ist wie beim Hausbrand-Kokskessel nicht erforderlich, wie im Versuch gezeigt wurde.

Der Zündvorgang wird über die Abgasanalyse verfolgt und von Hand gesteuert.

Das Abgas wird im Ofen nach unten durch den separat wassergekühlten Rost abgezogen. Das bringt mehrere Vorteile:

- Der Feinanteil des Brechgutes wird in die glühende Schüttung geblasen und verbrennt dort nahezu vollständig, so daß dieser Ofentyp mit einem sehr geringen Staubaustrag von 1,5 % der Aufgabemenge arbeitet.
- Der obere und der untere Ofenflansch bleiben kalt (max. $200^{\circ}C$), so daß bei diesem Ofentyp keinerlei Isolationsprobleme auftreten und Dichtungsfragen wesentlich vereinfacht werden.
- Die Durchströmung der Schüttung mit dem Brenngas in Richtung der Schwerkraft führt zu einem wirkungsvollen Freiblasen der Schüttung von Staub und freigelegten Partikeln. Somit wird eine gleichförmige Verteilung des Spaltstoffes im Reaktionsraum gewährleistet, wodurch trotz der Annahme eines optimal moderierten Systems eine technisch vernünftige Gestaltung des Reaktors ermöglicht wird.
- Das Abgas wird beim Durchtritt durch die rostnahen Zonen und den wassergekühlten Rost selbst so weit abgekühlt ($250^{\circ}C$), daß die nachgeschalteten Zyklonabscheider und

Grobfilter damit direkt beaufschlagt werden können.

- Das in der Brennzone entstehende CO wird in der Rostzone durch noch vorhandenen Sauerstoff nahezu vollständig verbrannt, so daß der CO-Gehalt im Abgas auf unter 1 % gehalten werden kann.

3.2.3 Abzug und Weiterbehandlung der Partikeln

Die Partikeln, deren PyC wesentlich langsamer verbrennt als der Matrixgraphit (s. Abb. 6) werden vom Gasstrom beschleunigt und zusammen mit Staub aus der Schüttung durch den Rost ausgetragen.

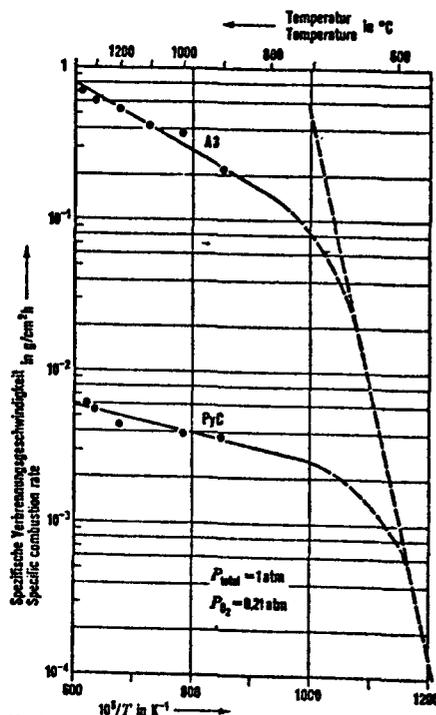


Abb. 6

Spezifische Verbrennungsgeschwindigkeit von A3-Graphit und pyrolytischem Hochtemperatur-Kohlenstoff (PyC) (bezogen auf die geometrische Oberfläche) als Funktion der reziproken Kelvin-Temperatur T

Ein Zyklon sorgt für die weitgehende Sichtung von Staub und Partikeln. Die vollständige Sichtung übernimmt die nachgeschaltete Wirbelschicht selbst. Die geringfügige

Staubmenge der ersten und zweiten Stufe wird pneumatisch in die erste Stufe zurückbefördert.

Die unvollständig abgebrannten Partikeln werden pneumatisch in den von außen luftgekühlten Mischbettreaktor eingefördert. Mit einem Gemisch aus O_2 mit Luft oder CO_2 wird die PyC-Schicht vollständig abgebrannt. Dabei wird in einem zylindrischen Schacht in der oberen Zone, in der das Gut durch das Brenngas fluidisiert wird, die PyC-Schicht weitestgehend abgebrannt, während in der darunter befindlichen Ruheschüttung der Kohlenstoff restlos verbrannt wird. Die im Kapitel 4 angeschnittenen Probleme der Wirbelschichtverbrennung stellen sich bei der hier vorgesehenen Verbrennung von Partikeln diskreter Teilchengröße und mit geringem Staubanteil nicht, zumal auch der erforderliche Wärmeumsatz mindestens um den Faktor 10 kleiner ist.

3.2.4

Beschreibung der existierenden Technikumsanlage

Zum Zünden des Reaktorinhalts werden unzerkleinerte Kugелеlemente oder grob zerkleinerte Blockelemente (mittlere Korngröße 60 mm) in einen Vorheizofen gefördert, auf $1000^{\circ}C$ erhitzt, und in Schüben à 4 kg in den darunter liegenden Ofen durch eine Schleuse abgelassen. Der zylindrische Ofen hat die lichten Abmessungen 350 mm Durchmesser mal 1100 mm. Die freigesetzten Wärmemengen werden durch die Wasserkühlung der Wand, eines zentralen Kühlrohres und des Rostes abgeführt. Als Verbrennungsgas wird O_2 -angereicherte Luft mit 30 Vol.% O_2 verwendet, die in mehreren übereinanderliegenden Zonen eingeleitet wird. Das Reaktionsgas durchströmt den Ofen aus den bereits genannten Gründen von oben nach unten. Ein einfacher Zyklonabscheider im Abgasstrom von $250^{\circ}C$ sorgt für eine Trennung der Partikeln vom kalten Staub, der nach Abscheidung vor Metallfiltern pneumatisch mit Luft in die erste Stufe, den Schachtofen, zurückgeführt wird (s. Abb. 7 und 8). Der Ofen wird im leichten Unterdruck betrieben.

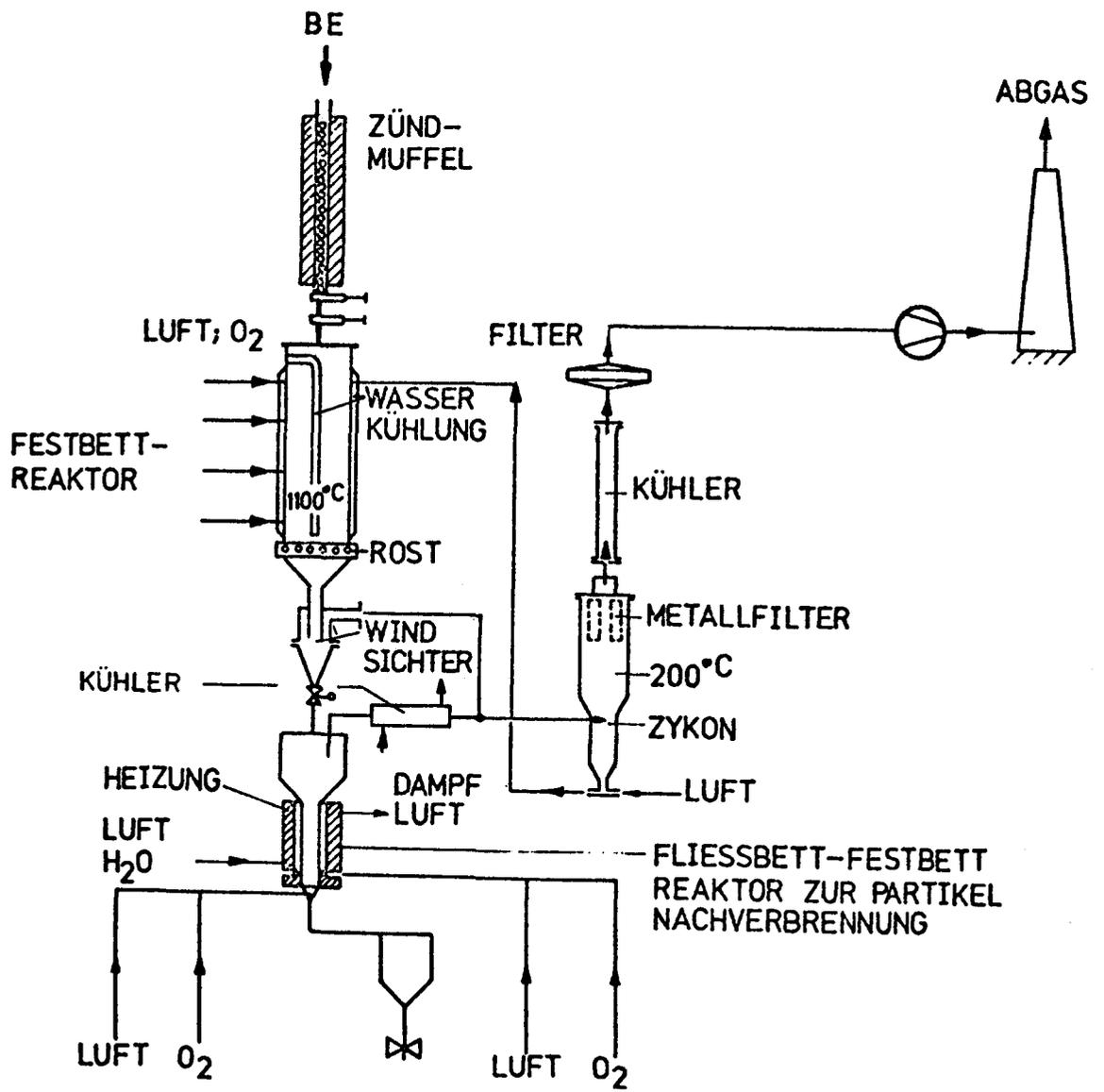


Abb. 7

Apparatefließbild der Technikumsanlage der NUKEM

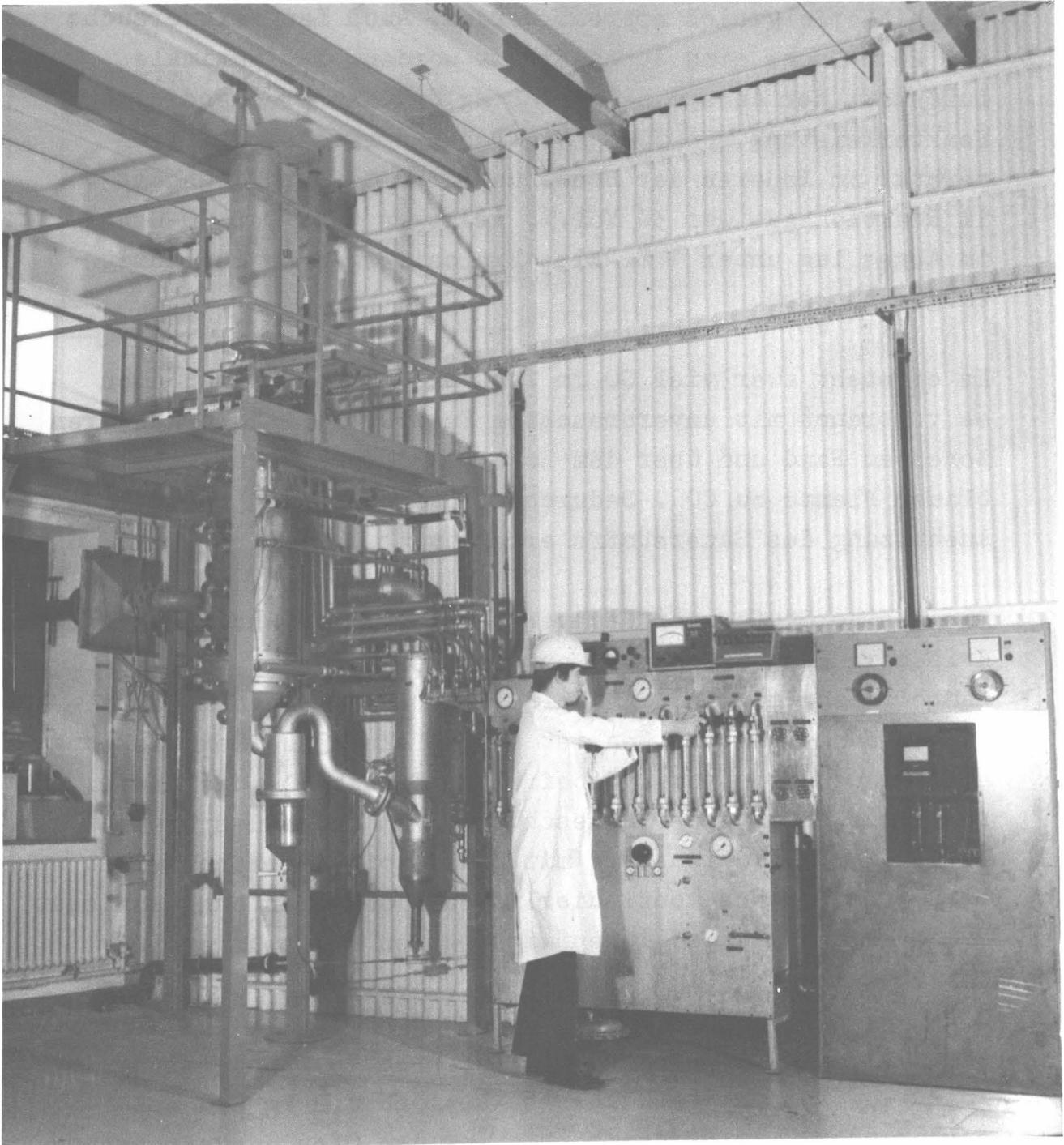


Abb. 8: Schachtofen
zur Verbrennung von HTR-Brennelementen

Abb. 9

Die erste Stufe ist bereits bei der Verbrennung von mehr als 2500 Kugelementen und 400 kg zerbrochenem Stangen-graphit erfolgreich erprobt worden. Auch Langzeitversuche von 24 h Dauer sind durchgeführt worden. Der maximale Durchsatz der Anlage betrug 18 kg C/h entsprechend einer Reaktorleistung von 1000 MWe. Dabei erreichte die Temperatur im Inneren der Schüttung 1150°C. Der O₂-Gehalt im Reaktionsgas war 30 Vol.%, im Abgas 1 %. Der CO-Gehalt im Abgas lag unter 1 %. Eine Explosionsgefahr ist somit ausgeschlossen.

Es entsteht zwar viel CO im Zentrum der Schüttung; doch es verbrennt mit unverbrauchtem Sauerstoff in den kälteren Zonen am Rand und über dem Rost mit der charakteristischen blauen Flamme zu CO₂. Dadurch wird eine nahezu vollständige Ausnutzung des Sauerstoffs erreicht.

Die zweite Stufe, der Nachverbrennungsofen, ist ein zylindrischer Mischbettreaktor aus warmfestem Stahl, dessen Mantelfläche mit Luft gekühlt wird. Sie ist daher doppelwandig ausgeführt. Außen ist eine elektrische Heizwicklung aufgebracht. Die vom PyC befreiten Partikeln, die Kerne, sammeln sich in einer Ruheschüttung am Boden des Ofens, wo restlicher Kohlenstoff mit Sauerstoff verbrannt wird. Sie werden sodann kontinuierlich aus dem Ofen ausgeschleust. Diese Anlage ist mit ihren wichtigsten Abmessungen in Abb. 9 dargestellt.

Die 2. Stufe ist mangels Material erst 15 Stunden lang gelaufen. Die Verbrennungsrate beträgt 1,2 kg C/h entsprechend 1,7 kg Kernen/h. Die aus dem Ofen ausgetragenen Kerne enthalten einen restlichen C-Gehalt von 0,05 %.

Der Schachtofen und der Nachverbrennungsofen sind getrennt voneinander getestet worden.

3.3 Entwicklungsmöglichkeiten

3.3.1 Basierend auf dem Stand der Technik

3.3.1.1 Allgemeines

Um bei der Vergrößerung des Schachtofens hinreichend Kühlfläche anzubieten, sind z.Zt. zwei Schachtofentypen in der engeren Wahl: der Slab-Ofen und der Ringspaltofen.

Die Form des Slabs ist aus der Metallurgie bekannt (z.B. Wassermantelöfen bei der Blei- und Kupferarbeit). Auch große Koksstoker für Zentralheizungen haben aus den genannten Gründen einen rechteckigen Querschnitt. Das besondere Problem des Slabs ist die gleichmäßige Verteilung des Brennstoffs über der Länge des Ofens. Ferner treten Festigkeitsprobleme an den Seitenflächen des Ofens auf, da dieser im Unterdruck gefahren wird. Diese Nachteile hat die kreissymmetrische Anordnung nicht.

Die Verteilung des Brechgutes erfolgt bei Aufgabe in der Reaktorachse gleichmäßig, ohne daß mechanische Hilfsmittel nötig wären. Konstruktiv bietet der Ringspaltreaktor keine Schwierigkeiten. Die gleichmäßige Verteilung des Brenngases und auch des Kühlwassers ist einfach zu erreichen.

Aufgrund der günstigen Ergebnisse mit dem Technikumsofen und der Scale-up-Überlegungen ist dem Ringspaltreaktor der Vorzug zu geben.

Die Größe des Ofens, die als nächste Ausbaustufe, ausgehend vom Stand der Technik bei Nukem, vernünftigerweise angestrebt werden soll, hat den Durchsatz von 1 Block-Brennelement/h entsprechend 500 Kugeln/h, entsprechend einer Reaktorleistung von 7000 MWe (Verfügbarkeit: 300 d/a). Dies käme einer Maßstabsvergrößerung um den Faktor ca. 6 gleich. Eine stärkere Maßstabsvergrößerung halten wir im

Hinblick auf die sicherlich auftretenden zusätzlichen und apparativen Probleme, die besonderen Gegebenheiten in fernbedienten Zellen sowie die Kritikalitätsfrage derzeit nicht für sinnvoll. Im folgenden wird das Konzept einer solchen Anlage am Beispiel der Verarbeitung von Blockelementen beschrieben.

3.3.1.2 Beschreibung der Anlage

a) Zerkleinerung

Die Blockelemente werden in horizontaler Lage in das Maul eines staubdicht gekapselten und mit einer Absaugung versehenen Backenbrechers eingebracht (Maulbreite 600 x 850 mm, s. Abb. 5) und in weniger als einer Minute auf mittlere Korngröße von ca. 80 mm zerbrochen (maximale Spaltweite 80 mm).

Hierfür wird ein robustes Markenfabrikat eingesetzt, das festigkeitsmäßig nur geringfügig beansprucht wird und nahezu eine unbegrenzte Lebensdauer verspricht. Das Brechgut wird von einer zentralen Zerkleinerungsanlage, wie sie für das Head End einer 50.000 MWe Zelle benötigt wird, den Öfen zugeteilt.

Die einfachste Lösung wäre die Beschickung über Fallrohre von oben, was auf Kosten der Bauhöhe geht. Mit einem Horizontalförderer (z.B. Beschickungswagen auf Schienen) kann man Baukosten einsparen.

b) Schachtofen (1. Stufe)

Der Schachtofen ist an seiner Einfüllöffnung für das Fördermittel mit einem Schüttgutschieber verschlossen. Durch Öffnen des Schiebers fällt das Brechgut infolge Schwerkraft in den Ofen. Die Abmessungen des Ofens betragen:

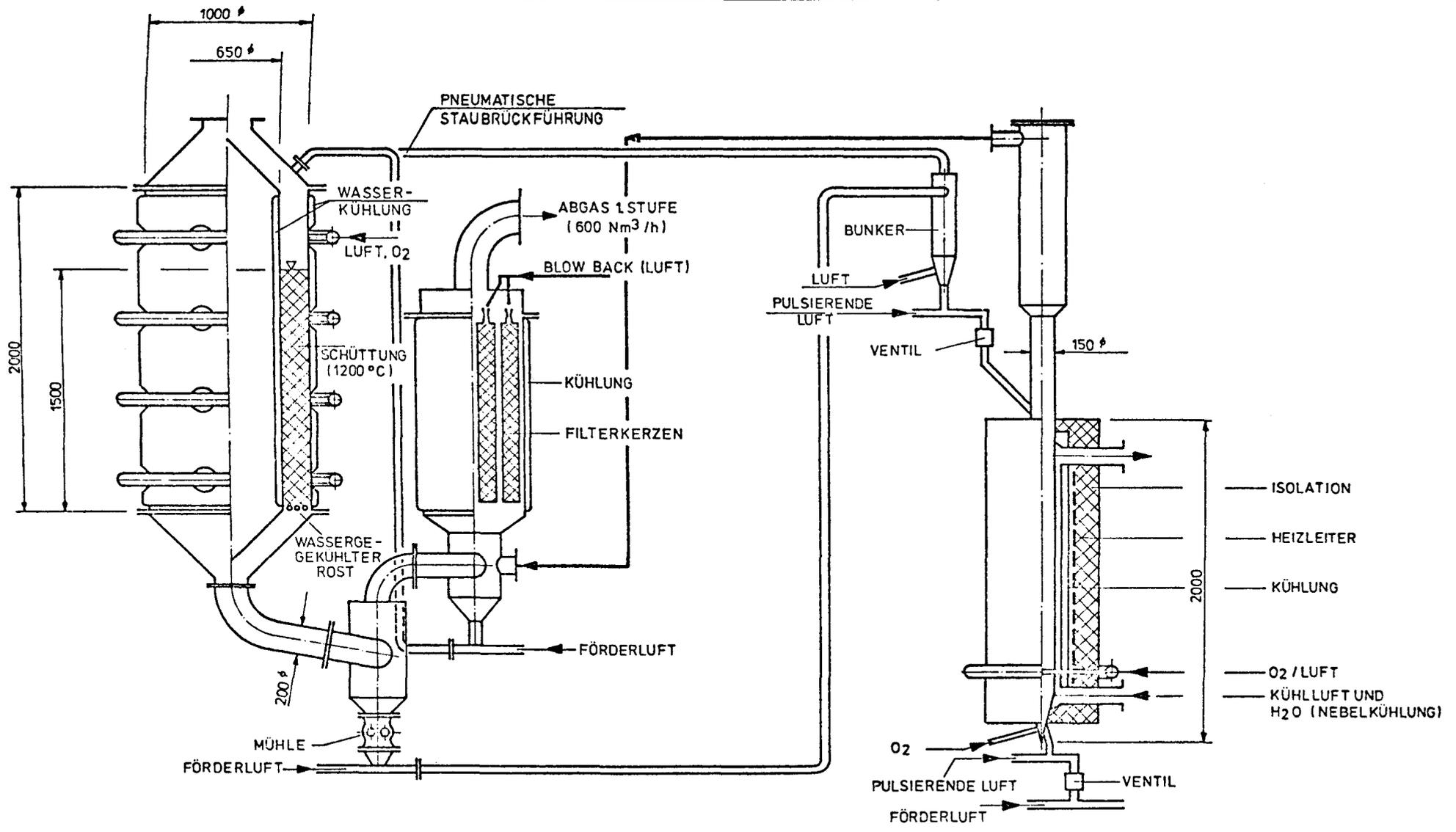
1000 mm lichter Außendurchmesser
650 mm lichter Innendurchmesser
1500 mm Schütthöhe
2000 mm Höhe des Ringspaltzylinders
über dem Rost

In der Abb. 10 ist die Verbrennungsanlage am Beispiel des Ringspaltofens mit ihren wichtigsten Abmessungen maßstabsgerecht dargestellt.

Das Verbrennungsgas, vorzugsweise O_2 -angereicherte Luft, wird in vier Zonen aus vier Ringleitungen entnommen und radial der Schüttung zugeführt. Es wird nach unten durch den wassergekühlten Rost abgesaugt. Sollte es sich herausstellen, daß eine Krypton-Abtrennung im Abgas der ersten Stufe notwendig ist, so wird ein Teil des Abgases recyclet, mit reinem Sauerstoff versetzt und auf Luftzufuhr verzichtet.

Die Partikeln fallen aus dem Rost gemeinsam mit gelegentlich durchfallenden größeren Graphitstücken und gelangen mit dem Abgas in einen Zyklonscheider, der Partikeln und Graphitstücke in eine kleine Walzenmühle abscheidet. Feiner Staub geht mit dem Abgas in eine Filterkammer und von dort mit einem Teil der Verbrennungsluft pneumatisch zurück in den Ofen.

Die Walzenmühle wird auf eine Spaltweite von 1 - 2 mm eingestellt, so daß nur Graphit, aber keine Partikeln zerstört werden. Das aus der Mühle herausfallende Gut wird von einer pneumatischen Förderstrecke erfaßt und in einem Puffergefäß abgeschieden. Dabei erfolgt abermals eine Sichtung vom Staub, der zusammen mit dem Fördergas in das bereits genannte Abgasfilter des Schachtofens und somit zurück in den Schachtofen geht (pneumatischer Staubkreislauf).



	KONZEPT EINER SCHACHTOFENANLAGE FÜR EINEN DURCHSATZ VON 100 kg C/h (\approx 7000 MWe)		MASSTAB	Abb. 10
	GEZ GFR	DATUM 24.9.73	NAME Hettmer	

Für das Zündverfahren bietet sich die Zugabe von vorgeheiztem Graphit an (100 kg à 1000°C). Dieses Verfahren ist bereits im Technikum erprobt worden. Durch Erhöhung der Graphitchargen auf 100 kg wird diese Methode noch vereinfacht und robuster im praktischen Betrieb.

c) Nachverbrennung (2. Stufe)

Die vom Staub weitgehend befreiten Partikeln werden in den Nachverbrennungsofen dosiert. Dieser besteht aus einem zylindrischen Reaktionsrohr aus Inconel-Legierung mit einem Durchmesser von 150 mm und ca. 1,3 m Wirbelschichthöhe. Er ist in Höhe der Wirbelschicht zur besseren Wärmeabfuhr mit Rippen versehen und zur Aufnahme des Kühlmediums (Nebelkühlung) doppelwandig ausgeführt. Das äußere Rohr wird für den Zündvorgang mit einer elektrischen Strahlheizung und mit einem Isoliermantel umgeben.

In der Fließbettzone befinden sich weitgehend abgebrannte Kerne, welche die in der Wirbelschichttechnik bekannte Funktion der inertten Vorlage übernehmen.

Der Ofen hat keinen Anströmboden. Vielmehr wird das Verbrennungsgas, ein Gemisch aus Luft und O₂ ähnlich wie beim Schachtofen radial durch Rohre von außen eingeblasen. Unterhalb der Einblasstelle entsteht eine Ruheschüttung, in der die vom Kohlenstoff weitgehend befreiten Kerne zur restlosen Beseitigung des PyC mit wenig Sauerstoff beaufschlagt werden.

Das Abgas der zweiten Stufe wird mit dem Abgas der ersten Stufe vereinigt und der Staub in der bereits erwähnten Filterkammer abgeschieden und pneumatisch in die erste Stufe zurückgeführt.

4. Beschreibung des Wirbelschichtverfahrens

4.1 Verfahrenskonzept

Die Wirbelschichtverbrennung von Brennelement-Graphit nach dem von der KFA entwickelten Verfahren erfolgt kontinuierlich in einer stationären Gas-Feststoffwirbelschicht. Auf den bei der großtechnischen Verbrennung von Feststoffen in der Wirbelschicht (5, 14, 15) allgemein üblichen inerten Trägerstoff wurde mit Rücksicht auf sonst zusätzlich notwendige Verfahrensschritte, wie Trennung von Träger- und Brennstoff, Trägerstoffrückführung, etc., und im Hinblick auf eine maximale Kernbrennstoffausbeute verzichtet. Die hier angewendete Verbrennungswirbelschicht besteht daher lediglich aus den Wirbelmedien O_2 , CO_2 und CO sowie dem Gekörn vermahlener Brennelemente.

Gerade bei einer Wirbelschichtverbrennung von Graphit können die allgemeinen Vorteile einer Wirbelschicht, wie leichte Temperaturführung und gute Wärmeübertragungsverhältnisse bei annähernd isothermer Verbrennung, voll genutzt werden. Wegen der hohen Reaktionsfähigkeit des Wirbelgutes Kohlenstoff mit O_2 im Temperaturbereich ab $700^\circ C$ tritt zudem die in Wirbelschichten meist zu beobachtende störende Rückmischung von Wirbelgut und Reaktionsgas nicht auf. Durch die Wahl einer geeigneten Anströmgeschwindigkeit des Reaktionsgases, deren genauer Wert jeweils von der mittleren Größe des Gleichgewichtskorns und der Partikeln abhängt, wird eine Sedimentation der Kernbrennstoffpartikeln am Boden des Reaktors erreicht. Die sich dort bildende Partikelschüttung bewirkt einerseits die für Gas-Feststoff-Wirbelschichten geforderte sehr gleichmäßige Anströmung der Wirbelschicht; andererseits wird durch das Sedimentieren die Wirbelung der Partikeln und damit die nachteilige Erosion der Reaktorwandung während des Verbrennungsbetriebes unterdrückt. Die sich am Boden des Reaktors ansammelnden Kernbrennstoffpartikeln sind außerdem stets dem frischen

Verbrennungsgas ausgesetzt, so daß auch der reaktions-trägere Pyrokohlenstoff im Wirbelschichtreaktor verbrannt wird. Die verbleibende Schwermetallasche, deren C-Gehalt unter 1 % liegt, wird während des Betriebes chargenweise abgezogen.

Eine stabile Wirbelschichtverbrennung von Graphit kann aus reaktionskinetischer Sicht (16) oberhalb ca. 650 °C betrieben werden. Die zulässige Reaktorwandtemperatur begrenzt die Betriebstemperatur nach oben. Der Betriebsdruck kann dabei zwischen geringem Unterdruck und einem Überdruck von einigen bar gewählt werden. Je nach Wahl der mittleren Korngröße kann die Verbrennung durch Anströmen der Wirbelschicht mit reinem O₂, einem O₂-CO₂-Gemisch oder Luft einer bestimmten O₂-Anreicherung erfolgen. Die Abbildung 11 zeigt den grundsätzlichen Aufbau einer Wirbelschichtreaktoranlage.

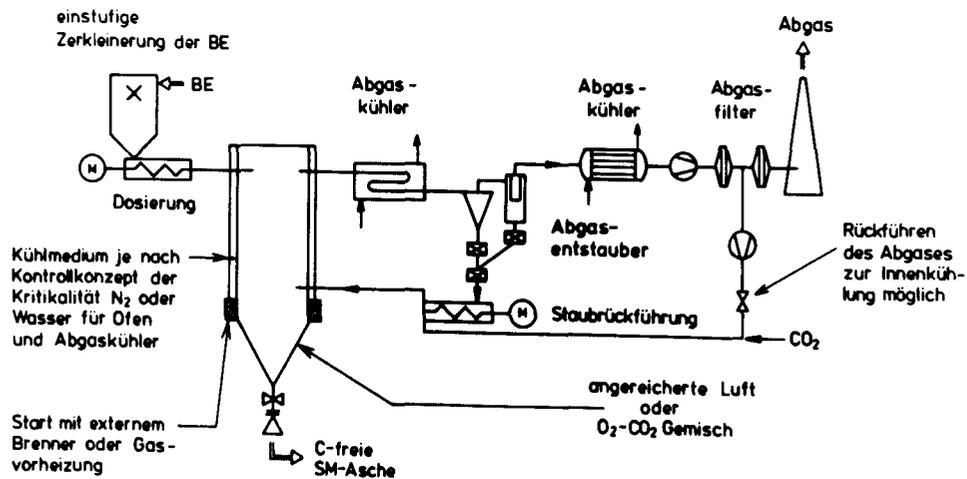


Abb. 11: Apparatefließbild einer Wirbelschichtreaktoranlage zur Graphitverbrennung

4.2 Stand der Technik

Orientierende Versuche zur Verbrennung des Graphits von HTR-Brennelementen in einer Gas-Feststoff-Wirbelschicht wurden erstmals 1964 in den USA durchgeführt (6). Aufbauend auf die dabei gewonnenen Ergebnisse und Erkenntnisse wurde dann in den Jahren 1965 - 1969 ein Verfahren entwickelt, bei dem gesintertes Al_2O_3 als Trägerstoff Verwendung fand (11). Der Schachtdurchmesser des größten für Versuche gebauten Ofens betrug 4-in.; die erzielten Verbrennungsraten lagen zwischen 1,1 und 1,4 kg C/h (12, 19). Wegen der für einen HZ-Betrieb zu aufwendigen prozeßbegleitenden Arbeitsgänge zur Trennung von Schwermetall und Inertträger sowie der ungenügenden Schwermetallausbeuten wurde dieses Verfahrensprinzip in der Folge aber wieder aufgegeben.

In den letzten Jahren wurde nun von der GULF ein Wirbelschichtverfahren entwickelt, das vornehmlich auf Brennelemente des Abbrand-Brutzyklus, welche ja sowohl TRISO-(PyC-SiC-PyC-Beschichtung) als auch BISO-(PyC-PyC-Beschichtung) Partikeln enthalten, zugeschnitten ist (13). Bei diesem Verfahren wird gemahlene Brennelementgut zunächst einer ersten Stufe zugeführt (EXO-Burner), die kontinuierlich arbeitet, und in der sowohl gemahlener Graphit als auch SiC-Partikeln als Fluidat wirken. Das Produkt dieses Verbrennungsschrittes geht dann zu einer diskontinuierlich betriebenen 2. Stufe (ENDO-Burner), wo der restliche Graphit verbrannt und die $(Th,U)O_2$ -Kerne freigelegt werden. Als inerter Trägerstoff dienen hier die SiC-beschichteten Partikeln. Die Schachtdurchmesser der bisher geplanten Öfen (EXO) betragen 4-in. und 8-in., die Konstruktion eines 16-in.-Ofens war für 1973 geplant. Das von der KFA entwickelte Verfahren, dessen technischer Entwicklungsstand nachfolgend in der Reihenfolge der Verfahrensstufen im einzelnen beschrieben wird, unterscheidet sich von den oben beschriebenen Verfahren dadurch, daß die Wirbelschicht annähernd schwermetallfrei ist und

zudem eines inerten Trägerstoffes nicht bedarf.

4.2.1 Handhabung der Brennelemente

Zur Wiederaufarbeitung gelangen entweder Brennelementkugeln oder -blöcke. Die Verbrennung des Graphits in der Wirbelschicht setzt zunächst die Zerkleinerung der Brennelemente auf ein Gut der mittleren Korngröße

$$1,5 \text{ mm} \lesssim d_m \lesssim 3 \text{ mm}$$

voraus. Die entsprechende Anlage ist nach Art und Brennelement-Zufuhr für die jeweilige Brennelementform typisch. Kugelförmige Brennelemente rollen einzeln einer handelsüblichen Hammermühle zu. Das Mahlprodukt, das weniger als 3 % gebrochene Partikeln enthält, sammelt sich im Mühlenbunker und wird aus diesem direkt mittels einer Dosierschnecke in den Ofen gefördert. Blockförmige Brennelemente gleiten nach dem GGA-Konzept durch einen Führungsschacht zu einer dreistufigen Zerkleinerungsanlage, welche aus Backenbrechern verschiedener Öffnungsweite besteht. Ein wesentlich einfacherer Verfahrensweg, der nur einstufig ist, wird z. Z. bei der KFA verfolgt. Da er sich erst im Entwicklungsstadium befindet, wird hierüber in 3.3.2 berichtet.

4.2.2 Verbrennung

Bisher wurden ca. 3.150 kugelförmige Brennelemente vom AVR- bzw. THTR-Typ, davon 240 bestrahlte, in der Wirbelschicht mit Sauerstoff bei mittleren Schichttemperaturen zwischen 680 °C und 900 °C verbrannt (17, 18). Sowohl der Laborofen (Schachtdurchmesser 8 cm), mit dem nicht nur Versuche im Labor, sondern auch in den Heißen Zellen durchgeführt wurden, als auch der Technikumsofen (Schachtdurchmesser 30 cm) wurden dabei während der Verbrennungsversuche im Dauerbetrieb bis zu 100 h mit einer stationären Wirbelschicht betrieben. Der Start der Verbrennung

erfolgte nach dem Vorheizen einer niedrigen Mahlgut-schüttung im Ofen durch Aufheizen der Ofenwand mittels elektrischer Wickelheizung auf $T \geq 600 \text{ }^\circ\text{C}$ und Einleiten von reinem O_2 . Während des Verbrennungsvorganges verändert sich die Korngrößenverteilung des eingefütterten Mahlproduktes auf die Verteilung des Gleichgewichtskorns, wobei sich die mittlere Korngröße verringert (Abbildung 12); die O_2 -Zufuhr erfolgt zentral am Ofenboden unterhalb der Schwermetall-Partikelschüttung. Im Betrieb erweist sich die Steuerung der mittleren Schichttemperatur sowie der Wirbelschichthöhe als sehr einfach. Der gute Wärmeaustausch zwischen Wirbelgas und Wirbelkorn bewirkt eine konstante mittlere Schichttemperatur mit Temperaturdifferenzen von wenigen $^\circ\text{C}$ in axialer und radialer Richtung, so daß die Schichttemperatur an der Ofenwand als konstant über der Schichthöhe angesehen werden kann. Der steile Abfall der Temperatur zwischen Schichtoberfläche und Beruhigungszone wird als Geber für eine Zweipunktregelung der Schichthöhe benutzt.

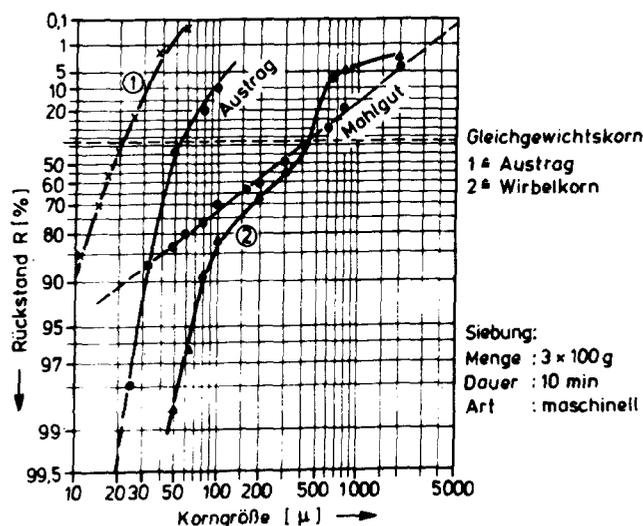


Abb. 12: Kornkennlinien

Das Verbrennungsabgas ist bei einem druck-, temperatur- und korngößenabhängigen CO_2 : CO-Verhältnis sauerstofffrei. Bei Normaldruckverbrennung mit einer mittleren Schichttemperatur von ca. $800\text{ }^\circ\text{C}$ und einer mittleren Korngröße von $0,85\text{ mm}$ ergibt sich z. B. das Verhältnis CO_2 : CO = 9 : 1. Durch die in 3.1 näher beschriebene besondere Anströmtechnik der Wirbelschicht konnte auf eine zweite Verfahrensstufe zur Abtrennung des Pyrokohlenstoffes verzichtet werden. Der durch die Strömungsverhältnisse im Ofen bedingte C-Staubaustrag wurde bei den Versuchen mit dem Technikumsofen über eine pneumatische Förderstrecke, bestehend aus Schleuse und Förderschnecke, kontinuierlich zurückgeführt; der geringe C-Anteil des aus dem Staubabscheider austretenden Abgases blieb während des Betriebes konstant.

Störfallverhalten:

Am Technikumsofen wurden einige denkbare Betriebsstörungen simuliert. Es zeigte sich im einzelnen:

- Bei Kühlmittelausfall und weiterlaufender O_2 -Zufuhr werden Schicht- und Ofenkörper langsam gleichmäßig aufgeheizt. Wegen der guten Wärmeübertragung innerhalb der Schicht und von der Schicht zur Ofenwand treten keine örtlichen Überhitzungen auf.
- Bei Schnellschluß der O_2 -Zufuhr sinkt die Schichttemperatur in weniger als fünf Minuten unter die Zündgrenze des Graphits.
- Eine notwendige Ofenentleerung, etwa zum Zwecke der Revision, kann auf einfache Weise durch Absaugen des Graphitgekörns, mit entsprechender Sonde auch der am Ofenboden liegenden Schwermetall-Partikeln, erfolgen.

4.2.3 Abzug und Weiterbehandlung der Schwermetall-Partikeln

Die Verbrennung von Matrixgraphit und Pyrokohlenstoffbeschichtung der Schwermetall-Partikeln erfolgt im

Wirbelschichtofen gleichzeitig. In der Zone der Deckfläche der Schwermetall-Partikelschicht herrscht an der Ofenachse die höchste Schichttemperatur. Sie liegt bei Anströmen der Wirbelschicht mit reinem O₂ ca. 30 bis 50 °C über der mittleren Schichttemperatur und nimmt in Richtung des Schwermetall-Partikelaustrittes wegen der Kaltanströmung der Wirbelschicht mit zunehmender C-Freiheit der Schwermetall-Partikeln ab. Die mittlere Aufenthaltszeit der Schwermetall-Partikeln im Wirbelschichtofen sowie die Qualität der Pyrokohlenstoffschicht beeinflussen den C-Restgehalt der Schwermetall-Partikeln. Er beträgt in der Regel für Aufenthaltsdauern > 10 h unter 1 %. Schwermetall-Partikeln oxidischer Zusammensetzung flossen bei Betriebstemperaturen < ca. 900 °C stets störungsfrei aus dem Aufnahmekonus der Partikelschüttung am Ofenboden ab. Die geringen C-Reste erübrigen eine zweite Verbrennungsstufe. Zur Sicherstellung der Schwermetall-Bilanzierung vor Weitergabe an die Auflösereinheit der Wiederaufarbeitungsanlage passieren die Schwermetall-Partikeln jedoch noch eine aufgeheizte Schüttschicht, wobei eine evtl. nötige Nachverbrennung des Pyrokohlenstoffes stattfinden kann.

4.2.4 Beschreibung der Technikumsanlage

Die Technikumsanlage besteht als Baueinheit aus einem Labormodell des Wirbelschichtofens der JUPITER-Anlage sowie einer Mühle und einem Aufwärtsförderer für das Mahlgut; sie ist ausgelegt für einen Durchsatz von 4 kg C/h. Dieser für Wirbelschichtöfen verhältnismäßig geringe spez. C-Umsatz erklärt sich aus dem Fehlen der technischen Voraussetzungen des Betriebslabors für den Mengendurchsatz an Frischgas sowie für die Abfuhr der Reaktionswärme für den theoretisch möglichen höchsten C-Umsatz. Der Wirbelschichtofen wurde mit Rücksicht auf die Ergebnisse der Kritikalitätsuntersuchungen (9, 20), die für Großanlagen eine absolut wasserfreie Verbrennungszelle

fordern, als Heißwandreaktor konzipiert. Bisher wurden insgesamt 1.880 THTR-Brennelemente in mehreren Verbrennungsversuchen verbrannt.

Daten der Technikumsanlage (Abbildung 13):

- Brennelement-Zerkleinerung

Hammermühle, Fabrikat HM/2, Siebtechnik, Mülheim/Ruhr,
mittlere Korngröße des Mahlgutes je nach Einlegesieb: $0,8 \text{ mm} \leq d_T \leq 1,5 \text{ mm}$

- Wirbelschichtofen

Ofendurchmesser $d_i = 300 \text{ mm}$

Schachthöhe $h_s = 2.200 \text{ mm}$

Schichthöhe $h_{ex} = \text{ca. } 600 \text{ mm} \dots 1200 \text{ mm}$

Anströmgas $100 \% \text{ O}_2 \text{ oder } \text{CO}_2\text{-O}_2\text{-Verhältnis} \leq 4 : 1$

Sollumsatz 4 kg C/h

Istumsatz 4 kg C/h

Theoretischer

Maximalumsatz $22,5 \text{ kg C/h}$

(Normaldruckverbrennung)

Zyklonabscheider zur Abgasentstaubung mit Sammelbunker und Schleuse für C-Staubrückführung

pneumatische C-Staubrückführung in CO_2 -Fördergasleitung unter Überdruck

gasgekühlte Staubrückführsonden

konusförmige Aufnahme der Sedimentschüttung

Anströmen der Schwermetall-Schicht durch Ringspalt.

Merkmale der Auslegung mit Rücksicht auf Betriebsort:

- Trogkettenförderer zwischen Mühle und Dosiergerät
- Heißdampf-Luftkühlung mittels Doppelrohrschlange anstelle von Gaskühlung.

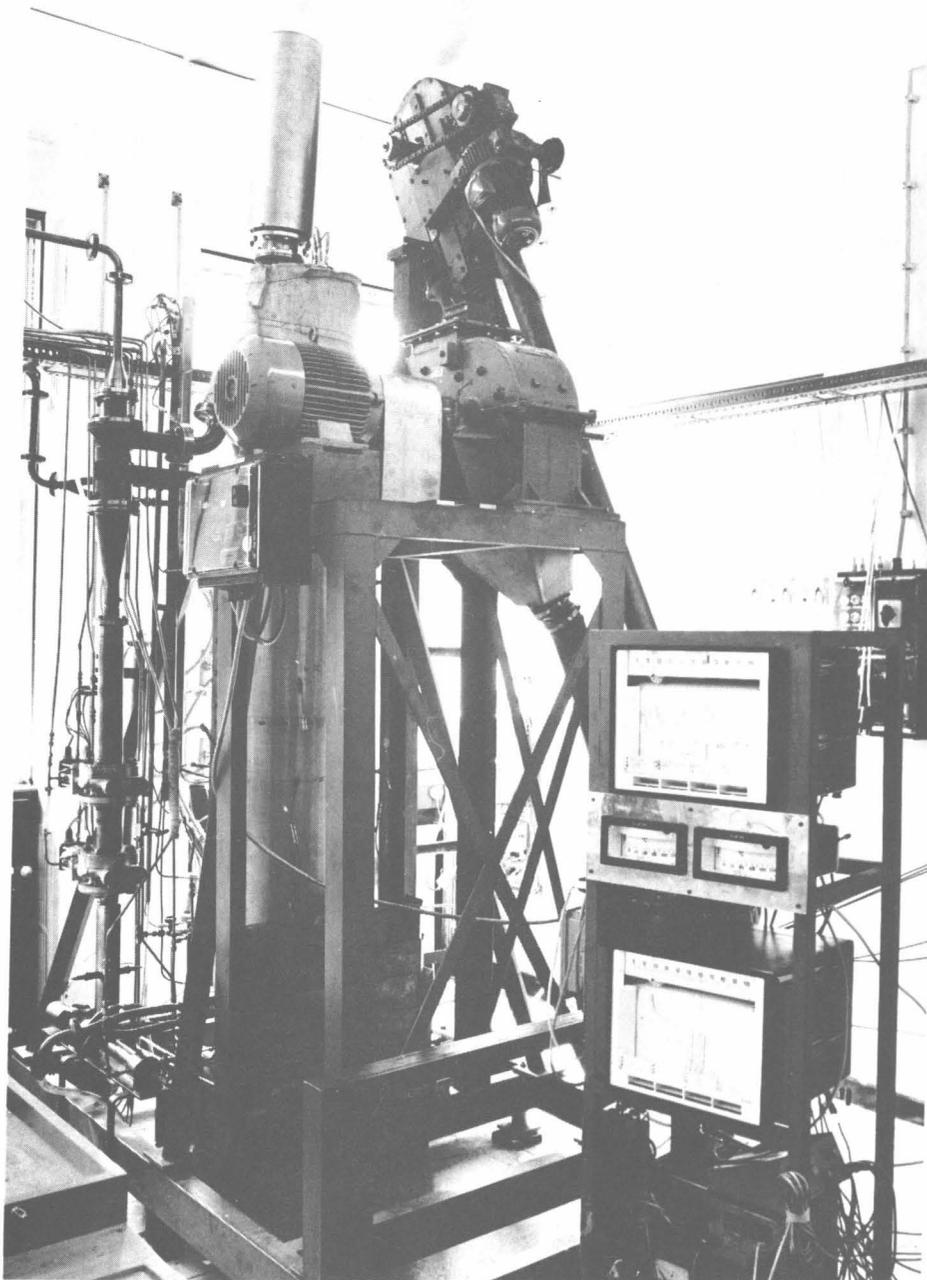


Abb. 13: Technikumsanlage zur Wirbelschichtverbrennung

4.3 Entwicklungsmöglichkeiten

4.3.1 Stand der erprobten Technik

Die erprobte Technik der Verbrennung von Brennelement-Graphit geht in ihrem Ofenkonzept für das großtechnische Verbrennungs-Head-End aus Kritikalitätsgründen von einer

Wirbelschichtöfen der KFA						
Typ	d [cm]	spez. C-Umsatz ¹⁾ [g/cm ² /h]			theor. max. ³⁾ WA-Kapazität (MWe)	Bemerkungen (Ziel, Stand)
		Ist	Soll	theor. max.		
Laborofen	8	18	16	30 ⁴⁾	120	- Grundlagen der Wirbelschichtverbrennung - Dauerbetrieb, unbestrahlte und bestrahlte Brennelemente
Modellofen JUPITER	30	6	4	30	1.800	- Grundlagen der Komponenten - Dauerbetrieb, unbestrahlte Brennelemente

Tab. 3: Daten zu den Wirbelschichtöfen der KFA

- 1) auf Schachtquerschnitt bezogen
- 3) normiert auf 300 kg C/d · 1000 MWe
- 4) auf Normaldruck bezogen

Wirbelschichtöfen der GGA						
Typ	d [cm]	spez. C-Umsatz ¹⁾ [g/cm ² /h]			theor. max. WA-Kapazität (MWe)	Bemerkungen (Ziel, Stand)
		Ist	Soll	theor. max.		
Laborofen	10	19	-	45 ²⁾	280	- Grundlagen der Wirbelschichtverbrennung - Dauerbetrieb, unbestrahlte Brennelemente
Technikumsofen	20	37	-	45	1.460	- Grundlagen der Komponenten - Dauerbetrieb, unbestrahlte Brennelemente

Tab. 4: Daten zu den Wirbelschichtöfen der GGA

1) auf Schachtquerschnitt bezogen

2) nach Lit. (13), erscheint jedoch für Normaldruckverbrennung sehr hoch

3) normiert auf 300 kg C/d · 1000 MWe

wasserfreien Verbrennungszelle aus. Dieses Konzept mindert entscheidend das Gefahrenrisiko bei der Handhabung der Schwermetall-Partikeln außerhalb des Ofens. Kritische Anordnungen außerhalb des Ofens sollen durch Schwermetall-Mengenbilanzierung mit der Verbrennungszelle als Kontrollgrenze vermieden werden. Die erprobten Ofenschächte sind wegen der Gaskühlung ausnahmslos kreisförmigen Querschnitts, da sich bereits mit diesem die für ausreichend gehaltene Verbrennungskapazität entsprechend ca. 5.000 MWe-Reaktorleistung bei Normaldruckverbrennung erreichen läßt. Bei Wandinnentemperaturen von ≤ 600 °C ergibt sich zudem auch bei Heißwandbetrieb eine ausreichende Lebensdauer für den Ofenschacht. In den folgenden beiden Tabellen sind die wichtigsten Daten der von der KFA-Jülich sowie der GGA bisher gebauten und betriebenen Wirbelschichtöfen zusammengestellt.

4.3.2 Ausblick auf mögliche Entwicklungen

Brennelementzerkleinerung

Das in Abbildung 14 dargestellte einstufige Verfahren der KFA zur Zerkleinerung von Blockelementen, bei dem die Blöcke über ein mit gegenüberliegenden Vorschubeinheiten ausgerüstetes prismatisches Rohr einer Fräsmaschine zugeleitet werden, die aus mindestens zwei sich im Gegensinn drehenden rollenförmigen Fräsern besteht, kann den aufwendigen Mehrstufenprozeß der GULF ersetzen.

Die Brennelement-Zerkleinerung durch Fräsen wurde bisher nur mit partikelhaltigen Probestücken durchgeführt; die Verarbeitung ganzer Blöcke steht noch aus. Die Bruchraten der Partikelkerne waren korngößenabhängig und lagen für den Korngößenbereich $1,5 \text{ mm} \leq d_m \leq 3 \text{ mm}$ zwischen 1 und 5 %.

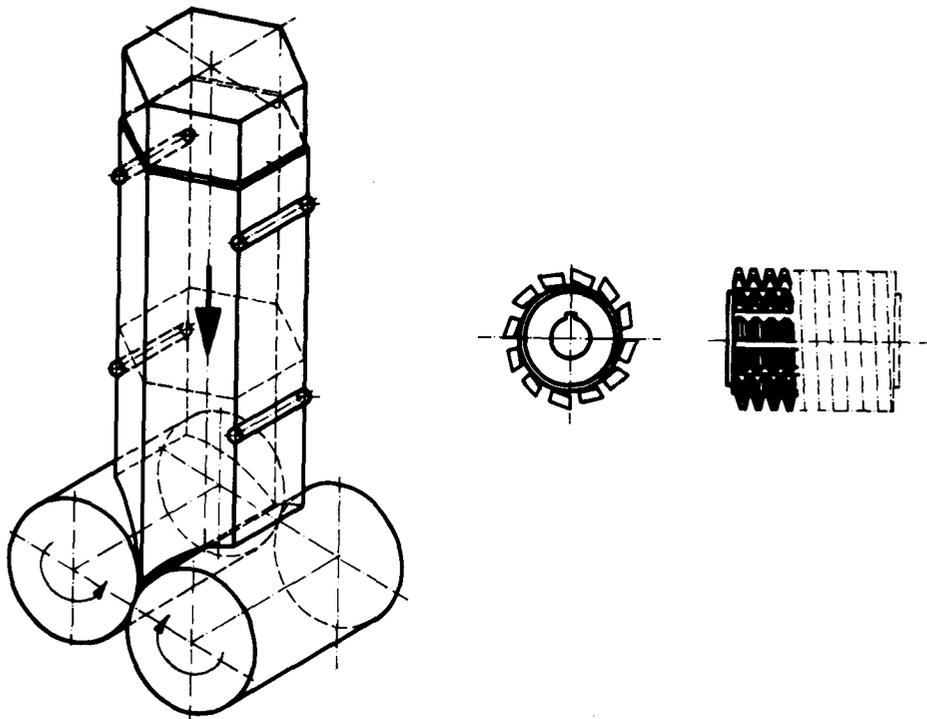


Abb. 14: Vorrichtung zum Zerkleinern von Blockelementen

Verbrennung

Die möglichen Entwicklungen der Wirbelschichtverbrennung sind auf der Grundlage durchgeführter Untersuchungen über die Betriebsparameter, wie Korngrößenbereich, Temperaturbereich und Betriebsdruck u. a. abzusehen. Die Ergebnisse werden im folgenden kurz zusammengefaßt; die weiter unten erläuterten Entwicklungslinien nehmen hierauf Bezug.

Korngrößenbereich

Aus der Sicht der Graphitverbrennung allein, d. h. ohne die in den Wirbelschichtofen zusätzlich eingebrachten Schwermetall-Partikeln, ergibt sich keine Korngrößenbeschränkung. Die möglichen C-Umsätze bei Anströmen der Wirbelschicht mit reinem O_2 in Abhängigkeit von der Korngröße ergeben sich nach Abbildung 15.

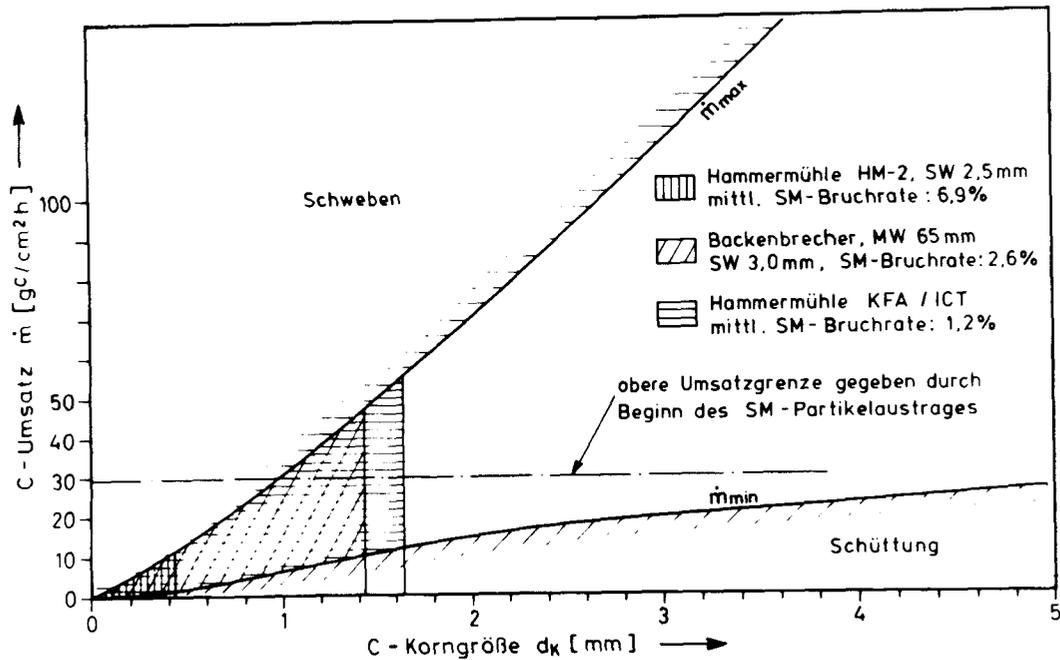
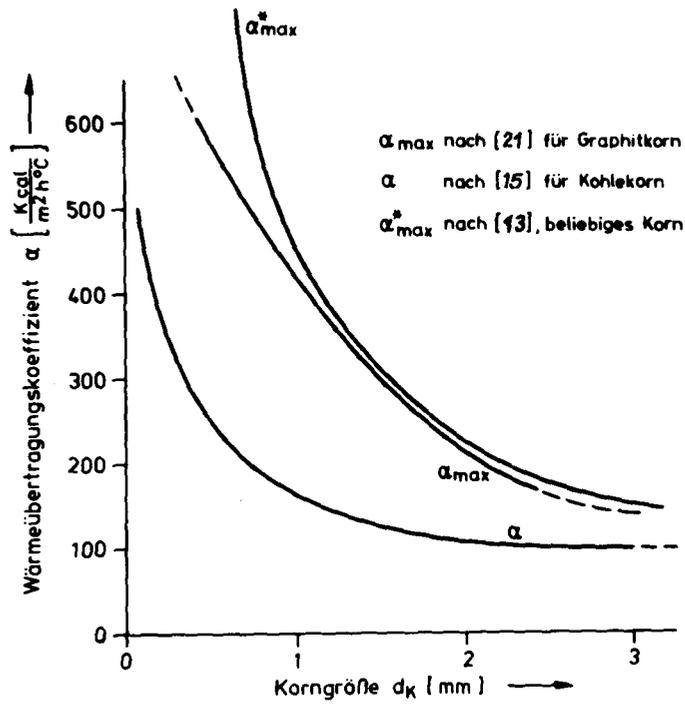


Abb. 15:

Die Rücksicht auf die Bruchrate der Schwermetall-Partikeln im Mahlprozeß legt die kleinste mittlere Korngröße auf ca. 1,5 mm fest. Die größte ergibt sich durch die Forderung nach sicherer Fluidisierung der Schicht mit ca. 3 mm. Kleinen Korngrößen ist der Vorzug zu geben, weil mit zunehmender Korngröße die Inhomogenität der Wirbelschicht zunimmt. Die sich daraus ergebenden schlechteren Wärmeübergangsverhältnisse (Abbildung 16) führen zu größeren Bauhöhen der Wirbelschichtöfen (Abbildung 17). Außerdem nimmt die Erosion der Reaktorwand zu.

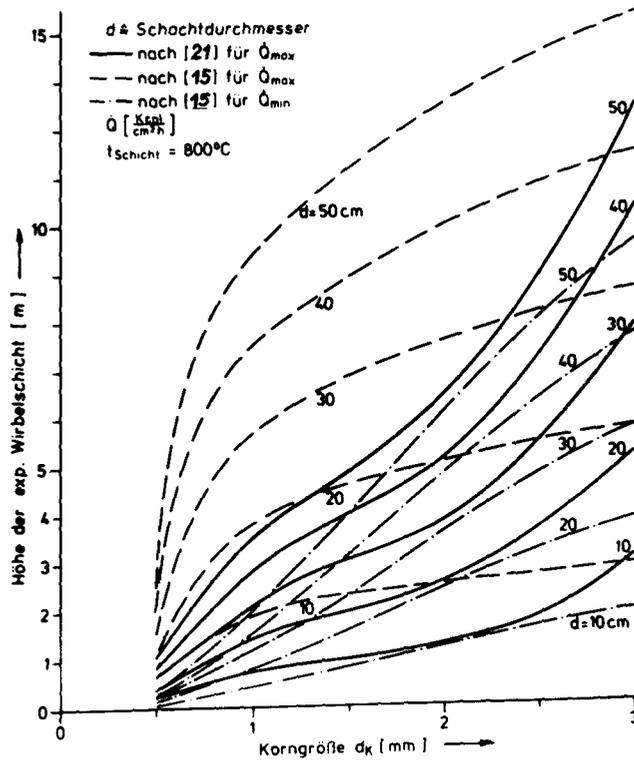
Temperaturbereich

Der Temperaturbereich der Wirbelschichtverbrennung beginnt mit der Zündtemperatur von ca. 600 °C. Die Höchsttemperatur der Schicht richtet sich einerseits nach dem zugelassenen Kühlmittel (Gas oder Wasser) und andererseits nach der "Temperaturempfindlichkeit" der Schwermetall-Partikeln am Reaktorboden. Die Schwermetall-Partikeln der Anströmschicht neigen nämlich bei Temperaturen > 900 °C zur Agglomeration; außerdem nimmt die Freisetzung von Spaltprodukten erwartungsgemäß mit steigender Temperatur zu (1).



Wärmeübertragungskoeffizient α zwischen Wirbelschicht und Rohrwand

Abb. 16:



Mindesthöhen der expandierten CO_2 - CO -Graphitsuspension bei $\Delta t = 200^\circ\text{C}$ zwischen Suspension und Wand

Abb. 17:

Unter Berücksichtigung der genannten Einflußfaktoren ergeben sich folgende, für eine Wirbelschichtverbrennung geeignete, Temperaturbereiche:

a) gasgekühlte Wirbelschichtöfen

$650\text{ }^{\circ}\text{C} \approx t_{\text{Soll}} \approx 900\text{ }^{\circ}\text{C}$ bei zentraler Anströmung
100 % O_2

$650\text{ }^{\circ}\text{C} \approx t_{\text{Soll}} \approx 950\text{ }^{\circ}\text{C}$ bei zentraler Anströmung
mit O_2 - CO_2 -Gemisch und
 O_2 -Sekundär-Zufuhr

b) wasser- und dampfgekühlte Wirbelschichtöfen

Es sind Zentraltemperaturen von $1000\text{ }^{\circ}\text{C}$ und höher möglich, jedoch mit der Einschränkung, daß wegen des dort auftretenden hohen Temperaturgradienten in Wandnähe nur die mittleren Korngrößen des linken Bereichsrandes stabile Verbrennung gewährleisten. Der kleinstmögliche Ofenschachtdurchmesser von ca. 20 cm bedeutet hingegen keine Einschränkung.

Betriebsdruckbereich

Der Betriebsdruck hat einen Einfluß auf die mittlere Anströmgeschwindigkeit der Wirbelschicht im Ofenschacht und damit auch auf den spez. C-Umsatz bezogen auf den Schachtquerschnitt, welcher proportional mit dem Druck bei gleichem O_2 -Anteil des Anströmfluids steigt. Dies kann entweder zur Verringerung der Schachthöhe oder zur Innenkühlung durch Zugabe von gekühltem CO_2 -Rückführgas (Abgas) benutzt werden. Ferner führt im Falle des gasgekühlten Wirbelschichtofens eine Erhöhung des Betriebsdruckes zu einer mechanischen Entlastung der Ofenwand und damit zu einer erhöhten Lebensdauer des Wirbelschichtofens. Bei einstufigen Verbrennungsanlagen mit kreisförmigem Schacht ohne zentrale n-Absorber begrenzt die zum Abbrennen der Pyrokohlenstoffschicht notwendige mittlere Aufenthaltszeit der Schwermetall-Partikeln den Betriebsdruck auf ca. 3 bar.

Ein vergleichendes Beispiel:

Schachtdurchmesser 50 cm
 mittl. Gleichgewichtskorngröße ca. 1,5 mm
 $t_{\text{Wand/Schicht}}$ 200 °C

Betriebsdruck	[bar]	1	3	3
Anströmfluid	-	100 % O ₂	100 % O ₂	O ₂ :CO ₂ = 1:2
Mindesthöhe	[m]	5	5	3,7
WA-Kapazität	[MWe]	ca. 4700	ca. 14000 ⁺⁾	ca. 4700

+) mit zusätzlichen wärmeabführenden Hilfsmitteln

Zu den möglichen Entwicklungslinien:

Die möglichen Entwicklungslinien des Wirbelschichtofens zur Graphitverbrennung ergeben sich aus der Entscheidung für oder gegen die Zulassung von Wasser in der Verbrennungszelle der Wiederaufarbeitungsanlage. Es werden deshalb die Entwicklungsmöglichkeiten beider Konzepte kurz aufgezeigt:

a. Gasgekühlter Wirbelschichtofen

a.a Ofen mit kreisförmigem Querschnitt, Normaldruckverbrennung, Normalumsatz nach Abbildung 15, mit oder ohne CO₂-Zugabe zum Anströmgas als Innenkühlung.

Max. Aufarbeitungskapazität ca. 5000 MWe

a.b Ofen mit kreisförmigem Querschnitt, Überdruckverbrennung bis ca. 3 bar, Aufgabe der Zentralanströmung, wahlweise Zugabe von CO₂ zur Innenkühlung oder Verringerung der Bauhöhe, möglicher Einbau von Kühlregistern in und oberhalb der Schicht.

Aufarbeitungskapazität ca. 5000 MWe bis 14000 MWe, je nach O₂-Zufuhr

- a.c Annular- oder Slab-Form bei Mehrkammerbauweise, mit oder ohne zentrale n-Absorber, mit oder ohne Überdruckverbrennung, mit reinem O_2 oder O_2 - CO_2 -Gemisch angeströmt.
Aufarbeitungskapazität höher als unter a.a und a.b angegeben möglich.

b. Wasser- oder dampfgekühlter Wirbelschichtofen

Bauweisen nach a.c.

- Vorteile:
- bei gleichem C-Umsatz geringere Bauhöhe als bei a.c,
 - längere Lebensdauer der Schachtwand.

evtl.

- Nachteile:
- Anheben der mittleren Schichttemperatur erforderlich, um Randgängigkeit zu vermeiden (Aktivitätsfreisetzung),
 - Gleichgewichtskorngrößen $\approx 1,8$ mm erfordern Übergang zu Überdruckverbrennung, sofern vollständige O_2 -Nutzung gefordert wird.
 - wesentlich erhöhtes Sicherheitsrisiko wegen der Möglichkeit, außerhalb des Ofens in der Verbrennungszelle eine kritische Anordnung zu erreichen.

		Schachtofen NUKEM 1)	Wirbelschichtofen KFA 1) GGA 3)	
max. Verbrennungsrate	(kgC/h)	17	4	11
mittl. Korngröße	(mm)		1,0	1,3
max. Temperatur	(°C)	1150	900	980
Feuerraumbelastung	(Gcal/m ³ ·h)	0,13	0,43	0,13
Kühlflächenbelastung	(Gcal/m ² ·h)	0,10	0,03	0,13
Kühlmedium		H ₂ O	H ₂ O/Luft	Luft
Verbrennungsgas		O ₂ /N ₂ (u. O ₂ /CO ₂)	O ₂	O ₂ /N ₂
O ₂ -Anreicherung	(Vol. %))	30	100	71
Abgaszusammensetzung	(Vol. %))			
- CO ₂		27	82	64
- CO		1	18	4
- O ₂		2	-	3
- N ₂		Rest	-	Rest
spez. Abgasmenge	(Nm ³ /kgC verbrannt)	6,2	2,2	2,7
spez. Staubaustrag	(offener Kreislauf) (kg Staub/kgC verbrannt)	0,015	1,2 ⁴⁾	0,22
C-Menge im Austrag	(% vom Vorlauf)	13 ²⁾	-	0,4
C-Gehalt im Austrag	(Gew.%) (1. Stufe)	60 ²⁾	< 1 ⁵⁾	4,4
Anteil gebrochener Kerne in Kaltversuchen	(%) (Gew.)	1	< 3	15
Dauer des Langzeitversuches	(h)	24	100	30

Tabelle 5: Versuchsbedingungen und Ergebnisse im Technikum

- 1) erprobt an THTR-Brennelementen und Übertragen auf GGA-Brennelemente
- 2) nach Staubabtrennung im Windsichter
- 3) erprobt an GGA-Brennelementen (13)
- 4) ohne Filterstufe
- 5) bezogen auf Probengesamtgewicht

		NUKEM-Verfahren		KFA-Verfahren
		1. Verbrennungsstufe	2. Verbrennungsstufe	
Verbrennungsrate	kgC /h	96	14	110
mittl. Korngröße	mm	80	ca. 0,8	1,2
Betriebsdruck	ata	1	1	2
Verbrennungsgas	O ₂ /CO ₂	1 : 2,2	1 : 2,2	1 : 2
spez. Abgasmenge (geschl. Kreislauf)	Nm ³ /kgC	1,9	1,9	2,0
Zerkleinerungs- aggregat f. Kugeln		keines	-	Hammermühle
Zerkleinerungs- aggregat f. Blöcke		1 Backenbrecher	-	Fräse
Stufenzahl inkl. Nachverbrennung				
- Kugel			2	1
- Block			3	2
Ofendaten				
max. Wandtemperatur	T _{innen} °C	< 200	600	600
Feuerraumbelastung	Gcal/m ³ ·h	1,6	3,0	0,76
Kühlflächenbe- lastung	Gcal/m ² ·h	0,10	0,13	0,095
Kühlmedium		H ₂ O	H ₂ O / Luft (Nebelkühlung)	Luft
Kühlmedium-Menge		17 m ³ H ₂ O/h	4000 Nm ³ Luft/h	28500 Nm ³ /h
Konstruktives		Ringspaltofen d _i = 0,65 m d _a = 1,0 m Schütthöhe 1,5 m Werkstoff: 4541 (V2A) Zünden: vorgeheizte Charge (1000 °C) von 100 kg Graphit	Zylind. Ofen d = 0,150 m Höhe der Schüttung h _{ex} = 1,8 m Werkstoff: Inconel Zünden: elektr. Strahlheizung	Zylind. Ofen d _i = 0,50 m h _{ex} = 3,75 m Ofenhöhe = 5,25 m Werkstoff: 1.4876 Zünden: Gasbrenner von außen

Tabelle 6: Auslegungsdaten für die Pilotanlage mit einem Durchsatz von 110 kg C/h

6. Literaturverzeichnis

- (1) V. C. A. Vaughen Report ORNL-4120 (1970)
 et al.
- (2) P. Filß et al. Bericht JÜL-925-CT (1973)
- (3) H. Beaujean Bericht JÜL-JAEA/SM-172/17 (1973)
- (4) Dubbel Taschenbuch für den Maschinenbau,
 13. Aufl., Bd. II, Springer-Verlag,
 Berlin-Heidelberg-New York, 1970
- (5) L. Reh Chem.-Ing.-Techn. 40, 509 (1968)
- (6) R. E. Blanco Nuclear Sci. Eng. 20, 13 (1964)
 et al.
- (7) U. Grahmann u. Bericht NUKEM-90 (1971)
 D. Schmidt
- (8) Report GULF-GA-A 12222 (1972)
- (9) D. Schmidt u. Bericht NUKEM-120 (1972)
 U. Tillessen
- (10) W. Thomas Kritikalitätsstudie zum
 Schachtofen, 13.9.1973
- (11) L. M. Ferris Progress in Nuclear Energy,
 Series III, Vol. 4, 125-128 (1970)
- (12) J. J. Reilly BNL-885 (1964) (classified)
 et al. Annual Report, Nuclear Engineering
 Department, December 31, 1964,
 BNL-900, 1965