

⑫ **NOUVEAU FASCICULE DE BREVET EUROPEEN**

④⑤ Date de publication du nouveau fascicule du brevet:  
**27.01.88**

⑤① Int. Cl.⁴: **G 21 F 9/02, F 25 J 3/02,**  
**C 01 B 23/00**

②① Numéro de dépôt: **79400556.1**

②② Date de dépôt: **06.08.79**

⑤④ **Procédé de traitement d'effluents gazeux provenant du retraitement des combustibles nucléaires irradiés.**

③① Priorité: **11.08.78 FR 7823735**

④③ Date de publication de la demande:  
**20.02.80 Bulletin 80/4**

④⑤ Mention de la délivrance du brevet:  
**24.03.82 Bulletin 82/12**

④⑤ Mention de la décision concernant l'opposition:  
**27.01.88 Bulletin 88/4**

⑧④ Etats contractants désignés:  
**BE DE GB**

⑤⑥ Documents cités:  
**DE - A - 1 667 639**  
**FR - A - 2 280 954**  
**US - A - 4 012 490**

**Rapport**  
**Rapport IN-1221 (microfilm, avril 1969, 47 pages), Idaho**  
**Nuclear Corp.: "Rare gas recovery facility at the Idaho**  
**Chemical processing plant" Bendixsen & Offut, page 1.**

⑦③ Titulaire: **COMMISSARIAT A L'ENERGIE ATOMIQUE**  
**Etablissement de Caractère Scientifique Technique et**  
**Industriel, B.P. 510, F-75752 Paris Cedex 15 (FR)**

⑦② Inventeur: **Duhayon, Jacques, 3, Résidence des Fonds**  
**Fanettes, F-91190 Gif-sur-Yvette (FR)**  
Inventeur: **Goumondy, Jean-Pierre, 172, Rue Jullan**  
**Grimau, F-94400 Vitry (FR)**  
Inventeur: **Leudet, Alain, 2bls, rue Edouard Herriot,**  
**F-91300 Massy (FR)**  
Inventeur: **Rousseau, Jean-Claude, Clos**  
**Longsault/Lèves Rue de Longsault, F-28300 Mainvilliers**  
**(FR)**

⑦④ Mandataire: **Mongrédién, André et al, c/o**  
**BREVATOME 25, rue de Ponthieu, F-75008 Paris (FR)**

**EP 0 008 273 B2**

## Description

La présente invention a pour objet un procédé de traitement d'effluents gazeux provenant du retraitement de combustibles nucléaires irradiés, constitués par un mélange contenant au moins du krypton radioactif et du xénon dans l'air, un tel traitement ayant également pour but de récupérer le xénon que ces mélanges contiennent.

Les effluents gazeux provenant des usines de retraitement des combustibles irradiés sont essentiellement constitués d'air, dont la teneur en oxygène peut être inférieure à la teneur naturelle, de gaz rares tels que le xénon et le krypton, et contiennent généralement de la vapeur d'eau, du gaz carbonique, des traces d'hydrocarbures, et aussi des oxydes d'azote dont la présence est due à la dissolution des combustibles effectuée en milieu nitrique.

Il est connu de traiter ces effluents gazeux par des procédés qui comprennent essentiellement une étape d'épuration fournissant un mélange d'air et de gaz rares, exempt d'autres impuretés, puis une étape de préconcentration des gaz rares dans un gaz liquéfié qui est choisi parmi les constituants de l'air, à savoir l'oxygène et/ou l'azote.

De tels procédés sont illustrés en particulier dans le rapport In-1221 (Avril 1969), Idaho Nuclear Corp. et dans le brevet français 2 280 954 du C.E.A. qui illustrent respectivement la mise en œuvre d'une étape de concentration des gaz rares dans un mélange d'oxygène et d'azote liquide, et dans de l'oxygène liquide.

On connaît également par le brevet américain 4 012 490 un procédé de traitement de mélanges gazeux contenant principalement de l'air, de l'oxygène, de l'hydrogène, du krypton et du xénon radioactifs, selon lequel on sépare tout d'abord l'oxygène du mélange par réaction catalytique, on sépare ensuite le xénon et le dioxyde de carbone par fixation sur un adsorbant et on soumet ensuite le mélange gazeux résultant qui contient de l'hydrogène, de l'azote et du krypton radioactif à une distillation cryogénique dans une colonne pour séparer et liquéfier le krypton.

Selon le procédé consistant à préconcentrer les gaz rares dans l'azote, cette étape de préconcentration s'effectue, après réduction catalytique de tout l'oxygène du mélange avec de l'hydrogène, par concentration des gaz rares dans une fraction de l'azote par distillation cryogénique. Puis le mélange de krypton et de xénon dans l'azote est alors soumis à une autre distillation cryogénique pour séparer le krypton et l'azote du xénon. Ce procédé présente l'inconvénient que, étant donné la faible solubilité du xénon dans l'azote liquide, il se produit des bouchages dans les colonnes de distillation qui sont dus à une cristallisation du xénon.

Selon l'autre procédé consistant à préconcentrer les gaz rares dans l'oxygène, on effectue cette préconcentration en éliminant tout l'azote du mélange et une partie de l'oxygène par distillation cryogénique. Le mélange de krypton et de xénon concentré dans l'oxygène alors obtenu est

d'abord soumis à une étape de réduction catalytique de l'oxygène avec de l'hydrogène, puis à une étape de distillation cryogénique pour séparer le krypton du xénon. Ce procédé présente, par rapport au procédé de préconcentration dans l'azote, l'avantage que la solubilité du xénon est nettement plus grande dans l'oxygène liquide que dans l'azote liquide. Mais en raison de la radioactivité du milieu, il y a formation d'ozone dans le bouilleur de la colonne de distillation; cette présence d'ozone engendre des risques d'explosion. Ces risques d'explosion pourraient éventuellement être évités par une destruction continue et «in situ» de l'ozone formé; mais la mise au point d'un tel système d'élimination pose un certain nombre de problèmes et n'a encore jamais été réalisée.

La présente invention a justement pour objet un procédé de traitement d'effluents gazeux provenant du retraitement de combustibles irradiés, qui pallie les inconvénients rappelés ci-dessus; en effet, lors de la mise en œuvre du procédé considéré, il n'y a pas formation d'ozone, et donc pas risque d'explosion; quant aux problèmes de cristallisation du xénon, ils peuvent aisément être évités.

Le procédé conforme à l'invention de traitement de gaz effluents provenant du retraitement de combustibles nucléaires irradiés, constitués par un mélange contenant au moins du krypton radioactif et du xénon dans l'air, comprend essentiellement et successivement:

- une première étape d'élimination de l'oxygène par réduction catalytique et d'élimination des impuretés éventuelles telles que les hydrocarbures, les oxydes d'azote, le gaz carbonique et la vapeur d'eau;
- une seconde étape d'addition d'argon au mélange gazeux;
- une troisième étape de concentration du xénon et du krypton en solution dans l'argon liquide par distillation cryogénique des gaz légers, et principalement de l'azote, à partir du mélange liquéfié;
- une quatrième étape de séparation de l'argon par distillation cryogénique du mélange concentré de xénon et de krypton dans l'argon liquide; et
- une cinquième étape de séparation séparant le krypton du xénon par distillation cryogénique du mélange liquide obtenu après la quatrième étape.

En effet, le demandeur a étudié le comportement du xénon du point de vue de la solubilité dans trois solvants cryogéniques, à savoir l'oxygène, l'azote et l'argon. Le demandeur a étudié quelle était la pression maximale telle que l'équilibre solide-liquide-vapeur xénon-solvant puisse exister. Il importait donc pour éviter tout risque de cristallisation du xénon d'opérer l'étape de préconcentration à une pression supérieure à cette pression remarquable citée plus haut. Le demandeur a recherché et découvert que pour un système oxygène-xénon, cette pression remarquable est de 17 bars absolus, que pour un système argon-xénon, cette pression remarquable est

de 18,5 bars absolus, et que pour un système azote-xénon, cette pression remarquable serait notablement supérieure par exemple, de l'ordre de 35 bars absolus.

C'est pourquoi le fait d'opérer une étape de préconcentration du xénon et du krypton dans de l'argon liquide selon le procédé conforme à l'invention, présente l'avantage, par rapport au procédé de préconcentration du xénon et du krypton dans l'azote, d'éviter la cristallisation du xénon en opérant la distillation cryogénique à une pression nettement plus faible et également l'avantage, par rapport au procédé de préconcentration du xénon et du krypton dans l'oxygène, d'éviter la formation d'ozone.

On avait déjà envisagé d'utiliser de l'argon pour concentrer des mélanges de gaz rares, mais dans ce cas il s'agissait de mélanges provenant d'air et non d'effluents gazeux provenant du retraitement des combustibles irradiés. Ainsi, le document DE-A-1 667 639 décrit un procédé pour récupérer un mélange de krypton et de xénon à partir de la fraction riche en oxygène d'une unité classique de réparation d'air. Dans ce procédé, on utilise de l'argon pour concentrer le krypton et le xénon afin d'éviter les risques d'explosion dus à la présence d'impuretés à base d'hydrocarbures dans la fraction riche en oxygène soumise à la concentration. Cependant, dans ce cas, les risques d'explosion résultent de la présence d'hydrocarbures et non de la formation d'ozone. Par ailleurs, dans ce procédé, le mélange de gaz rares provient de l'air et le problème d'une cristallisation éventuelle du xénon dans la phase liquide ne se pose pas car il y a beaucoup plus de krypton que de xénon dans l'air, le rapport Kr/Xe étant généralement de 10 alors que dans les effluents gazeux provenant du retraitement des combustibles irradiés, il y a plus de xénon que de krypton, le rapport Kr/Xe pouvant être par exemple de 0,1.

Ainsi, dans ce procédé on n'utilise pas l'argon pour obtenir une meilleure solubilité du xénon dans la phase liquide.

Selon une caractéristique avantageuse du procédé de l'invention, on prend une partie du krypton séparé du xénon et obtenu lors de la cinquième étape, et on introduit ladite partie dans le mélange avant de procéder à la troisième étape de concentration du xénon et du krypton en solution dans de l'argon liquide. Cette réintroduction d'une certaine quantité de krypton obtenu en fin de procédé permet d'abaisser la pression à laquelle s'effectue la troisième étape de concentration du xénon et du krypton dans l'argon liquide.

Naturellement, l'invention s'étend également aux installations appropriées pour la mise en œuvre du procédé. De telles installations comprennent notamment des réacteurs catalytiques et des colonnes de distillation cryogénique avec tous leurs équipements annexes, en eux-mêmes connus, dispersés et reliés par des conduits de circulation des différents produits, de manière à permettre la réalisation des opérations successives du procédé défini ci-dessus.

Les caractéristiques d'une telle installation ain-

si que celles du procédé apparaîtront plus clairement à la lecture de la description ci-après, qui concerne un exemple de mise en œuvre de l'invention. Bien entendu, cette description n'a aucun caractère limitatif vis-à-vis de l'invention.

La description qui suit est faite en référence aux figures jointes dans lesquelles:

5

10

15

20

25

30

35

40

45

50

55

60

65

– la fig. 1 illustre schématiquement le déroulement global du procédé décrit et l'installation utilisée;

– les fig. 2 et 3 représentent, de manière schématique mais plus en détail, des parties de l'installation utilisée et la circulation des produits entre les différentes étapes.

Sur la fig. 1, on a symbolisé les différentes unités de traitement permettant d'effectuer successivement les étapes du procédé de l'invention, dans cet ordre:

– en 1: l'unité dans laquelle s'effectue la première étape d'élimination des impuretés du mélange gazeux provenant de l'usine de retraitement de combustibles nucléaires, première étape d'épuration qui permet d'obtenir un mélange constitué d'air ne contenant pratiquement plus que du xénon et du krypton; cette première étape s'effectue en trois stades successifs, respectivement dans trois unités symbolisées en 1a, 1b, et 1c;

– en 2: une colonne dans laquelle s'effectue la troisième étape de concentration du xénon et du krypton dans de l'argon liquide, permettant d'éliminer principalement l'azote du mélange et de recueillir un mélange concentré de xénon et de krypton dans de l'argon;

– en 3: la colonne dans laquelle s'effectue la quatrième étape d'élimination de l'argon par distillation cryogénique du mélange d'argon, de xénon et de krypton;

– en 4: la colonne dans laquelle s'effectue la séparation du xénon et du krypton par distillation cryogénique de façon à éliminer le krypton et à recueillir du xénon pur.

De façon plus précise, la première étape d'élimination de l'oxygène et des impuretés éventuelles contenues dans le mélange gazeux de départ comporte un premier stade d'élimination des hydrocarbures par oxydation catalytique (et également de dissociation catalytique de l'oxyde d'azote  $N_2O$ ), qui s'effectue dans l'unité représentée en 1a; un deuxième stade d'élimination de l'oxygène et des oxydes de l'azote par réduction catalytique, qui s'effectue dans l'unité représentée en 1b; et un troisième stade d'élimination du gaz carbonique et de la vapeur d'eau par passage sur tamis moléculaire et/ou gel de silice, qui s'effectue dans l'unité représentée en 1c.

Ainsi, le mélange gazeux à traiter est tout d'abord introduit en 5 dans l'unité 1a et sort de cette unité débarrassé des hydrocarbures. Il est alors introduit, en 6, dans l'unité 1b où s'effectue une réduction catalytique en présence de palladium par action d'hydrogène amené en 7. Il res-

sort de cette unité 1b, débarrassé de l'oxygène et des oxydes de l'azote et est introduit en 8, dans l'unité 1c où il est débarrassé du gaz carbonique et de la vapeur d'eau par passage sur tamis moléculaire. Ainsi, le mélange introduit en 9, dans la colonne 2 est un mélange d'azote, de xénon et de krypton auquel on additionne préalablement de l'argon en 10, avant l'entrée dans la colonne 2. Dans la colonne 2 s'effectue la distillation cryogénique qui permet d'obtenir l'élimination de l'azote gazeux en 11, ce qui permet de récupérer, en 12, un mélange liquide d'argon, de xénon et de krypton. Ce mélange liquide d'argon, de xénon et de krypton est alors introduit en 13, dans la colonne 3, où s'effectue l'élimination de l'argon sous forme gazeuse en 14, par distillation cryogénique et la récupération, en 15, d'un mélange liquide de krypton et de xénon. Ce mélange de krypton et de xénon est alors introduit en 16, dans la colonne 4, où s'effectue l'élimination sous forme gazeuse du krypton, en 17, par distillation cryogénique et la récupération de xénon pur à l'état liquide en 18.

Eventuellement, selon un mode préféré de l'invention, on prend une partie de krypton éliminé en 17, et on le recycle en 19 pour le réintroduire à l'entrée de la colonne 2, de façon à pouvoir effectuer la distillation cryogénique à une pression plus faible.

Selon l'invention, la pression à laquelle on effectue la distillation cryogénique dans la colonne 2 est au plus de 18 bars, la pression à laquelle on effectue la distillation cryogénique dans la colonne 4 est d'environ 3 bars et la pression à laquelle on effectue la distillation cryogénique dans la colonne 3 est comprise entre la pression de la colonne 4 et la pression de la colonne 2.

Sur la fig. 2, on a représenté plus en détail les différents éléments et circuits reliant les unités 1a, 1b, 1c, dans lesquelles on effectue la première étape d'élimination des impuretés selon le procédé de l'invention. Le mélange gazeux à traiter provenant de l'usine de retraitement de combustibles irradiés, est d'abord introduit en 20 dans un compresseur 21, puis est refroidi par une circulation d'eau dans un réfrigérant 22 et, après passage dans un échangeur 23, est introduit en 5 dans l'unité 1a qui contient un catalyseur au platine ou au rhodium: dans cette unité 1a, les hydrocarbures sont éliminés du mélange gazeux par oxydation catalytique et il y a également élimination du protoxyde d'azote  $N_2O$  par dissociation catalytique de ce dernier. Un dispositif de chauffage externe assure le maintien d'une température maximale de 700°C dans cette unité 1a. A la sortie de l'unité 1a, le mélange gazeux débarrassé des hydrocarbures passe dans l'échangeur 23 puis, après mélange avec une partie du mélange gazeux provenant du séparateur d'eau 27, dans un système de réchauffage électrique 24 qui le porte à une température de 100°C et est introduit, en 6, dans l'unité 1b; dans cette unité 1b, l'oxygène et les oxydes de l'azote sont éliminés par réduction catalytique, l'unité 1b contenant un catalyseur au palladium et éventuellement un catalyseur au rhodium et de l'hydrogène étant introduit en 7, de

façon à maintenir un léger excès de ce gaz en sortie de l'unité 1b. A la sortie de l'unité 1b, le mélange gazeux débarrassé de l'oxygène et des oxydes d'azote est refroidi dans un réfrigérant à eau 25, puis passe dans un ventilateur 26. A la sortie du ventilateur 26 une partie du mélange gazeux, après passage dans un séparateur d'eau 27 est recyclée en 28 vers l'unité 1b et l'autre partie est dirigée en 8, vers l'unité 1c.

Le mélange introduit en 8 dans l'unité 1c est débarrassé de la vapeur d'eau et des traces de  $CO_2$  par passage sur un tamis moléculaire et/ou un gel de silice dans l'un des deux absorbeurs 29 disposés en parallèle; ces deux absorbeurs 29 subissent périodiquement et alternativement une régénération par chauffage et circulation d'azote.

Sur la fig. 3, on reconnaît les colonnes 2, 3 et 4 servant respectivement à la mise en œuvre des troisième, quatrième et cinquième étapes du procédé de l'invention. Le mélange gazeux contenant de l'azote, de l'argon, du krypton et du xénon provenant de l'unité 1 est d'abord refroidi dans un échangeur de chaleur 30, puis est introduit en 9, dans la colonne 2.

La colonne de distillation 2 fonctionne à une pression au plus de 18 bars. La partie inférieure de la colonne 2 est maintenue à la température nécessaire à l'aide d'un dispositif de chauffage électrique 31. En tête de la colonne 2, un reflux est assuré par un condenseur 32, refroidi par de l'azote liquide amené en 33. On extrait de la partie supérieure de la colonne 2, en 11, un mélange gazeux contenant principalement de l'azote et éventuellement une fraction d'argon; ce mélange peut être recyclé dans le circuit de balayage de la cisaille ou rejeté dans l'atmosphère; on le réchauffe préalablement par passage dans l'échangeur 30, d'où il sort en 34. Du bas de la colonne 2, on extrait un mélange liquide d'argon concentré en krypton et xénon et on l'introduit en 13 dans la colonne de distillation 3.

Dans la colonne 3, qui fonctionne à une pression comprise entre la pression de la colonne 4 et la pression de la colonne 2, on sépare par distillation cryogénique l'argon à l'état gazeux en 14 et on recueille le mélange liquide de krypton et de xénon en bas de la colonne 3. Eventuellement, on peut recycler l'argon, sortant en 14 de la colonne 3, à l'entrée de la colonne 2.

Le mélange liquide de krypton et de xénon sortant du bas de la colonne 3 est introduit en 16 dans la colonne 4, où l'on effectue la séparation du krypton et du xénon par distillation cryogénique: le krypton est obtenu sous forme gazeuse en 17, en tête de la colonne 4, et le xénon sous forme liquide en 18, en bas de la colonne 4.

Eventuellement, on recycle une partie du krypton obtenu en 17, en 19, à l'entrée de la colonne 2; ceci permet d'augmenter la teneur relative de krypton dans le mélange gazeux d'alimentation et d'effectuer la première distillation cryogénique dans la colonne 2 à une pression notablement inférieure à 18 bars; par exemple, avec un rapport krypton sur xénon de 1, obtenu avec un reflux de

10 de krypton, on peut abaisser la pression de fonctionnement de la colonne 2 à une valeur de 10 bars.

Le xénon pur obtenu en 18 est commercialisable.

A titre indicatif, on donne, ci-dessous un exemple de circulation des produits en précisant les concentrations des mélanges et les différents débits. Pour plus de simplicité, on se réfère à la fig. 1.

Le mélange gazeux à traiter auquel il a été ajouté une quantité déterminée d'argon présente la composition suivante: 81% d'azote, 11% d'oxygène, 8% d'argon, 150 ppm de krypton, et 1500 ppm de xénon, des hydrocarbures, des oxydes de l'azote, de la vapeur d'eau et du gaz carbonique; il est introduit en 5, à un débit de 21,8 m<sup>3</sup> par heure, dans l'unité 1a. A la sortie de l'unité 1a, le mélange débarrassé des hydrocarbures est introduit en 6 dans l'unité 1b et de l'hydrogène est introduit en 7 à un débit de 4,8 m<sup>3</sup> par heure. A la sortie de l'unité 1b, le mélange débarrassé de l'oxygène et des oxydes de l'azote est introduit en 8 dans l'unité 1c. A la sortie de cette unité 1c, le mélange gazeux débarrassé de la vapeur d'eau et du CO<sub>2</sub> est introduit en 9 dans la colonne 2: à ce moment là, le mélange a la composition suivante: 88% d'azote, 12% d'argon, 150 ppm de krypton et 1500 ppm de xénon; il est introduit dans la colonne 2. En tête de la colonne 2, on récupère en 11 un mélange gazeux de 91% d'azote et de 9% d'argon. En bas de la colonne 2, on récupère un mélange liquide de 94,5% d'argon, de 0,5% de krypton et de 5% de xénon. Ce mélange est introduit en 13 dans la colonne 3. En tête de cette colonne 3, on récupère en 14 de l'argon gazeux à un débit de 600 l/h et en bas de cette colonne 3, on récupère un mélange liquide de 10% de krypton et de 90% de xénon. On introduit ce mélange en 16 dans la colonne 4. En tête de la colonne 4, on récupère en 17 du krypton gazeux à un débit de 3 l/h et en bas de la colonne 4, du xénon liquide à un débit de 30 l/h. Les valeurs données ci-dessus concernent le cas où l'on n'effectue pas le recyclage d'une partie du krypton obtenu en 17 à l'entrée de la colonne 2.

Si l'on effectue ce recyclage, en 19, d'une partie du krypton obtenu en fin de procédé, par exemple à un débit de 27 l/h, le mélange gazeux introduit en 9 à l'entrée de la colonne 2 a alors la composition suivante: 88% d'azote, 12% d'argon, 1500 ppm de krypton et 1500 ppm de xénon. Ceci permet de pouvoir faire fonctionner la colonne 2 à une pression de l'ordre de 10 bars au lieu de 18 bars.

## Revendications

1. Procédé de traitement de gaz effluents du retraitement de combustibles nucléaires irradiés constitués par un mélange contenant au moins du krypton radioactif et du xénon dans l'air, comprenant essentiellement et successivement:

– une première étape d'élimination de l'oxygène

par réduction catalytique et d'élimination des impuretés éventuelles telles que les hydrocarbures, les oxydes d'azote, le gaz carbonique et la vapeur d'eau;

- 5 – une seconde étape d'addition d'argon au mélange gazeux;
- une troisième étape de concentration du xénon et du krypton en solution dans l'argon liquide par distillation cryogénique des gaz légers, et principalement de l'azote, à partir du mélange liquéfié;
- 10 – une quatrième étape de séparation de l'argon par distillation cryogénique du mélange concentré de xénon et de krypton dans l'argon liquide; et
- une cinquième étape de séparation séparant le krypton du xénon par distillation cryogénique du mélange liquide obtenu après la quatrième étape.

2. Procédé selon la revendication 1, caractérisé en ce que l'on prend une partie du krypton, séparé du xénon et obtenu lors de la cinquième étape, et on introduit ladite partie dans le mélange, avant de procéder à la troisième étape de concentration du xénon et du krypton en solution dans l'argon liquide.

3. Procédé selon l'une quelconque des revendications 1 ou 2, caractérisé en ce que la première étape d'élimination de l'oxygène et des impuretés éventuelles comporte un premier stade d'élimination des hydrocarbures par oxydation catalytique, un deuxième stade d'élimination de l'oxygène et des oxydes de l'azote par réduction catalytique, et un troisième stade d'élimination du gaz carbonique et de la vapeur d'eau par passage sur tamis moléculaire et/ou gel de silice.

4. Procédé selon l'une quelconque des revendications 1 à 3, caractérisé en ce que la cinquième étape de séparation du xénon et du krypton s'effectue à une pression d'environ 3 bars.

5. Procédé selon l'une quelconque des revendications 1 à 4, caractérisé en ce que la quatrième étape d'élimination de l'argon du mélange d'argon, de xénon et de krypton obtenu s'effectue à une pression comprise entre la pression à laquelle s'effectue la cinquième étape et la pression à laquelle s'effectue la troisième étape.

## Claims

1. Process for the treatment of effluent gases from the retreatment of irradiated nuclear fuels which consist of a mixture containing at least radioactive krypton and xenon in air, comprising essentially and successively:

- 55 – a first stage for the removal of oxygen by catalytic reduction and removal of the impurities which may be present, such as hydrocarbons, nitrogen oxides, carbon dioxide and water vapour,
- 60 – a second stage for the addition of argon to the gaseous mixture,
- a third stage for the concentration of the xenon and the krypton dissolved in liquid argon by cryogenic distillation of the light gases, and chiefly nitrogen, from the liquefied mixture,
- 65 – a fourth stage for the separation of argon by

cryogenic distillation of the concentrated mixture of xenon and krypton in liquid argon, and  
 – a fifth stage for the separation which separates krypton from xenon by cryogenic distillation of the liquid mixture obtained after the fourth stage.

2. Process according to Claim 1, characterized in that a proportion of the krypton separated from xenon and obtained during the fifth stage is taken and the said proportion is introduced into the mixture before carrying out the third stage for the concentration of the xenon and krypton dissolved in liquid argon.

3. Process according to either of Claims 1 and 2, characterized in that the first stage for the removal of oxygen and of the impurities which may be present comprises a first stage for the removal of hydrocarbons by catalytic oxidation, a second stage for the removal of oxygen and nitrogen oxides by catalytic reduction, and a third stage for the removal of carbon dioxide and water vapour by passing over a molecular sieve and/or silica gel.

4. Process according to any one of Claims 1 to 3, characterized in that the fifth stage for separation of xenon and of krypton is performed at a pressure of approximately 3 bars.

5. Process according to any one of Claims 1 to 4, characterized in that the fourth stage for the removal of argon from the mixture of argon, xenon and krypton which is obtained is performed at a pressure which is between the pressure at which the fifth stage is performed and the pressure at which the third stage is performed.

#### Patentansprüche

1. Verfahren zur Behandlung von von der Wiederaufbereitung von bestrahlten Kernbrennstoffen stammenden Abströmgasen in die Luft, die wenigstens radioaktives Krypton und Xenon enthalten, wobei das Verfahren im wesentlichen und aufeinanderfolgend umfasst:

– einen ersten Schritt zum Entfernen des Sauerstoffs durch katalytische Reduktion und zum Entfernen etwaiger Verunreinigungen wie Kohlenwasserstoffe, Stickstoffoxyde, Kohlendioxyd und Wasserdampf;

– einen zweiten Schritt zum Hinzufügen von Argon zu der Gasmischung;  
 – einen dritten Schritt zur Konzentration des Xenons und des Kryptons in Lösung in dem flüssigen Argon durch Tiefsttemperaturdestillation der leichten Gase, hauptsächlich von Stickstoff, ausgehend von der verflüssigten Mischung;  
 – einen vierten Schritt zum Entfernen des Argons durch Tiefsttemperaturdestillation der konzentrierten Mischung aus Xenon und Krypton in dem flüssigen Argon; und  
 – einen fünften Schritt zum Entfernen, bei dem das Krypton von dem Xenon durch Tiefsttemperaturdestillation der nach dem vierten Schritt erhaltenen Flüssigkeitsmischung getrennt wird.

2. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass man einen Anteil des Kryptons, welches von dem Xenon getrennt ist und beim fünften Schritt erhalten wurde, nimmt und diesen Anteil der Mischung vor der Durchführung des dritten Schrittes zur Konzentration des Xenons und des Kryptons in Lösung in dem flüssigen Argon hinzufügt.

3. Verfahren nach Anspruch 1 oder 2, dadurch gekennzeichnet, dass der erste Schritt zum Entfernen von Sauerstoff und etwaigen Verunreinigungen eine erste Stufe zum Entfernen der Kohlenwasserstoffe durch katalytische Oxydation, eine zweite Stufe zum Entfernen des Sauerstoffs und der Stickstoffsauerstoffverbindungen durch katalytische Reduktion und eine dritte Stufe zum Entfernen des Kohlendioxyds und des Wasserdampfes mittels Durchleiten durch ein Molekularsieb und/oder ein Kieselgel umfasst.

4. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 3, dadurch gekennzeichnet, dass der fünfte Schritt zum Entfernen des Xenons und des Kryptons bei einem Druck von ungefähr 3 Bar durchgeführt wird.

5. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 4, dadurch gekennzeichnet, dass der vierte Schritt zum Entfernen des Argons aus der erhaltenen Mischung aus Argon, Xenon und Krypton bei einem Druck durchgeführt wird, der zwischen dem Druck, bei dem der fünfte Schritt durchgeführt wird, und dem Druck liegt, bei dem der dritte Schritt durchgeführt wird.

5

10

15

20

25

30

35

40

45

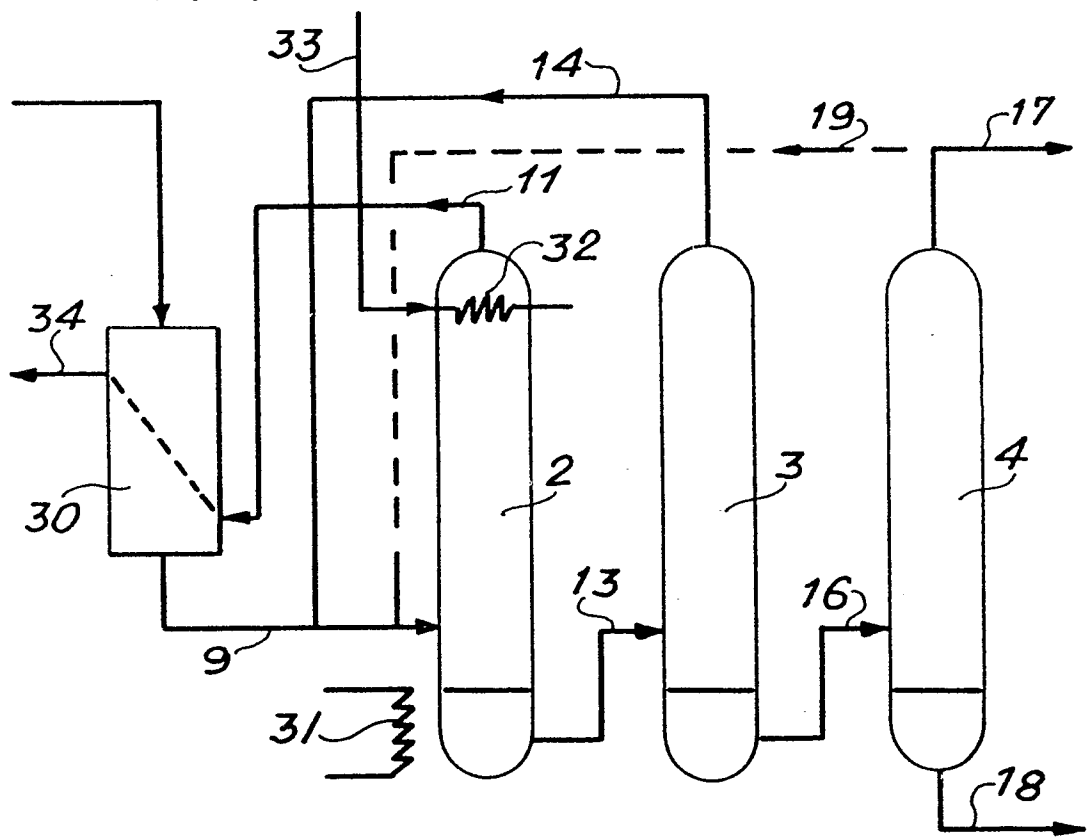
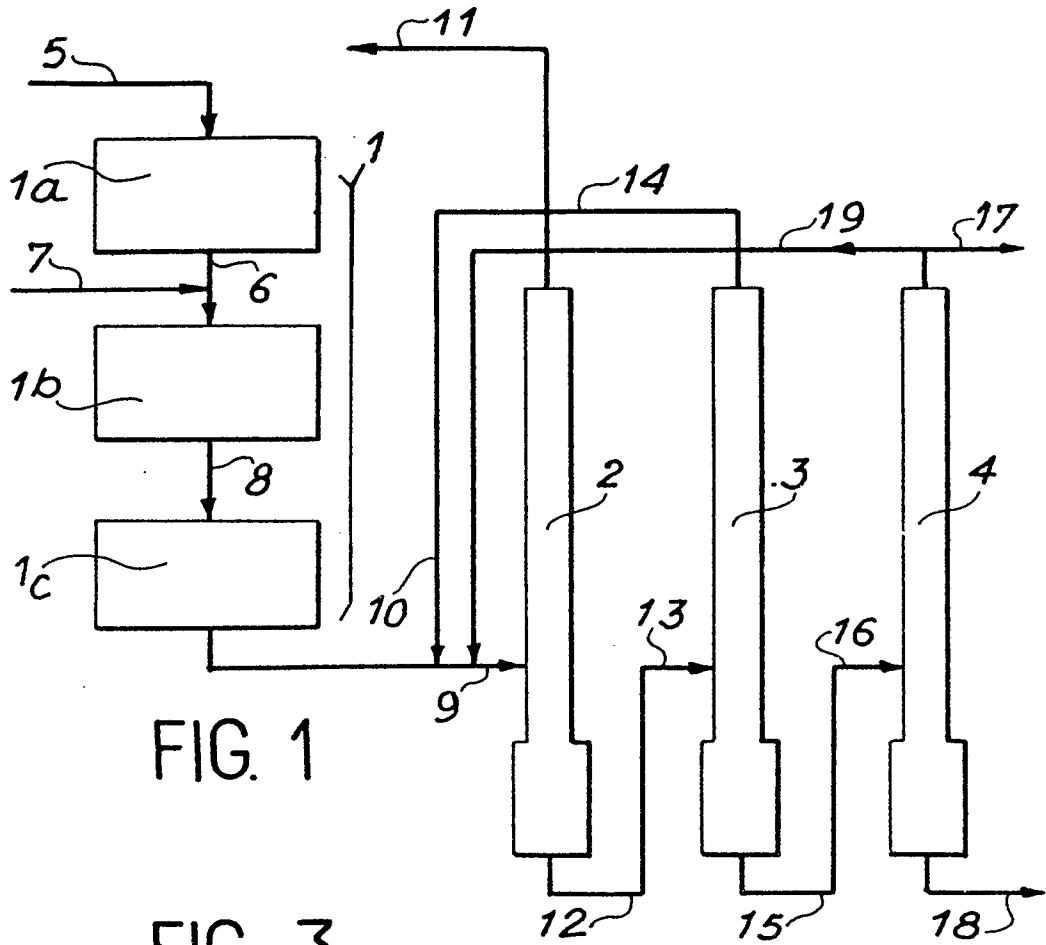
50

55

60

65

6



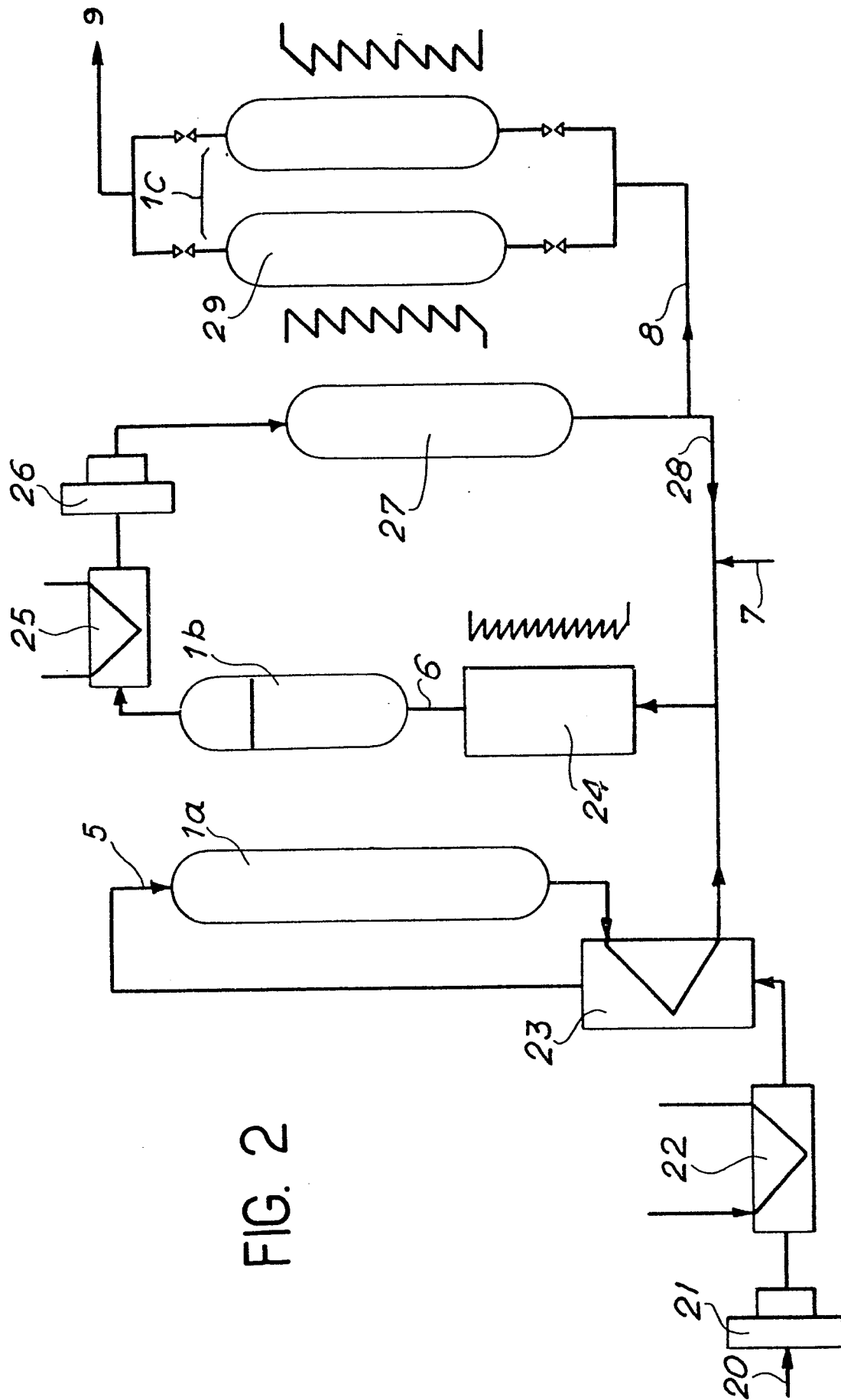


FIG. 2