

EUR 4047 d

LIBRARY

EUROPÄISCHE ATOMGEMEINSCHAFT — EURATOM

~~LIBRARY COPY~~

**ENTWICKLUNG EINES VERFAHRENS
ZUR KONZENTRIERUNG UND TROCKNUNG
VON FLÜSSIGEM RADIOAKTIVEM ABFALL
BEI NIEDRIGEN TEMPERATUREN UND KLEINEN
TEMPERATURDIFFERENZEN**

von

K. JESSNITZER und H.J. LEHMANN
(Leybold-Heraeus GmbH)

1968



Bericht abgefaßt von
Leybold-Heraeus GmbH & Co., Köln - Deutschland

Euratom-Vertrag Nr. 009-65-2 WASD

HINWEIS

Das vorliegende Dokument ist im Rahmen des Forschungsprogramms der Kommission der Europäischen Gemeinschaften ausgearbeitet worden.

Es wird darauf hingewiesen, daß die Kommission der Europäischen Gemeinschaften, ihre Vertragspartner und die in deren Namen handelnden Personen :

keine Gewähr dafür übernehmen, daß die in diesem Dokument enthaltenen Informationen richtig und vollständig sind, oder daß die Verwendung der in diesem Dokument enthaltenen Informationen, oder der in diesem Dokument beschriebenen technischen Anordnungen, Methoden und Verfahren nicht gegen gewerbliche Schutzrechte verstößt;

keine Haftung für die Schäden übernehmen, die infolge der Verwendung der in diesem Dokument enthaltenen Informationen, oder der in diesem Dokument beschriebenen technischen Anordnungen, Methoden oder Verfahren entstehen könnten.

Dieser Bericht wird in den auf der vierten Umschlagseite genannten Vertriebsstellen

zum Preise von DM 6,80	FF 8,50	FB 85,—	Lit. 1060	Fl. 6,20
------------------------	---------	---------	-----------	----------

verkauft.

Es wird gebeten, bei Bestellungen die EUR-Nummer und den Titel anzugeben, die auf dem Umschlag jedes Berichts aufgeführt sind.

Gedruckt von Van Muysewinkel.
Brüssel, September 1968.

Das vorliegende Dokument wurde an Hand des besten Abdruckes vervielfältigt, der zur Verfügung stand.

EUR 4047 d

EUROPÄISCHE ATOMGEMEINSCHAFT — EURATOM

ENTWICKLUNG EINES VERFAHRENS
ZUR KONZENTRIERUNG UND TROCKNUNG
VON FLÜSSIGEM RADIOAKTIVEM ABFALL
BEI NIEDRIGEN TEMPERATUREN UND KLEINEN
TEMPERATURDIFFERENZEN

von

K. JESSNITZER und H.J. LEHMANN
(Leybold-Heraeus GmbH)

1968



Bericht abgefaßt von
Leybold-Heraeus GmbH & Co., Köln - Deutschland

Euratom-Vertrag Nr. 009-65-2 WASD

Zusammenfassung

Die Entwicklung eines Verfahrens wird beschrieben, mit dem radioaktive flüssige Abfälle nach dem Gefriertrockenverfahren behandelt werden. Ziel der Entwicklung ist ein trockenes lagerfähiges Konzentrat und ein flüssiger oder gasförmiger Rückstand mit einem Dekontaminationsfaktor von mindestens 10^5 .

Das Gesamtverfahren, das die Schritte Verdampfen, Einfrieren und Gefriertrocknen umfaßt, wird in einer Versuchsanlage mit einem Durchsatz von etwa 25 l/h Feed zum Verdampfer erprobt. Die Entwicklung ist noch nicht abgeschlossen und wird zur Zeit fortgesetzt.

Die Vorkonzentration erfolgt in einem Verdampfer, der sich für den Betrieb bei niedrigen Temperaturen und niedrigen Dampfdrücken eignet. Das Prinzip des Rieselfilmverdampfers wurde gewählt, ein entsprechender Apparat entwickelt und Untersuchungen angestellt, die einen optimalen Betrieb bei Verdampfungstemperaturen von 30 bis 40 °C und bei Temperaturdifferenzen von 6 bis 8 °C ergaben.

Das Einfrieren des Vorkonzentrats (etwa 150 bis 200 g/l) wird eingehend betrachtet, da die Beschaffenheit der gefrorenen Lösung maßgeblich den Energieaufwand für das Gefriertrocknen bzw. den Durchsatz beeinflusst. Die Eigenschaften verschiedener ausgewählter Verfahren werden untersucht.

Für den eigentlichen Gefriertrockenschritt wurde eine handelsübliche Laboranlage für aktiven Betrieb gebaut. Die Einrichtung gestattet es, verschiedene Heizprogramme zu fahren sowie Temperatur und Gewichtsverlust des Eisgutes zu messen. Vorversuche ergaben die Möglichkeit, verschiedene Einfrierverfahren einem spezifischen Trockenverfahren zuzuordnen.

SCHLAGWORTE

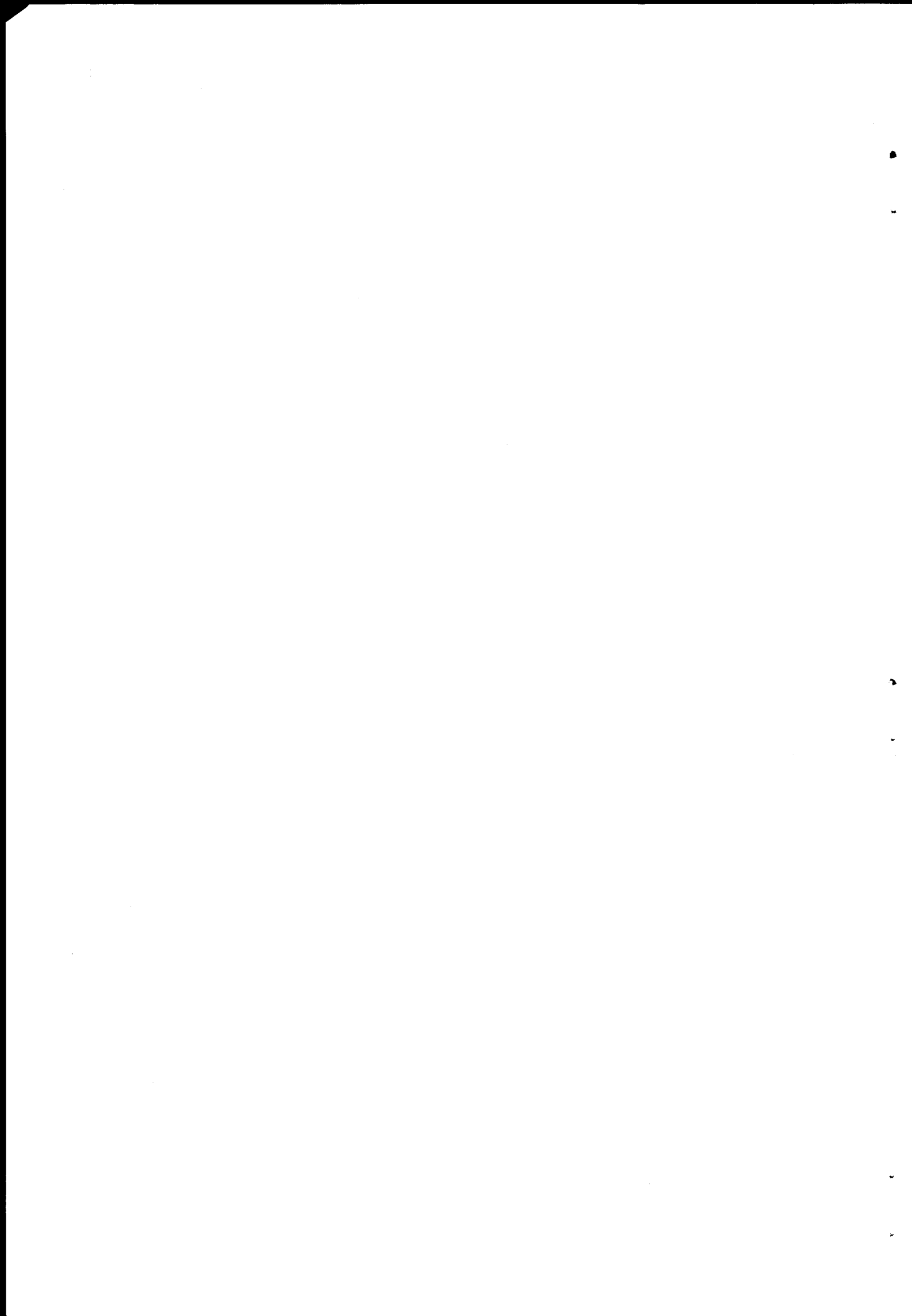
WASTE PROCESSING	SPRAY DRYING
WASTE SOLUTIONS	DESIGN
EVAPORATION	LABORATORY EQUIPMENT
FREEZING OUT	HEATING
DRYING	TEMPERATURE
DECONTAMINATION	WEIGHT
PILOT PLANT	CONTROL SYSTEMS

INHALTSVERZEICHNIS

I.	<u>Theoretische Betrachtung des Verfahrens</u>	7
1	Darstellung des Gesamtverfahrens	7
2	Betrachtung der Temperatureinflüsse	7
3	Verdampfertheorie	9
3.1	Diskussion der Verdampfertypen	9
3.2	Begründung der gewählten Heizart	10
3.3	Erzielbare Vorkonzentrationen	11
4	Theorie der Einfrierverfahren	12
4.1	Wärmeentzug über feste Flächen	12
4.2	Wärmeentzug durch ein Übertragungsmedium	13
4.3	Wärmeentzug durch Verdampfung	14
4.4	Förder- und Lagerverhalten des eingefrorenen Zwischenkonzentrats	15
5	Gefriertrockenvorgang	16
5.1	Strömung des Sublimatdampfes	16
5.2	Abführung des Sublimatdampfes	18
5.3	Abtauen des Kondensators	18
5.4	Nachbehandlung des Eiskondensats	19
6	Behandlung des Endprodukts	21
6.1	Nachverdichtung	21

6.2	Hinweise auf Endlagerungsmöglichkeiten	21
7	Feststellung von Dekontaminationsfaktoren	21
7.1	Konventionelle Methode	21
7.2	Radiometrische Methode	22
II.	<u>Verdampferversuche</u>	23
1	Versuchsaufbau	23
2	Vorversuche	26
3	Versuchsdurchführung	31
4	Versuchsergebnisse	33
III.	<u>Einfrierversuche</u>	39
1	Sprüheisverfahren	40
1.1	Umlauf-Sprüheisapparatur	40
1.1.1	Versuchsaufbau	40
1.1.2	Versuchsdurchführung	42
1.1.3	Versuchsergebnisse und Folgerungen	45
1.2	Konzentrische Sprüheisapparatur	46
1.2.1	Vorversuche	46
1.2.1.1	Modell I	47
1.2.1.2	Modell II	48
1.2.1.3	Modell III	50
1.2.2	Folgerungen aus den Vorversuchen	52
2	Sprengeisverfahren	53
2.1	Versuchsaufbau	53
2.2	Versuchsdurchführung	54

2.3	Versuchsergebnisse	54
3	Platteneisverfahren	56
3.1	Vorversuche	56
3.2	Auslegung für kontinuierlichen Betrieb	57
4	Softeisverfahren	59
4.1	Vorversuche	59
4.2	In Aussicht genommene Aushärteverfahren	60
IV.	<u>Gefriertrockenversuche</u>	61
1	Versuchsaufbau	61
2	Vorversuche	63
2.1	Untersuchung geeigneter Stückgrößen und Schalenformen	63
2.2	Meßanordnung zur Bestimmung von Heizprogrammen	65
3	Zuordnung von Einfrier- und Gefriertrockenverfahren	66
V.	<u>Fortführung der Versuche</u>	67
1	Verdampfen	67
2	Einfrieren	69
3	Gefriertrocknen	69
4	Auslegung einer Anlage im Pilotmaßstab	70



ENTWICKLUNG EINES VERFAHRENS ZUR KONZENTRIERUNG UND TROCKNUNG
VON FLÜSSIGEM RADIOAKTIVEM ABFALL BEI NIEDRIGEN TEMPERATUREN
UND KLEINEN TEMPERATURDIFFERENZEN (+)

I. Theoretische Betrachtung des Verfahrens

1 Darstellung des Gesamtverfahrens

Das Programm befaßt sich mit der Einengung von radioaktiven Salzlösungen, wie sie vielfach in Labors oder kerntechnischen Anlagen als Flüssigwaste anfallen. Das gewählte Verfahren umfaßt eine Kombination von Niederdruckeindampfung, Einfrieren, Gefriertrocknung und gegebenenfalls Ionenaustausch (s. Abb. 1).

Der letztgenannte Schritt muß besonders dann mitbetrachtet werden, wenn die spezifische Aktivität der Trockensubstanz hoch ist. Hierbei konkurriert die nachgeschaltete Kondensatreinigung mit einer Erhöhung des Trenneffekts in der Verdampfung auf Kosten höheren Energie- und Anlagenaufwandes.

Das Endziel der Einengung ist ein festes Endprodukt, dessen geringer Wassergehalt - Richtwert ist 1 % - eine gute Endlagerfähigkeit erwarten läßt.

2. Betrachtung der Temperatureinflüsse

Da die Gefriertrocknung, wie schon der Name sagt, mit niedrigen Temperaturen arbeitet, wird auch der Verdampfer als Niederdruckeindampfer bei tiefen Temperaturen betrieben. Im Versuch sind Verdampfungstemperaturen bis herab zu 25 °C vorgesehen. Dadurch destillieren erstens Feststoffe mit hohem Dampfdruck, wie z.B. Rutheniumtetroxyd, nur schwer über. Zweitens ist es möglich, bei Temperaturen in diesem Bereich einen Teil der Heizwärme des Verdampfers von der warmen Seite der Kältemaschine zu beziehen. Schließlich nimmt die Korrosion der wärmetauschenden Flächen mit Verringerung der Temperatur ab.

(+) Manuskript erhalten am 10. Juni 1968.

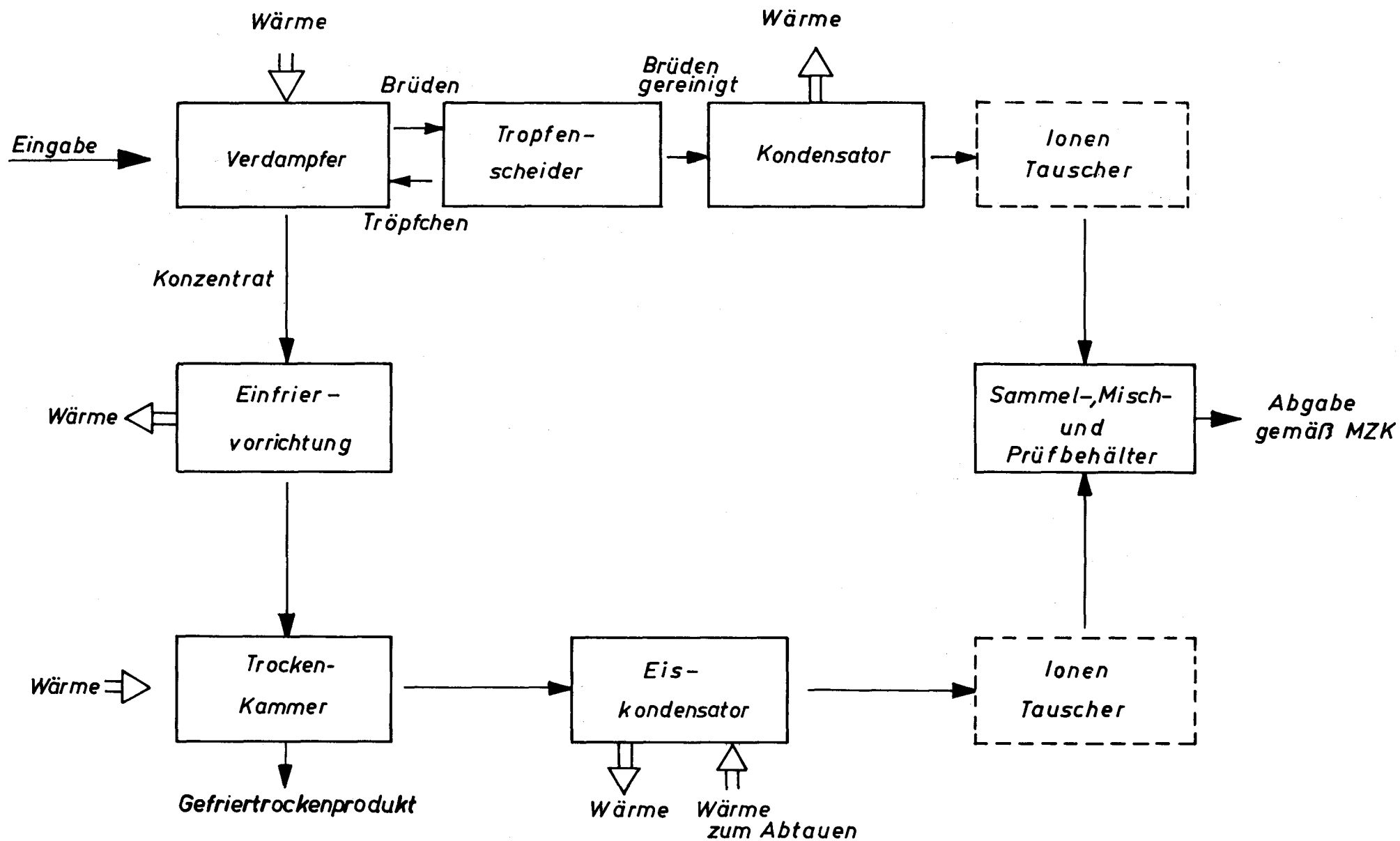


Abb. 1
Blockdiagramm des Gesamtverfahrens

3 Verdampfertheorie

3.1 Diskussion der Verdampfertypen

Bei der Auswahl des Verdampfertypes muß zunächst sichergestellt sein, daß sich der Verdampfer für den Betrieb bei niedrigen Temperaturen und damit bei niedrigen Dampfdrücken eignet. Damit scheiden die Naturumlaufverdampfer, deren Prinzip auf der Rührwirkung der Dampfblasen beruht, aus.

Der Zwangsumlaufverdampfer nach dem Prinzip Überhitzung - Entspannung, meist "flash" genannt, hat sich als technisch hochwertige Lösung zur Waste-Einengung in Europa durchgesetzt. Der Typ kann als technisch ausgereift angesehen werden. Dagegen hat sich in Amerika dieser Typ wegen anderer Energiekostenlagen der dortigen Zentren und anderer Bedingungen der Kondensatabgabe nicht durchsetzen können.

Bei der Meerwasserentsalzung, die in der Entwicklung ökonomischer Verdampfer richtungsweisend ist, hat sich das Verfahren der Vielfachentspannung "multi - stage - flash" und das eines Rieselfilmverdampfers als wirtschaftlich erwiesen. Da die Mehrfachentspannung über einen größeren Temperaturbereich arbeitet und damit für ein Niedrigtemperaturverfahren ausscheidet, verbleibt der Rieselfilmverdampfer als geeignete Lösung für das Versuchsprogramm.

Über diesen Verdampfertyp ist der gesichteten Literatur außer der Angabe über gute Wirtschaftlichkeit bei der Meerwasserentsalzung wenig zu entnehmen. Das Versuchsprogramm soll eine Entwicklung für den kerntechnischen Bereich unterstützen.

3.2 Begründung der gewählten Heizart

Für die Heizung wurde Wasserdampf im Unterdruckbereich vorgesehen. Hierdurch wird neben einem hohen Wärmetübergang auf der Heizseite die Druckdifferenz zwischen Heiz- und Verdampfungsseite der wärmetauschenden Flächen so gering, daß auch die für einen Großprozeß notwendigen Flächen dünn ausgebildet werden können. Dies bewirkt außer einer Materialeinsparung eine Verringerung des Wärmewiderstandes und damit der Temperaturdifferenz.

Da bei Energieverkopplung die Wärmeumsätze von Verdampfung und Kondensation nach der Kreisprozeßformel von Carnot für die Wärmepumpenleistung $P = Q (T_1 - T_2) / T_1 = Q \cdot \Delta T / T_1$ betrachtet werden müssen, bedeutet jede Verringerung der Temperaturdifferenz auch eine Verminderung des Energieaufwandes.

Da die Energieverkopplung in der Praxis oft durch Brüdenkompression geschieht, können die Ergebnisse des Versuchsverdampfers auch für diesen Anwendungsbereich ausgewertet werden. Die Brüdenkompression erfordert eine Festlegung von Durchsatzmenge, Arbeitstemperatur und Temperaturdifferenz, also jener Größen, die im Versuchsbetrieb variiert werden müssen. Daher werden nur die vom Verdampfer bestimmten Einflußgrößen des Verfahrens ermittelt, während die Verdichterdaten nach den Erfahrungen der Hersteller hierzu rechnerisch kombiniert werden können.

Ein weiterer Vorteil der Dampfheizung liegt darin, daß sich auf der gesamten durch Kondensation des Dampfes beheizten Fläche praktisch die gleiche Temperatur ein-

stellt, da der Dampf im gesamten Heizraum den gleichen Druck hat. Bei vollständiger Unterbrechung des Wärmeflusses für ein Flächenelement bleibt die örtliche Überhitzung unterhalb der vorgegebenen Temperaturdifferenz. Dies ist besonders wünschenswert, weil so die Gefahr von Mineralablagerungen auf der wärmetauschenden Fläche geringer wird. Solche Mineralablagerungen, als "scaling" im gesamten Verdampferbau bekannt und gefürchtet, behindern einerseits den Wärmefluß und sind andererseits z.B. bei Ca SO_4 äußerst schwierig zu entfernen. Bei kerntechnischer Anwendung des Verdampfers würde ein notwendiger Zugang zu den wärmetauschenden Flächen außerdem einen hohen Aufwand bedeuten.

Hier erweist sich ein weiterer Vorteil der geringen Arbeitstemperatur und der damit verbundenen geringeren Korrosion, da die Wärmetauscherflächen weniger aufgeraut und somit die Gefahr des "scaling" weiter vermindert werden.

3.3

Erzielbare Vorkonzentrationen

Die Salzlösung soll im Verdampfer bei ständigem Umlauf soweit eingedampft werden, wie es das Verfahren zuläßt. Die Grenze ist durch das Ausfallen von Salzmengen gegeben, die den Prozeß stören können. Die erreichbare Feststoffkonzentration wird bei etwa 100...150 g/l liegen. Bestimmte Salzlösungen lassen sich im Verdampfungsverfahren mit geringen Temperaturdifferenzen auch bis zu Feststoffgehalten von 180...200 g/l eindampfen. Dabei sind Kontrollen auf ausgefällte Kristalle und eine Bestimmung der gelösten Salze notwendig. Da die Vorkonzentration den Mengenanteil des Wassers angibt, der im aufwendigeren Gefriertrocknungsprozeß extrahiert werden muß, ist eine Bestimmung der erreichbaren Konzentrationen besonders bei Großverfahren wichtig.

4

Theorie der Einfrierverfahren

Das in der Verdampferstufe erzielte Vorkonzentrat wird einem Einfrierverfahren zur Vorbereitung für die Gefriertrocknung zugeführt. Durch das Verfahren soll ein schüttfähiges Gut aus Eispartikeln erzielt werden, die ein hohes Verhältnis von Oberfläche zum Volumen haben. Für das Einfrieren stehen grundsätzlich 3 Wege zur Verfügung:

- a) Wärmeentzug über feste Flächen
- b) Wärmeentzug durch ein im Kreislauf gefördertes Übertragungsmedium
- c) Wärmeentzug durch Verdampfung eines Teils des Wassers

Die einzelnen Verfahren haben ihre wirtschaftliche Bedeutung bei verschiedenen Durchsatzmengen. Es ist jeweils zu beachten, daß die Form des eingefrorenen Vorkonzentrats nach Partikelgröße und -homogenität den Aufbau und die Energiekosten des eigentlichen Gefriertrockenprozesses beeinflusst. Auch die Verschmutzung des Eiskondensats, die besonders beim drittgenannten Einfrierverfahren in Kauf genommen werden muß, ist in die Betrachtung mit einzubeziehen. Der Grad der Kontamination entscheidet, welche Nachbehandlung für das Eiskondensat erforderlich ist.

4.1

Wärmeentzug über feste Flächen

Ein weiterer Anwendungsbereich kommt Verfahren zu, bei denen das Vorkonzentrat an Metallflächen anfriert, die durch direkte Kältemittelverdampfung gekühlt werden. Das so erzielte Eis muß anschließend von diesen Flächen abgelöst werden.

Verfahren, die dieses Ziel mit Schabe- oder Fräs-
werkzeugen erreichen, sind hier wenig geeignet,
da sie ein ständig bewegtes und damit verstärktem
Verschleiß unterworfenen System in einem Raum
größter Kontamination erfordern. Abtauverfahren
sind bei größeren Eisdicken wirtschaftlich. Sie
erfordern zusätzliche Vorrichtungen zur Zerkleine-
rung des Eises.

Bei den restlichen Verfahren wird eine aufgefro-
rene dünne Eishaut von der wärmeentziehenden Flä-
che dadurch abgelöst, daß man die Fläche elastisch
deformiert und das Eis aufgrund seiner Sprödig-
keit in kleinen Scherben abplatzt. Diese Scherben
weisen durch ihre geringe Dicke ein günstiges Ver-
hältnis Oberfläche zu Volumen auf, was für die an-
schließende Trocknung von Bedeutung ist.

4.2

Wärmeentzug durch ein Übertragungsmedium

Für ein kontinuierlich arbeitendes Verfahren scheint
eine Anordnung geeignet, bei dem ein strömendes Me-
dium fein verteilten Vorkonzentrat-Tröpfchen Wärme
entzieht, bis die Tropfen gefrieren. Das Medium la-
det an einer geeigneten Stelle die Eiskörner ab,
wird anschließend durch eine Kältemaschine gekühlt
und durchläuft den Kreislauf erneut.

Das Verfahren wird für Luft ausgelegt, wobei die
kleinen Tropfen dadurch entstehen, daß die Flüs-
sigkeit mit hoher Geschwindigkeit gegen die Luft
gesprüht wird. Der Staudruck überwiegt oberhalb
einer gewissen Tropfengröße die Bindungskräfte
der Oberflächenspannung, und der Tropfen spaltet
sich in kleinere unterhalb der kritischen Größe

auf. Als Übertragungsmedium ist zwar grundsätzlich auch eine Flüssigkeit geeignet, doch bereitet es technische Schwierigkeiten, eine genügend gleichmäßige Tropfenverteilung zu erreichen. Das Verfahren wirft vor allem strömungstechnische Probleme auf, da die Tröpfchen vor dem völligen Gefrieren keine feste Fläche berühren dürfen. Bei einem Großprozeß könnte als Übertragungsgas auch Wasserstoff verwendet werden, was im Versuchsbetrieb wegen des Sicherheitsaufwandes unmöglich ist.

4.3 Wärmeentzug durch Verdampfung

Für kleine Durchsätze wird im Rahmen dieser Versuchsarbeiten untersucht, ob der Weg des Wärmeentzugs durch Verdampfung eines Teils des Wassers gangbar ist, da hier sowohl ein schlechteres Energiekonzept als auch der Nachteil des stärker kontaminierten Kondensats durch Vereinfachung des apparativen Aufbaus wirtschaftlich aufgewogen werden. Es werden 2 Wege beschritten:

- a) Einsprühen des Vorkonzentrats in Vakuum in Form fein verteilter Tröpfchen
- b) Einleiten ins Trockengefäß und Verdampfung über die Gesamtoberfläche

Der zweite Weg bedingt eine Ausheizung durch Strahlungswärme und schließt so eine örtliche Überhitzung nicht aus. Beide Verfahren erfordern normalerweise eine Rezirkulation des Eiskondensats zum Verdampfer.

4.4

Förder- und Lagerverhalten des eingefrorenen
Zwischenkonzentrats

Außer dem eigentlichen Einfrieren ist auch das Förder- und Zwischenlagerverhalten des dabei erzielten Produktes zu prüfen. Dabei ist zu ermitteln, unter welchen Bedingungen sich die Teilchen lagern lassen, ohne zusammenzufrieren.

Das Zusammenfrieren behindert das Verfahren auf zweierlei Art. Einerseits hat ein fein und homogen verteiltes Eisgranulat bessere Fördereigenschaften für kontinuierliche Fördervorgänge, wie Schütten und Bewegen durch Schwingrinnen. Andererseits kann der bei der Sublimation erzeugte Dampf aus einem lose geschütteten Haufwerk wesentlich besser abgeführt werden.

Da das Zusammenfrieren von Teilchen durch örtliches Schmelzen und Wiedergefrieren unter Pressung geschieht, kann dieser Vorgang durch Unterkühlung verhindert werden. Diese kann durch Lagerung in einem Isoliergefäß unter dem Kondensatorvakuum der Gefrier-trocknung erreicht werden.

Da die Unterkühlung hier aber begrenzt ist, kann bei Steigen der Schütthöhe der Druckeinfluß überwiegen. Dann muß durch ständige Bewegung der Teilchen das Zusammenfrieren verhindert werden. Hierzu kann entweder eine Art Bunkerrüttler dienen oder das Einblasen kalter Luft am Behälterboden eine Fließbettbewegung bewirken.

5

Gefriertrockenvorgang

Gefriertrocknung ist bekanntlich das Entfernen des Lösungsmittels aus einer eingefrorenen Lösung durch Sublimation. Die Sublimation ist ein direkter Übergang eines Stoffes von der festen in die dampfförmige Phase, wobei das Gebiet der Flüssigkeit nicht berührt wird (s. p-T Diagramm von Wasser, Abb. 2). Zunächst ist zu berücksichtigen, daß die Arbeitstemperatur unter der eutektischen Temperatur der eingefrorenen Lösung liegen muß. Damit liegt der Arbeitsdruck weit unterhalb des Druckes am Tripelpunkt von Wasser. Durch die molekularen Bindungskräfte wird der Dampfdruck über dem eutektischen Eis noch weiter erniedrigt.

Das spezifische Volumen von Wasserdampf beträgt schon am Tripelpunkt bei 4.2 Torr $206 \text{ m}^3/\text{kg}$. Bei $-25 \text{ }^\circ\text{C}$, der ungefähren eutektischen Temperatur einiger wichtiger Salzlösungen, beträgt der Dampfdruck über reinem Wassereis $0,47$ Torr bei einem spezifischen Volumen von $2000 \text{ m}^3/\text{kg}$.

5.1

Strömung des Sublimatdampfes

Der Sublimatdampf entsteht an der Oberfläche des in der einzelnen Partikel verbliebenen und noch nicht getrockneten Eiskerns. Der Dampf strömt von hier zunächst in einer Molekularströmung durch die bereits getrockneten Schichten des Partikels und weiter durch die Zwischenräume zwischen den einzelnen Teilchen. Dabei ist wieder eine Druckdifferenz notwendig, um diese Strömung aufrechtzuerhalten.

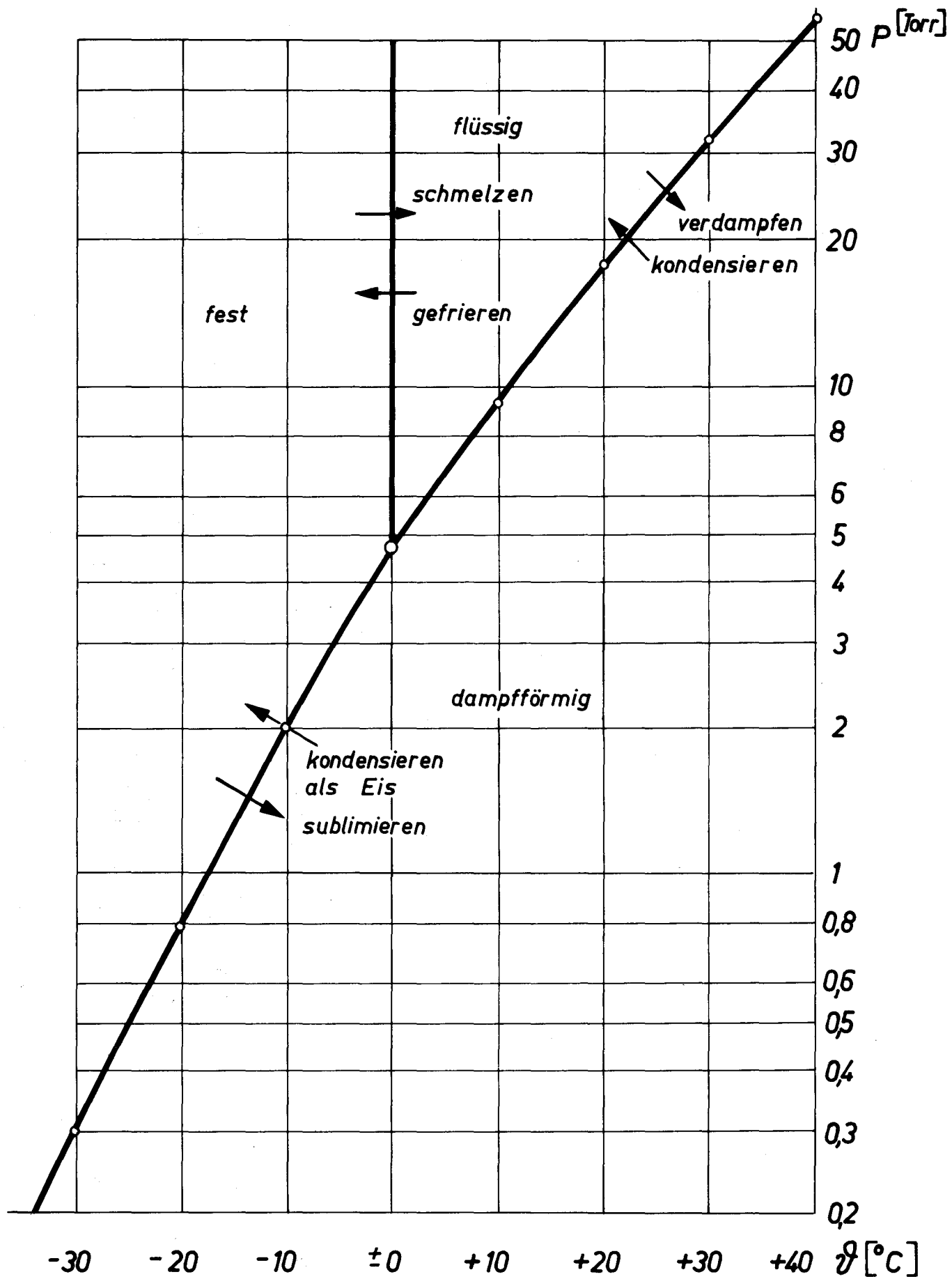


Abb. 2

Phasendiagramm für Wasser

5.2 Abführung des Sublimatdampfes

Die nach der vorangehenden Betrachtung ermittelten Dampfvolumina in der Größenordnung von $3000 \text{ m}^3/\text{kg}$ lassen erkennen, daß eine Abführung aus der Trockenkammer durch mechanische Pumpen schwierig ist. Tatsächlich ist dieser Weg nur bei der Trocknung kleiner Mengen von Gewebepräparaten in Gebrauch.

Dampfstrahlpumpen sind sehr aufwendig, weil eine vielstufige Gruppe mit hohem Dampfverbrauch notwendig ist, um den Dampf auf einen Druck zu bringen, bei dem er durch Kühlwasser niedergeschlagen werden kann.

Es ist deshalb üblich, den Dampf in einen Kondensator strömen zu lassen und ihn dort auf einer durch eine Kältemaschine gekühlten Rohrschlange zu kondensieren.

5.3 Abtauen des Kondensators

Die Kondensation erfolgt wegen des herrschenden Druckniveaus wieder als Eis. Der Eisansatz muß wegen seiner schlechten Wärmeleitfähigkeit periodisch von der Kondensatorschlange entfernt werden, wobei sich das Abtauen in der Praxis als günstige Lösung erwiesen hat.

Bei Anlagen im industriellen Maßstab wird jeweils einer von mehreren Kondensatoren vom Trockenraum abgetrennt und seine Schlange mit Kältemitteldampf beaufschlagt, der durch das schmelzende Eis gekühlt wird. Dadurch läßt sich ein Teil der Kühlenergie zurückgewinnen. Um diese Verhältnisse zu simulieren

und keine weiteren Heizelemente in den Kondensator einbringen zu müssen, wurde auch die Versuchsanlage mit einer Heißgasabtauung versehen.

Dem Dampf, der aus dem Trockenraum in den Kondensator strömt, soll die abschließbare Klappe möglichst wenig Strömungswiderstand bieten, Dazu sind für den Durchgang große Querschnitte erforderlich und damit große Klappen, die nur durch spezielle Konstruktionen dicht gestaltet werden können.

5.4 Nachbehandlung des Eiskondensats

Wie jedes Trennverfahren arbeitet auch die Gefrier-trocknung nur mit einem endlichen Trenneffekt, es gehen also Spuren des Feststoffes in das Eiskonden-sat über. Maßnahmen, die den Durchsatz und damit die Leistung des Verfahrens erhöhen, wie stärkere Heizung, Bewegung des Gutes während der Trocknung oder dergleichen, können gegebenenfalls den Trenn-effekt so weit verschlechtern, daß eine direkte Abgabe des Eiskondensats unzulässig wird. Durch stufenweise Variation der Heizflächentemperaturen während einer Gefriertrockenkampagne bei gleich-zeitiger Messung des Gewichtsverlustes des Eis-produktes und Messung der auf den Eiskondensator übergetretenen Feststoffmenge kann der Dekonta-minationsfaktor in Abhängigkeit vom Durchsatz er-mittelt werden. Danach kann die Wirtschaftlich-keit eines Gefriertrockenverfahrens mit geeigne-tem Heizprogramm, d. h. mit einer voraussichtli-chen Einbuße an Durchsatzleistung, mit der eines Verfahrens ohne Heizprogramm, d. h. bei maximalem Durchsatz unter Berücksichtigung einer Nachbe-handlung des Eiskondensats verglichen werden. Es

werden 3 Methoden der Nachbehandlung betrachtet:

a) Nachbehandlung durch Ionentauscher

Dieser Weg ist vorteilhaft, wenn im Kondensat nur sehr geringe Feststoffmengen auftreten, die spezifischen Aktivitäten der Feststoffe aber so hoch sind, daß die Aktivität des Kondensats über der Abgabegrenze liegt. Die Standzeit des Ionentauscherharzes oder -zeoliths ist groß.

b) Verdünnung mit Verdampferkondensat oder Kühlwasser

Liegt das Verdampferkondensat genügend unter dem zulässigen Abgabewert, so genügt bei mittleren bis hohen Vorkonzentrationen oft eine Mischung beider Kondensatströme, um das Wasser in die Umgebung ableiten zu können. Ist bei Frischwasserkühlung die Prüfung des abzuleitenden Kühlwassers ohnehin vorgesehen, so kann auch dieser Strom zur Verdünnung herangezogen werden und die Bewältigung entsprechend größerer Kondensataktivitäten ermöglichen.

c) Rezirkulation des Kondensats zum Verdampfer

Bei Anlagen, die mit hoher Vorkonzentration arbeiten, also Flüssigkeiten mit einem niedrigen Anfangsfeststoffgehalt einengen - in der Praxis ist oft die Größenordnung von 1 g/l anzutreffen - kann das Eiskondensat in die Verdampferanlage zurückgespeist werden.

6 Behandlung des trockenen Endproduktes

6.1 Nachverdichtung

Da das nahezu wasserfreie Endprodukt eine lockere Struktur hat, ist für die Endlagerung eine Nachverdichtung angebracht, um an Behältervolumen zu sparen. Die Nachverdichtung muß so erfolgen, daß eine Kontamination der Verdichtungsanlage durch Staub gering bleibt.

6.2 Gedanken zur Endlagerung

Die Ausgestaltung von Endlagermöglichkeiten wird von anderen Instituten untersucht. Es sei nur kurz angeführt, daß die Lagerung eines Gefriertrockenendproduktes unter dem Gesichtspunkt vermindelter Innenkorrosion der Behälter zu betrachten ist.

7 Feststellung von Dekontaminationsfaktoren

Die Dekontaminationsfaktoren können durch Zugabe von nichtradioaktiven Tracern nach konventioneller chemischer Analyse oder durch Zugabe von radioaktiven Tracern nach radiometrischer Methode bestimmt werden.

7.1 Konventionelle Methode

Dem Ausgangsprodukt wird Mangan in Form von Mangannitrat zugegeben. Die Mangankonzentration im Kondensat wird spektral-photometrisch bestimmt. Die Genauigkeit der Messung beträgt etwa 5 % bei Konzentrationen im Kondensat von 500 μ g/l. Nach Voreindampfung des Kondensats kann mit dieser

Methode ein DF von etwa $5 \cdot 10^4$ bestimmt werden pro Zugabe von 1 g Mangan je Liter Ausgangsprodukt. Diese Meßmethode ist also nur für einen verhältnismäßig großen Feststoffanteil im Ausgangsprodukt interessant. Sie wird vor allem zur überschlägigen Vorbestimmung von Trennfaktoren angewendet.

7.2

Radiometrische Methode

Um die Dekontaminationsmessungen zuverlässiger und das Ergebnis von chemischen Einflüssen durch Wandmaterialien etc. unabhängig zu gestalten, werden Messungen mit Radioisotopen durchgeführt. Es sollen 2 Anionen und 3 Kationen berücksichtigt werden. Mit Rb 86, Ba 140 und Pr 143 sind Vertreter der ersten beiden Gruppen des periodischen Systems sowie eine seltene Erde der dritten Gruppe berücksichtigt worden. P 32 und S 35 stehen für die 5. und 6. Gruppe.

Als Meßmethode für den Nachweis im Kondensat ist die Flüssigscintillation ausgewählt worden. Diese Methode zeichnet sich durch eine hohe Nachweisempfindlichkeit aus und ermöglicht den Nachweis eines hohen Dekontaminationsfaktors bei geringen eingesetzten Aktivitäten.

II. Verdampferversuche

1 Versuchsaufbau

Da der Verdampfer den größten Energie- und Stoffumsatz der Gesamtanlage hat, muß eine Anlage benutzt werden, die drei Forderungen optimal kombiniert: hohe Dekontamination, hohe Konzentration und niedrigen Energieverbrauch. Außerdem sind hohe Betriebssicherheit und niedrige Investitionskosten anzustreben.

Es wurde ein niederdruckdampfbeheizter Rieselfilmverdampfer mit senkrechtem Rohrbündel gewählt (Abb. 3), damit die Versuchsergebnisse möglichst gut auf größere Anlagen übertragen werden können. Die Rohrzahl wurde zu 7 gewählt. Dadurch ergab sich neben einem kompakten Aufbau mit gleichen Rohrabständen die Möglichkeit, mit nur drei herausgeführten Anschlüssen für 1, 2 und 4 Verdampferrohre (Abb. 4) durch Kombination jede gewünsch-

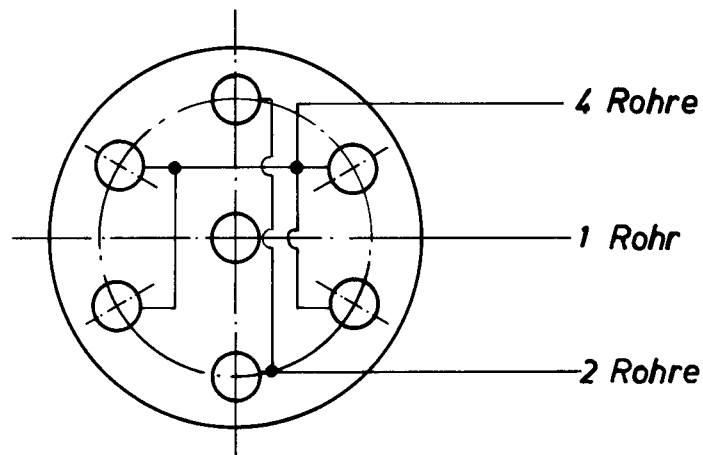


Abb. 4 Rohranordnung beim Verdampfer

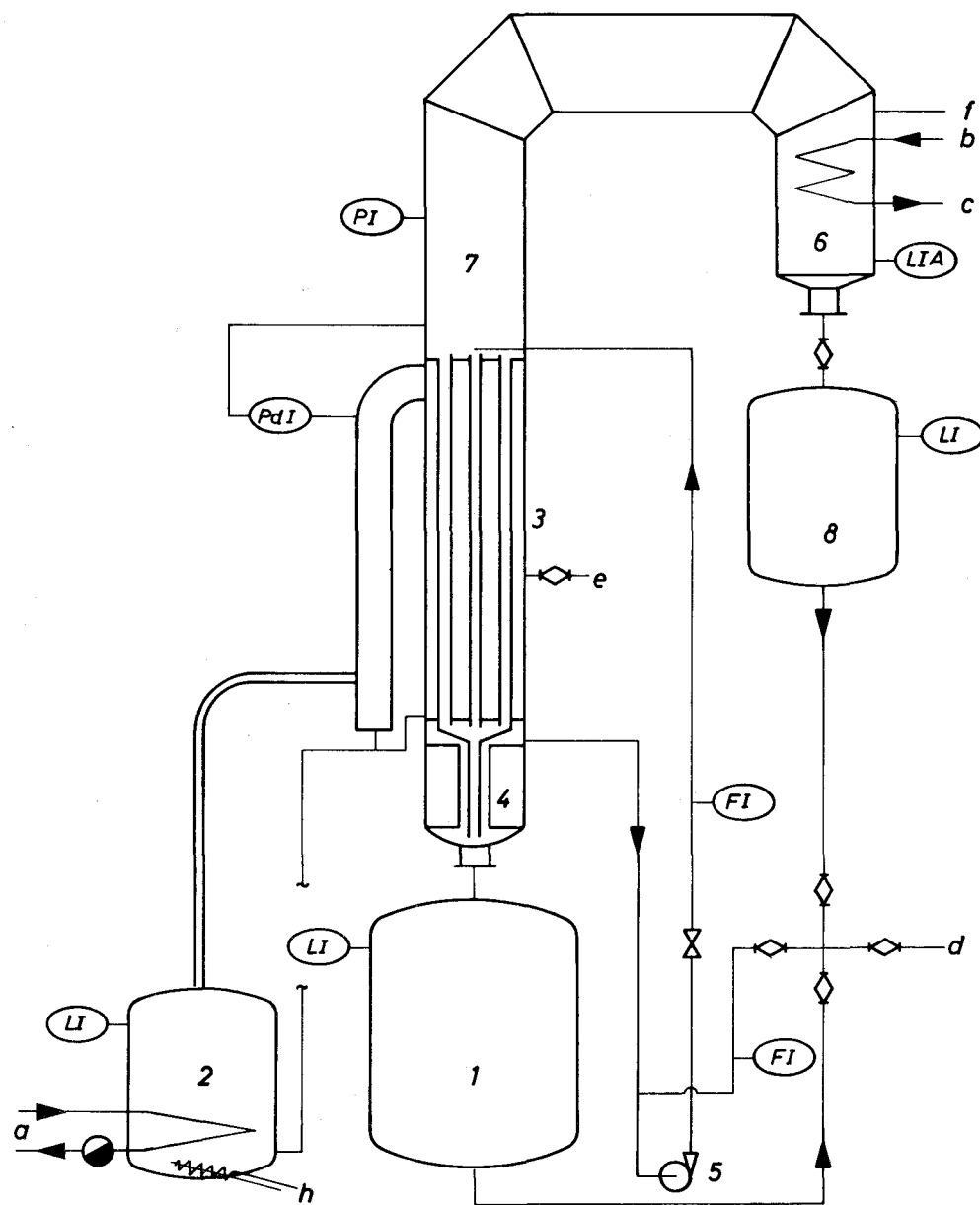


Abb. 3

Rieselfilmverdampfer

Bauteile

- | | |
|---|----------------------------------|
| 1 | Feed-Lagerbehälter |
| 2 | Vakuumdampf-Heizung |
| 3 | Rieselfilmverdampfer |
| 4 | Solescheider |
| 5 | Umwälzpumpe |
| 6 | Kondensator |
| 7 | Einbauten zur Tropfenabscheidung |
| 8 | Kondensatmeßbehälter |

Anschlüsse

- | | |
|---|-----------------------------|
| a | Heizdampf |
| b | Kühlwasserzulauf |
| c | Kühlwasserablauf |
| d | zum Kondensat-Lagerbehälter |
| e | Vakuumpumpe |
| f | Vakuumpumpe |
| g | Elektrische Heizung |

- | | |
|-----|---------------------------------|
| LI | Füllstandsanzeige |
| PI | Druckanzeige |
| FI | Durchflußanzeige |
| PdI | Differenzdruckanzeige |
| LIA | Füllstandsanzeige mit Hochalarm |

te Rohrzahl zwischen 1 und 7 einzustellen. Die Rohre haben einen Innendurchmesser von 70 mm und eine beheizte Länge von 1,5 m. Sie sind an beiden Enden in die Rohrböden eingeschweißt, und ihre Enden sind ausgedreht, damit verschiedene Aufgabeköpfe zur gleichmäßigen Flüssigkeitsverteilung eingesteckt werden können. Das Mantelrohr des Wärmetauschers hat einen Innendurchmesser von 390 mm.

Der Niederdruckheizdampf wird von einem Dampferzeuger geliefert, der seinerseits mit Hochdruckdampf beheizt wird. Er läßt sich so kontinuierlich regeln. Der Heizdampf wird zur Tropfenscheidung zunächst einem senkrechten Rohrteil am Verdampfer zugeführt und anschließend über einen Stutzen am oberen Verdampferende in den Heizraum zwischen Mantel und Verdampferrohren geleitet. Dort kondensiert er an der Außenseite der Verdampferrohre und läuft vom Unterteil des Verdampfers zusammen mit den im senkrechten Nebenrohr des Verdampfers abgeschiedenen Tropfen wieder zum Dampferzeuger zurück. Das Kondensat läuft dem Dampferzeuger mit einem der Höhendifferenz entsprechenden Druck zu und hält so den Druckverlusten in der Heizdampfleitung das Gleichgewicht. Auf diese Weise wird der Dampf durch den Wechsel von Verdampfung und Kondensation ohne Pumpe in Umlauf gehalten.

Die Lösung wird mit einer Pumpe zu den Aufgabeköpfen gefördert und rieselt von dort an den Innenwänden der Verdampferrohre nach unten. Die Flüssigkeitsverteilung in den Verdampferrohren kann mit einer Spiegelanlage von außen beobachtet werden.

Unter den Verdampfer ist ein Solescheider geflanscht, in dem der Durchlauf des Verdampfers zunächst mit einem Trichtersystem auf den Boden geleitet wird. Anschließend steigt die Sole im Ringraum außerhalb des Trichterrohres wieder hoch und wird am Kopf des Scheiders abgezogen und der Pumpe zugeleitet, welche die Sole vermischt mit frischem "Feed" den Aufgabeköpfen des Verdampfers zuführt. Durch diese Anordnung kann sich bei höherem Feststoffgehalt in der Vorkonzentratsole auskristallisiertes Salz absetzen und stört somit nicht den Förderprozeß der Pumpe und die Funktion der Aufgabeköpfe. Die aus der Produktverdampfung in den einzelnen Verdampferrohren entstehenden Brüden werden oberhalb der Aufgabeköpfe mit dem vollen Mantelrohrdurchmesser $d_1 = 390$ mm weitergeführt. Dieser Teil ist für Einbauten zur zusätzlichen Tropfabscheidung vorgesehen.

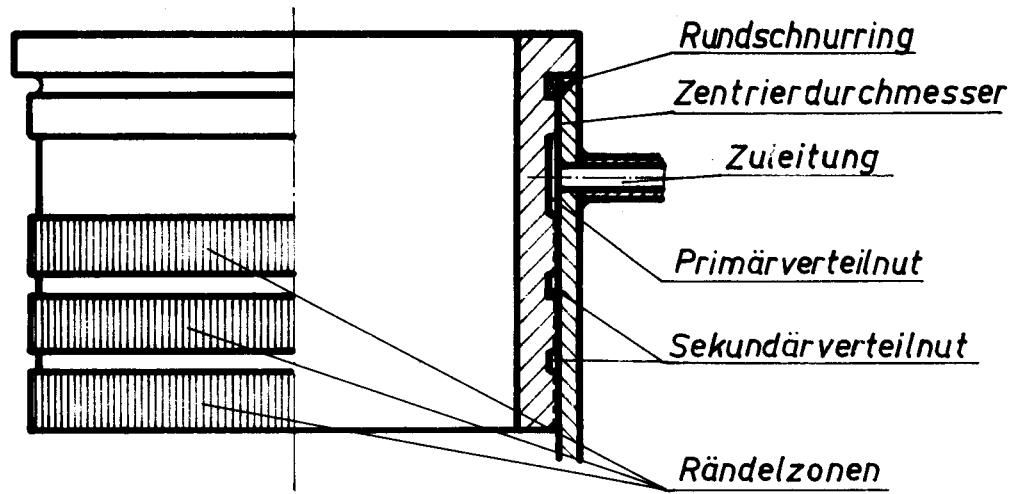
Über zwei Rohrkrümmer schließt sich bei gleichem Durchmesser das Kondensatgehäuse an, welches im oberen Teil eine auswechselbare kegelig gewickelte Rohrschlange enthält, an der sich der Dampf niederschlagen kann. Im darunterliegenden Teil des Gehäuses können ca. 50 l Kondensat gespeichert werden. Das Kondensat läßt sich alternativ in den Kondensatmeßbehälter oder direkt in den Feedbehälter zurückspeisen.

2

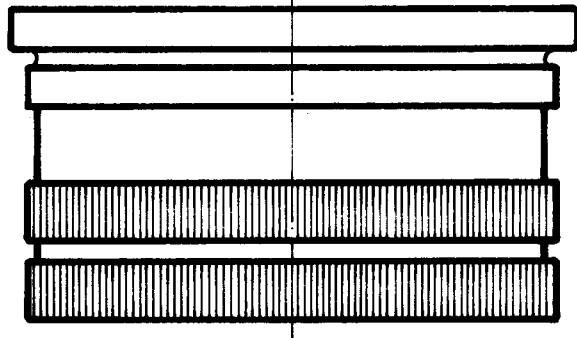
Vorversuche

Zunächst wurde die Verwendbarkeit verschiedener Aufgabeköpfe erprobt. Dazu wurde die Aufgabemenge verändert und die jeweilige Flüssigkeitsverteilung sowie der Druckverlust festgestellt. Nachdem Versuche mit glatten Aufgabeköpfen und solchen mit Drallnut gemacht worden waren, ergab schließlich eine Ausbildung

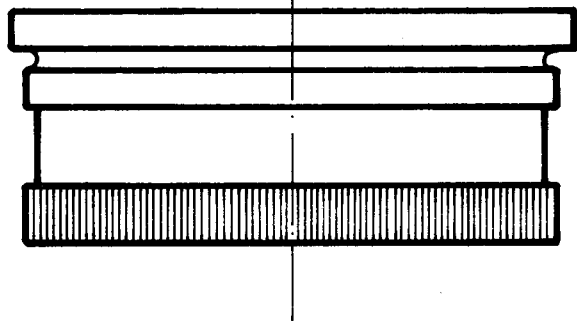
a) Versuchskopf mit 3 Rändelzonen



b) Versuchskopf mit 2 Rändelzonen



c) Versuchskopf mit 1 Rändelzone



Verteilerkopf mit breiter Rändelzone im 1 Rohrversuch

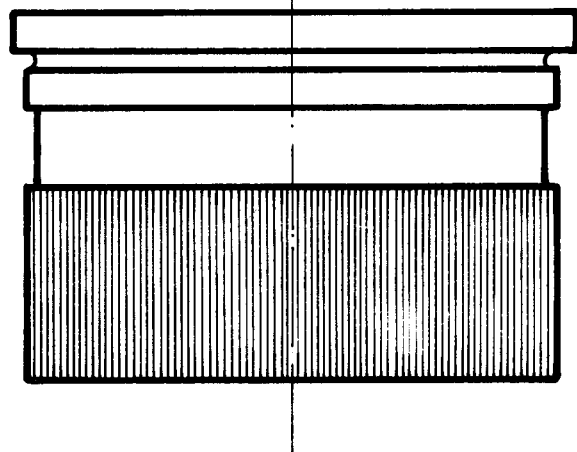


Abb. 5

Aufgabeköpfe des Verdampfers

mit einer Art Rändelung (Abb. 5) einen gleichmäßigen eindimensionalen Film bei geringer Umlaufmenge. Daran anschließend mußten die Bereiche für die Verdampfungstemperaturen, Temperaturdifferenzen und Feststoffkonzentrationen, in denen die Verdampfung einwandfrei abläuft, festgestellt und untersucht werden.

Die Vorversuche wurden zunächst mit einem der 7 Verdampferrohre durchgeführt, um von Störungen durch ungleiche Verteilung der Flüssigkeit auf mehrere Rohre unabhängig zu sein. Mit diesem Teilsystem wurden 38 Versuchsreihen zur Ermittlung der Verdampferleistung bei verschiedenen Temperaturen, Temperaturdifferenzen und Konzentrationen gefahren. Je Versuchsreihe wurden 6 bis 8 Meßpunkte mit gleichmäßig veränderten Temperaturdifferenzen ermittelt. Die Temperaturdifferenz, die den Verdampfungsprozeß als wichtigste Einflußgröße bestimmt, wurde dabei durch Änderung der Heizdampf-temperatur bei annähernd gleicher Verdampfungstemperatur vorgegeben. Die Temperaturdifferenz wurde vorerst durch Messung des Verdampferdruckes und der Druckdifferenz zum Heizdampf bestimmt. Im Verdampfungstemperaturbereich von 30° bis 40° C entspricht dabei eine Temperaturdifferenz von 1° C einer Druckdifferenz von etwa 1 - 3 Torr.

Die Versuche ergaben ein starkes Absinken des Wärmeübergangskoeffizienten bei Temperaturdifferenzen $>8^{\circ}$ C. Die Kondensatleistung nimmt kaum mehr zu. Andererseits sind bei guten Wärmeübergangskoeffizienten und geringen Temperaturdifferenzen die Kondensatleistungen so gering, daß der erhöhte Aufwand an Verdampferfläche durch die Energieeinsparung nicht mehr ausgeglichen wird (Abb. 6).

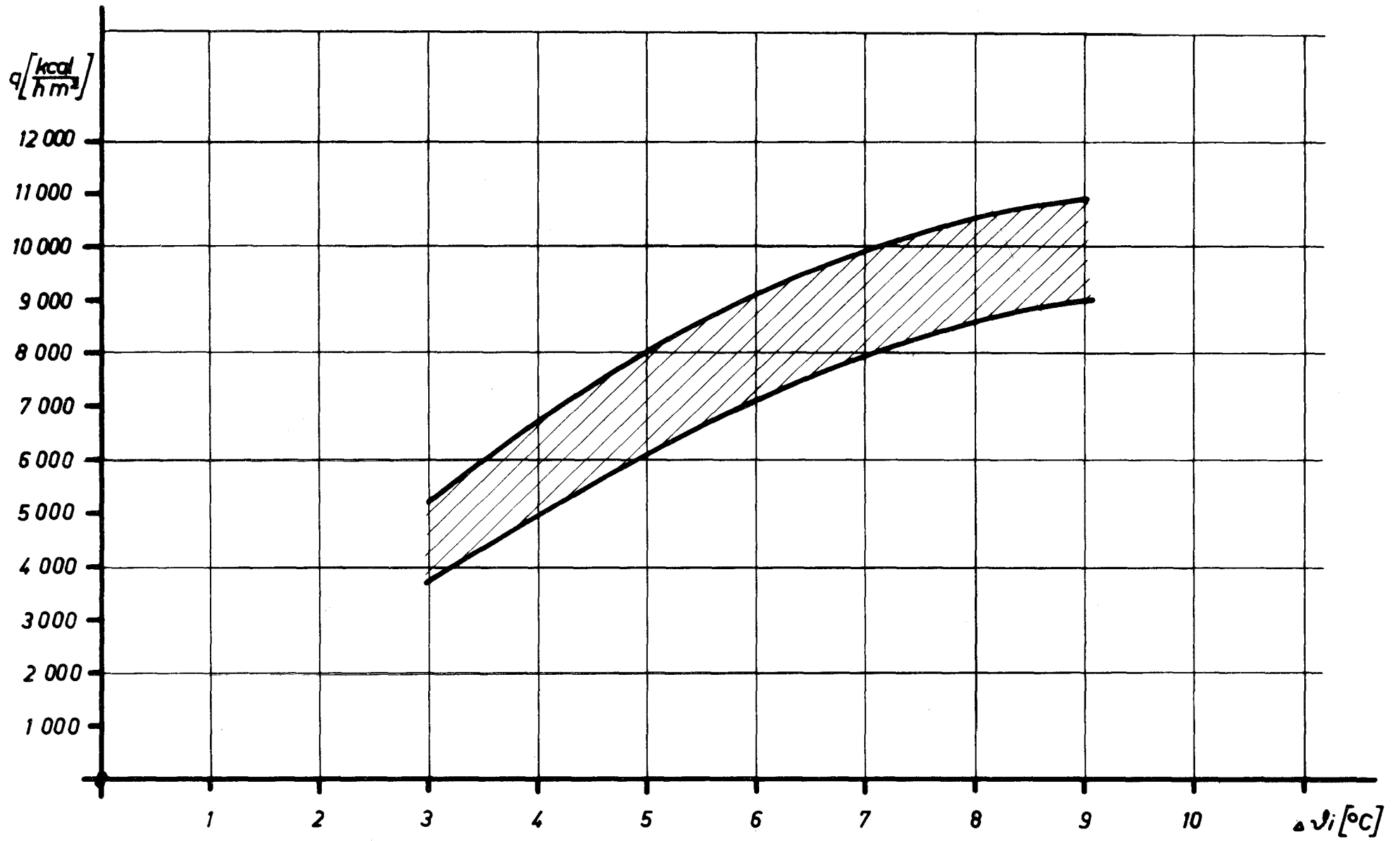


Abb. 6

Einrohrverdampferversuch

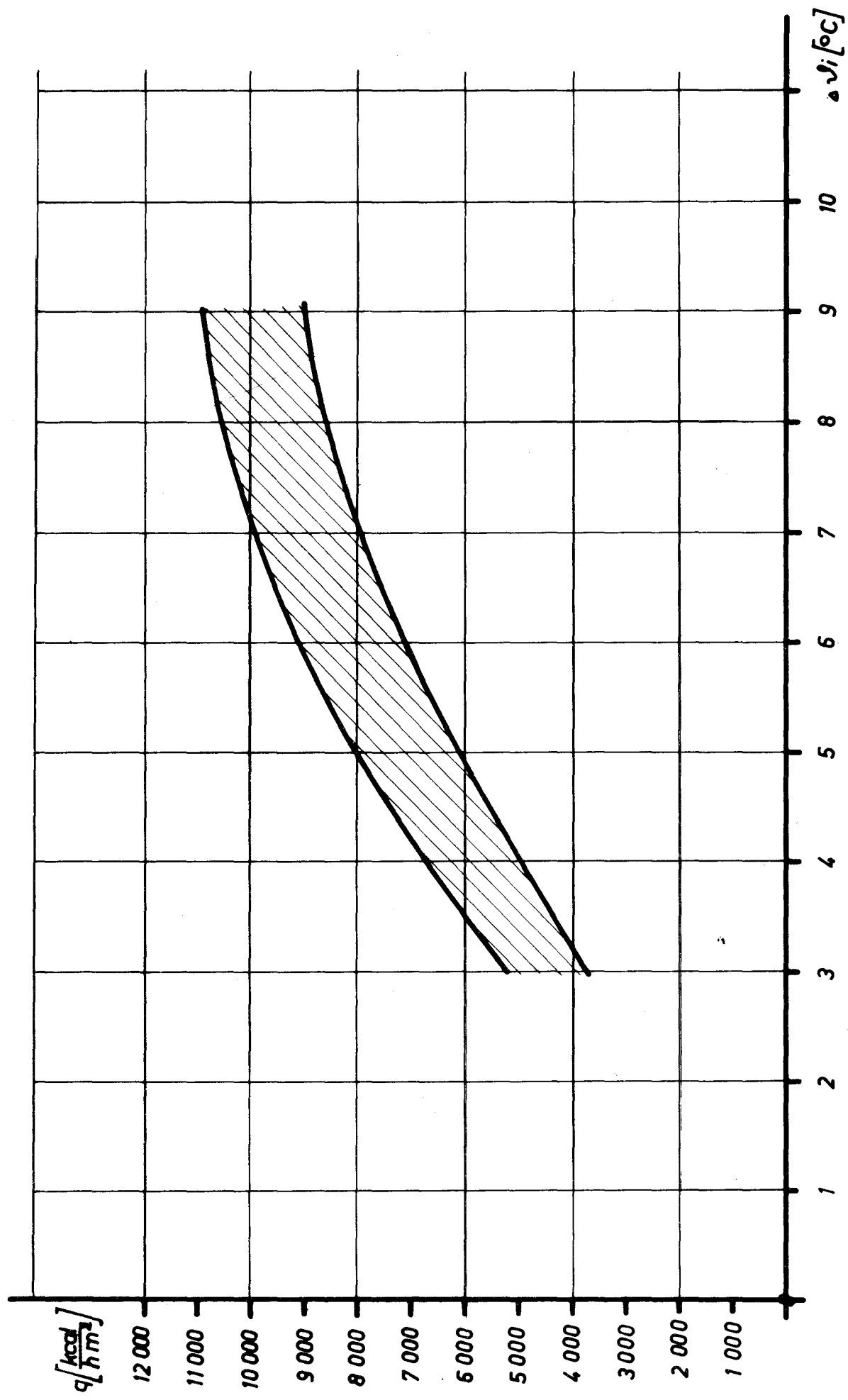


Abb. 6
Einrohrverdampfersuch

Für die weiteren Versuche sollte das Optimum bei ca. 6 bis 8 °C Temperaturdifferenz durch Messungen zwischen 4 und 10 °C eingekreist werden. Die Verdampfungstemperaturen von ca. 30 bis 40 °C sind durch die Temperatur des Kühlwassers und die eventuell aus der Kältemaschine zu gewinnende Abwärme vorgegeben. Es wird somit im Bereich von 20 bis 50 °C gearbeitet.

Bei Parallelbetrieb mehrerer Rohre mit einer Pumpe ist eine gleichmäßige Verteilung der Flüssigkeit auf alle Rohre und eine gute Verteilung auf den gesamten Rohrumfang besonders wichtig. Im Gegensatz zum Einrohrbetrieb baut hier die Flüssigkeit keinen Druck auf, sondern weicht auf andere Rohre aus. Zur optimalen Abstimmung wurden bei offenem Verdampfer eine Reihe von weiteren Vorversuchen vorgenommen. Dabei wurden statt der Aufgabeköpfe mit breiter Rändelverteilszone, die beim Einrohrversuch benutzt wurden, eine Anordnung mit einer und mehreren schmalen Rändelzonen und dazwischenliegenden Sekundär-Verteilnuten gewählt. Die jeweiligen Rohrgruppen (Abb. 4) wurden durch Nacharbeiten der Nuten und der Rändelzonen so verändert, daß jeder Kopf bei gleichem Druckabfall die gleiche Aufgabemenge lieferte. Anschließend wurde durch Einsetzen von Drosselventilen in die Zuleitungen der Zwei-Kopf-Gruppe und des einzelnen Rohres die Gruppen untereinander ausgeglichen.

Für die jeweilige Kopfform wurden Aufgabemengen bestimmt:

- Erforderliche Mindestmenge zur vollständigen Bedeckung eines trockenen Verdampferrohres

- Erforderliche Mindestmenge zum Aufrechterhalten eines Flüssigkeitsfilms

Gleichzeitig wurde der Druckabfall pro Kopf in Abhängigkeit von der Aufgabemenge gemessen.

3

Versuchsdurchführung

In weiteren Versuchen wurden Temperaturdifferenz, Verdampfungstemperatur, Heizwassertemperatur, Umlaufmenge sowie Aufenthaltsmenge und Laufzeit beim Anfall von je 1 Liter Kondensat gemessen. Aus der zeitlichen Kondensatmenge K [l/h] wurde die Wärmestromdichte q [$\text{kcal}/\text{m}^2 \cdot \text{h}$] ermittelt. Über die Beziehung für den Temperaturabfall durch Heizdampfkondensation und Wärmeleitung in der Wand ($\Delta \dot{J}_i = \Delta \dot{J}_{\text{sw}} - \Delta \dot{J}_K$) wurde die eigentliche verdampfungsseitige Temperaturdifferenz $\Delta \dot{J}_i$ ermittelt. Für Optimierungen war es wichtig, $\Delta \dot{J}_i$ zu kennen, da sich $\Delta \dot{J}_K$ durch konstruktive Maßnahmen beeinflussen läßt.

Zunächst wurden Versuche gefahren, um die Abhängigkeit der Kondensatleistung von Temperaturdifferenz und Verdampfungstemperatur zu ermitteln. Die Konzentration der Feedlösung wurde bis 150 g/l NaNO_3 variiert.

Weitere Versuche wurden zum Bestimmen der Kondensatleistung in Abhängigkeit von der Konzentration der Aufgabeflüssigkeit bei verschiedenen Verdampfungstemperaturen und Temperaturdifferenzen durchgeführt. Fünf Versuche wurden zum Bestimmen der Leistungsabhängigkeit von der Aufgabemenge bei $\dot{J}_v = 35 [^\circ\text{C}]$, $\Delta \dot{J} = 7 [^\circ\text{C}]$ also bei mittlerer Verdampfungstemperatur und Temperaturdifferenz vorgenommen.

Die Abhängigkeit des Dekontaminationsfaktors von Leistung und Feststoffkonzentration wurde in mehreren Versuchen nach der unter Abschnitt I, 7.1 erwähnten konventionellen Methode bestimmt.

Fehlermöglichkeiten sind bei der Versuchsdurchführung vor allem durch unvollständige Bedeckung der Rohrwand mit Flüssigkeit gegeben. Dadurch wird die aktive Verdampfungsfläche reduziert. Diese Möglichkeit wurde bei der Auswertung der Ergebnisse berücksichtigt.

Eine Verkrustung war nicht festzustellen, doch wiesen die Wände teilweise einen braunen Belag auf, dessen Stärke nach Augenschein auf einige μ geschätzt wird. Da der Wärmedurchgang durch Schichten ab 40 bis 50 μ merklich behindert wird, muß dieser Effekt im Dauerbetrieb weiter untersucht werden. Bei Reinigungsversuchen wurde für das mittlere Rohr Salpetersäure angewendet. Spätere Reinigungen wurden mit Ameisensäure vorgenommen, wodurch besonders Ablagerungen in den Glasteilen der Anlage (Rotameter und Schaugläser) beseitigt wurden. An den Aufgabeköpfen zeigten sich durch diese Behandlung Korrosionserscheinungen, obwohl die Köpfe vernickelt waren. Es wurde darauf ein weiterer verchromter Satz hergestellt und abgeglichen.

Während der Versuchsdurchführung wurden Trockenläufe herbeigeführt, um Methoden zur Beseitigung dieser Störung in späterem Betrieb zu entwickeln. Trockenlauf, verursacht durch Ansammeln von kleinsten Teilchen im Aufgabekopf, konnte durch stoßweises Beaufschlagen mit 3fach größeren Flüssigkeitsmengen behoben werden. Trockenlauf durch Festsetzen größerer Teilchen im Aufgabekopf (Korrosionsprodukte) erforderte längeres Spülen mit Säuren. Gleichzeitig werden dadurch Verkrustungen auf der Verdampferfläche beseitigt.

4

Versuchsergebnisse

Die Ergebnisse der Versuche (Temperaturen, Kondensatmengen, Konzentrationen und Dekontaminationsfaktoren) wurden gemessen und ausgewertet.

Der heizdampfseitige Wärmeübergangskoeffizient wird für mittlere Temperaturwerte gebildet. Seine Abhängigkeit von Temperaturdifferenz und Temperatur ist gering. Er wird gemeinsam mit dem Wärmedurchgangskoeffizienten durch die Rohrwand, λ/δ , zu einer auf die Rohrinnefläche bezogenen Wärmedurchgangszahl k zusammengefaßt. Hiermit errechnet sich die reine verdampfungsseitige Temperaturdifferenz $\Delta \mathcal{V}_i$ und der Wärmeübergangskoeffizient α_i .

Diese Einzelauswertungen werden miteinander zu den geglätteten Kurven in den Diagrammen 7 bis 10 vereinigt.

Die ersten drei Diagramme sind gemeinsam zu betrachten. $\Delta \mathcal{V}_i$, \mathcal{V}_v und q stellen drei Variable dar, von denen jeweils zwei in einem Versuch vorgegeben sind. Die dritte Variable stellt sich abhängig von den vorgegebenen Größen ein. Dieser Zusammenhang kann räumlich als gekrümmte Fläche in einem Achsenkreuz mit $\Delta \mathcal{V}_i$ als Grundflächen-, q als Höhenkoordinate gedeutet werden. Die drei Diagramme stellen aquidistante Längs-, Quer- und Höhenschnitte durch dieses System dar.

In Abb. 7 verläuft die Zunahme der Werte für q zunächst proportional mit $\Delta \mathcal{V}_i$ und flacht bei Temperaturdifferenzen von mehr als 6 bis 7 ° merklich ab. Daraus kann man schließen, daß beim Rieselfilm kurz vor dem Beginn der intensiven Blasenverdampfung durch Oberflächenspannungseffekte ein Wärmestau auftritt.

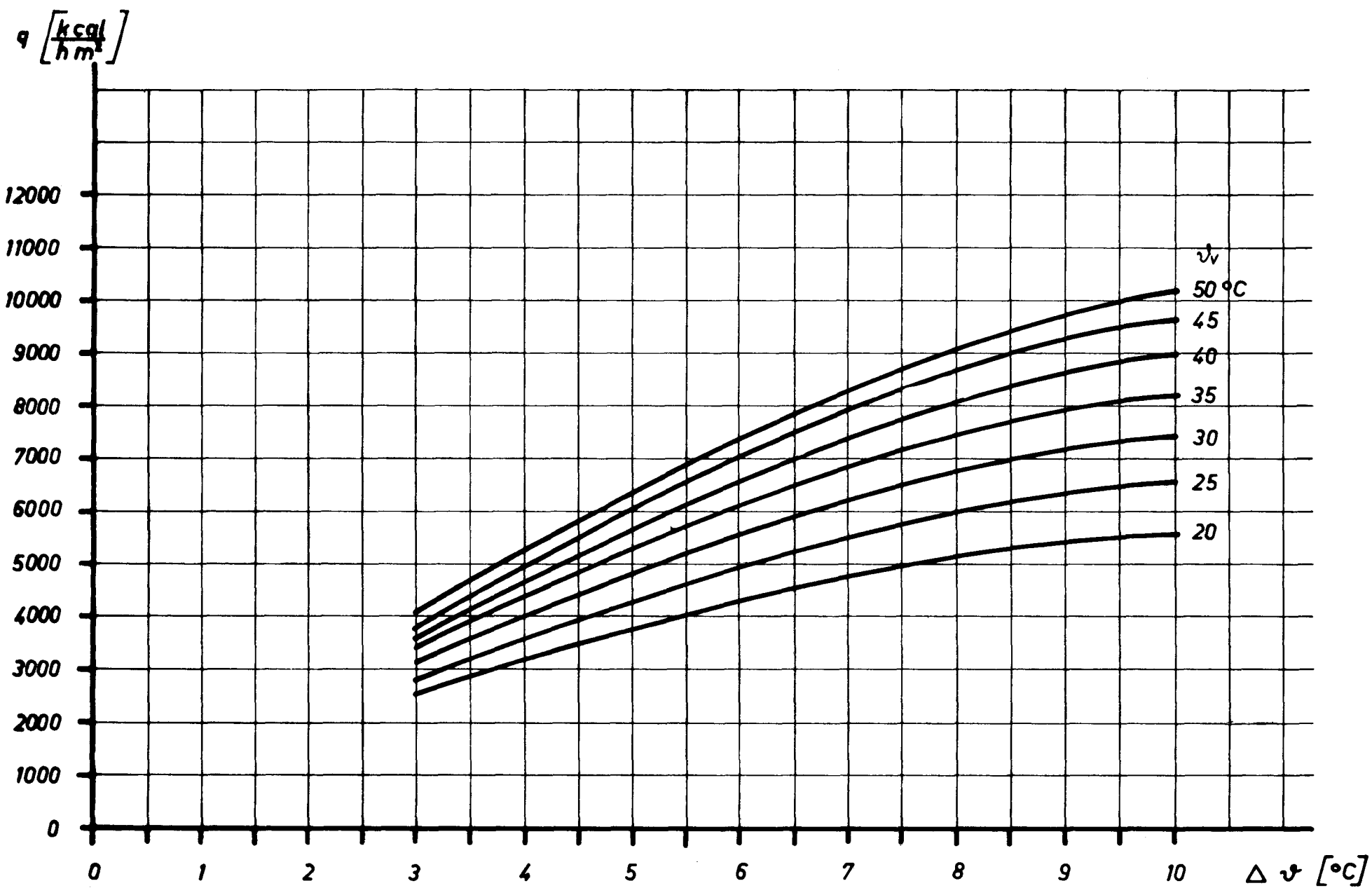


Abb. 7

Verdampferversuche
Wärmestromdichte über Temperaturdifferenz

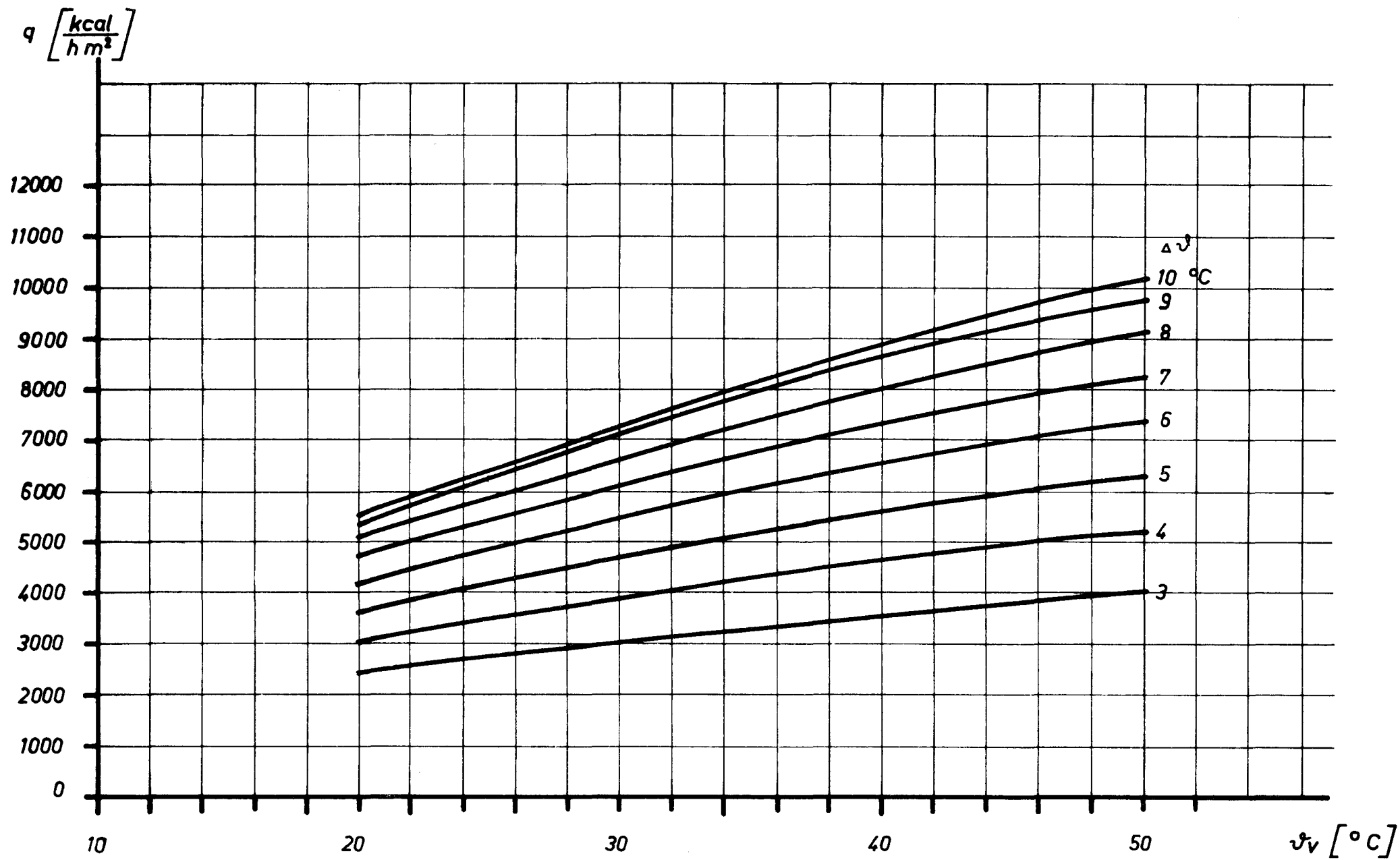


Abb. 8

Verdampferversuche
 Wärmestromdichte über Verdampfungstemperatur

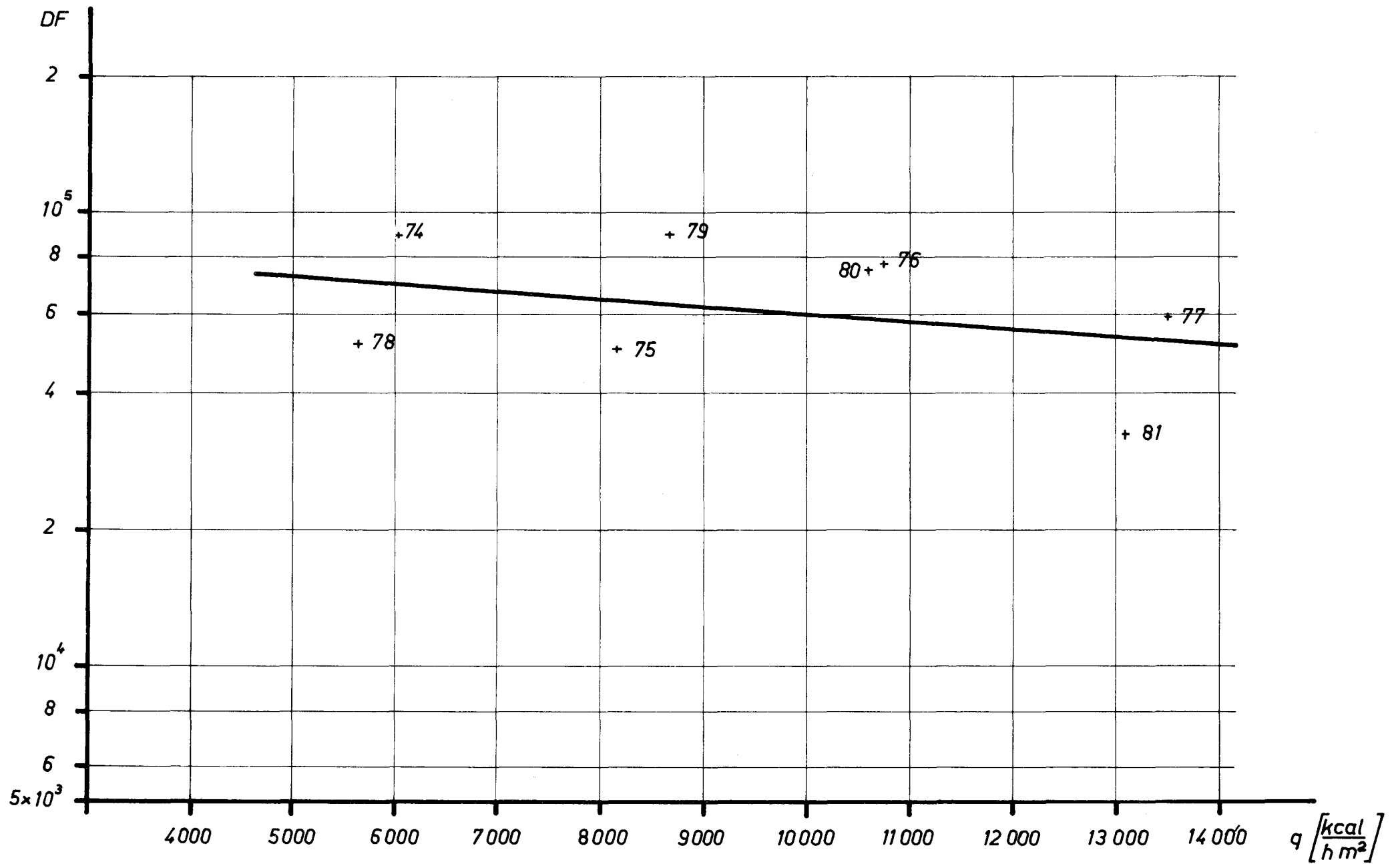


Abb. 11

Verdampferversuche
 Dekontaminationsfaktoren

In Abb. 8 ist die Verbesserung des Wärmeübergangs mit steigender Temperatur besonders auf die abnehmende Viskosität der Flüssigkeit zurückzuführen. Die Abhängigkeit ist im betrachteten Bereich fast linear.

Die Darstellung in Abb. 9 ist als Ergebnis der Variation der beiden vorgenannten Größen zu sehen. Die eingezeichneten Kurven stellen Linien gleicher Wärmestromdichte dar. Diese Darstellung ist zum Auslegen mehrstufiger Verdampfersysteme notwendig, die pro Stufe den gleichen Wärmeumsatz und bei gleichen Flächen auch gleiche Wärmestromdichte besitzen.

Abb. 10 zeigt eine erst langsame und dann stärkere Abnahme der Wärmestromdichte mit zunehmender Feststoffkonzentration in der Lösung. Dabei sind 5 Zuordnungen von Verdampfertemperaturen und Temperaturdifferenzen festgehalten. Im oben beschriebenen 3dimensionalen Modell ist die Konzentrationsabhängigkeit der Wärmestromdichte als Übereinanderschichtung verschiedener Flächen von q über ΔT und T zu denken.

Die Streuung der Werte in Abb. 11 läßt den Verlauf der Kurve nicht sicher deuten, ein Absinken des DF mit steigendem q zeichnet sich jedoch ab. Dieser Effekt ist auf beginnende Blasenverdampfung und höhere Dampfgeschwindigkeiten zurückzuführen.

III

Einfrierversuche

Für das Einfrieren des Vorkonzentrates zu einem für die Gefriertrocknung geeigneten Produkt ergaben sich auf der Grundlage der theoretischen Überlegungen des

Punktes I. 4 eine Reihe möglicher Verfahren. Bei genauer Prüfung, zum Teil durch Vorversuche, mußte ein Teil dieser Verfahren eliminiert werden, da sie entweder zu großen apparativen Aufwand erforderten oder für eine Arbeit mit aktiven Stoffen ungeeignet waren. Erfolgversprechend erschienen vier Verfahren, die im folgenden beschrieben werden.

1 Sprüheisverfahren:

Beim Sprüheisverfahren dient ein Gas als Zwischenträger für den Wärmeentzug. Die Flüssigkeit schwebt in Tröpfchenform in dem aufsteigenden Gasstrom und wird so zu einem rieselfähigen Gut eingefroren. Das Verfahren eignet sich besonders zur kontinuierlichen Trocknung.

1.1 Umlauf-Sprüheisapparatur

1.1.1 Versuchsaufbau

Aus Abb. 12 geht der Aufbau der Anlage hervor. Der Luftstrom durch das Reaktionsrohr mit Fenster läuft durch den oberen Krümmer und ein Formstück tangential in ein spiralförmiges Abscheidergehäuse, aus dessen innerem Kern ein Radialgebläse saugt. Das Spiralgehäuse des Gebläses führt über einen Krümmer auf ein Vierkantrohr, in dem der Rückkühler, ein Flossenrohr-Frigenverdampfer, eingebaut ist. Von dort strömt die Luft durch den unteren Krümmer mit ebenfalls quadratischem Querschnitt über ein Reduktionsstück (vierkant auf rund) wieder dem Reaktionsrohr zu. Unter dem Flossenkühlerrohr wird Luft durch

ein weiteres Gebläse abzweigt, dessen Druckseite mit einem Ringraum verbunden ist, der das eigentliche Reaktionsrohr umschließt. Auf diese Weise wird eine zusätzliche Beeinflussung der Strömung durch von außen in das Reaktionsrohr eingespeiste Luft möglich.

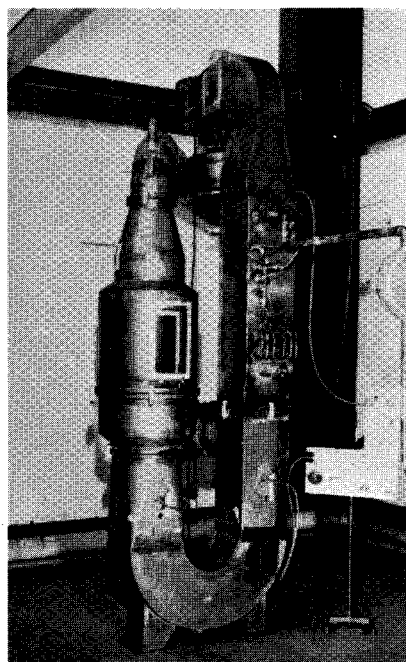


Abb. 12 Sprüheisapparatur

Als Nutzwärmeumsatz der Anlage wurden der Auslegung 300 kcal/h zugrunde gelegt, während die Rückkühlanlage auf 600 kcal/h ausgelegt ist. Als Nebenwärme fällt das Äquivalent der Gebläseleistung (ca. 120 kcal/h) und die über der Oberfläche eindringende Wärme an. Der Temperatursprung beträgt hier 70°C (von $+20$ auf -50°), die Oberfläche ca. 4 m^2 . Für 180 kcal/h kann danach ein k-Wert von $0,63\text{ Kcal/m}^2 \cdot \text{h} \cdot ^{\circ}\text{C}$ zugelassen werden. Die erforderliche Isolation wird durch eine Styroporschicht ($\lambda = 0,028\text{ kcal/h} \cdot \text{m} \cdot ^{\circ}\text{C}$) von 50 mm Dicke erzielt.

1.1.2 Versuchsdurchführung

Das Hauptproblem des Sprüheinfrierens besteht in der Überführung der Flüssigkeit in Tropfen möglichst einheitlicher Größe, um ein gleichförmiges Schweben im Luftstrom zu erreichen. Außerdem waren für den späteren Gefriertrockenschritt möglichst große Tropfen - der Grenzdurchmesser für Wassertropfen im Luftstrom beträgt etwa 4 mm - interessant.

Es wurden daher Vorversuche mit verschiedenen Sprühdüsen angestellt und schließlich ein Düsensystem mit frei rotierendem Innenkörper gewählt.

Die Düse muß wegen der angestrebten großen Tröpfchen wesentlich unter dem Auslegungsdruck betrieben werden. Damit dabei der Sprühvorgang nicht instabil verlief, wurden Innenkörper aus leichtem Material mit unterschiedlichen Durchtrittskerben gefertigt und erprobt. In ersten Versuchen wurden im Abscheidetrichter nur geringe Mengen Eisstaub gefunden, der entsprechend der zu feinen Zerstäubung aus Kügelchen von 0,2 mm Durchmesser bestand. Ein Mengenvergleich ergab, daß sich der größte Teil der eingespritzten Menge an anderen Stellen der Anlage abgesetzt hatte. Ein stufenweiser Ausbau des Abscheiders von einer einfachen Wirbelsenke zu einem Zyklon verbesserte deutlich den Abscheidegrad.

Mehrere Veränderungen der Strömung durch Einbauten im Reaktionsrohr wurden untersucht. Parallel wurde das Ziel verfolgt, Tropfen von der angestrebten Größe von $>0,5$ mm Durchmesser einzufrieren.

Im unteren Drittel des Reaktionsrohres wurde zunächst ein Einbau nach Art einer Venturidüse vorgenommen, mit deren Hilfe ein Durchschlagen größerer Tropfen in den unteren Bogen verhindert werden sollte. Es zeigte sich, daß eine solche Anordnung den Zweck nur teilweise erfüllt und nur das Anschlagen der Tropfen in den Erweiterungskonus oberhalb der engsten Stelle der Venturidüse verlagert. Außerdem entwich ein Teil der Partikel in die Schlitze der Zweitluftführung.

Nach dem darauf vorgenommenen Einbau eines auf der gesamten Länge verengten Reaktionsrohres mit Steildrallschlitzten, konnte ein Hochreißen der Tropfen durch die Strömung erreicht werden. Diese Form der Luftführung konnte jedoch ein Ansetzen von Eis an der Reaktionsrohrwand nicht merklich verhindern. Daher wurde eine Zone des Rohres, in der am stärksten mit Eisbelag zu rechnen war (durch Vorversuche bestimmt), mit einer Reihe ringförmiger Schlitze versehen.

Der Abscheidegrad für die 0,2 mm Partikeln wurde auf 60 bis 70 % erhöht. Die Menge der im Abscheider gefundenen Körner der Größenordnung um 0,5 mm Durchmesser vergrößerte sich, war aber im Vergleich zu den erwarteten Durchsätzen für einen sinnvollen Betrieb noch zu klein. Die Tropfen der mittleren Klasse stiegen nach verzögerter Abwärtsbewegung rapide beschleunigt auf, schlugen größtenteils im oberen Umlenkbogen an die Wand und froren dort an. Diese Störung kann wie folgt erklärt werden:

Die Sprühdüsen konnten nur ein verhältnismäßig breit gestreutes Band von Tropfengrößen erzeugen. Wenn die größten Partikeln von der Strömung gerade in Schwebelage gehalten oder langsam nach oben aus dem Reaktionsrohr ausgetragen werden, fliegen kleinere Tropfen sehr schnell nach oben. Die Geschwindigkeit nimmt wegen der Abhängigkeit $C_T = W_L - W_S$, in der C_T die Transport-, W_L die Luftstrom- und W_S die Schwebegeschwindigkeit darstellen, mit abnehmendem Durchmesser wesentlich schneller zu als die annähernd durchmesserproportionale Einfrierzeit abnimmt. Als Konsequenz folgt die Notwendigkeit einer Reaktionsrohr-Verlängerung. Ein entsprechender Aufsatz auf die Anlage wurde gebaut, kam aber nicht mehr zum Einsatz.

Um ein Durchschlagen von großen Tropfen in den unteren Umlenkbogen zu verhindern, ohne die Strömungsgeschwindigkeit im Reaktionsrohr zu stark zu vergrößern, wurde das untere Ende des Reaktionsrohres als Kegel ausgebildet. Eine Stufung von konzentrischen Zylinderringen mit umgebördeltem Rand ermöglichte die Zweitluftspeisung in den Kegelraum. Die Bildung von kleinen Abreißwirbeln hinter den Bördelkanten der Ringe erforderte eine weitere Variation der Kegelform. Hierbei wird der Kegel aus Ringen eines aufgeschnittenen Blechkonus aufgebaut. Zwischen den Ringen werden durch Abstandsstücke Schlitze offengehalten, durch welche die Zweitluft strömt.

Die heftigen Partikelbewegungen im Kegel wiesen auf eine über den Querschnitt ungleichmäßige Strömungsverteilung hin. Durch Ausmessen der Strömungsverteilung und Einbau eines Strömungsrichters, bestehend

aus einem Gitter und zwei Kegeln sowie weiterer Leitschaufeln in den unteren Umlenkbogen, konnte diese Verteilung ausgeglichen werden. Dieser Ausgleich ist jeweils nur für eine bestimmte Strömungsgeschwindigkeit wirksam.

1.1.3 Versuchsergebnisse und Folgerungen

Mit Hilfe der letztgenannten Einbauten konnten einige Körnchen mit 0,8 bis 1 mm Durchmesser erzeugt werden, die sich durch intermittierende Drosselung der Luftströmung im unteren Umlenkbogen abschieden. Bei den begrenzten Dimensionen einer Versuchsanlage erscheint der Kegel als die geeignete Form für den Reaktionsraum. In gleichmäßiger Strömung könnten in diesem Raum Partikeln verschiedener Größe in Schwebelage gehalten werden. Die kleinen Teilchen schweben wegen der in Aufwärtsrichtung abnehmenden Luftgeschwindigkeit oben, während sich die größeren unten aufhalten. Bei kurzzeitiger Strömungsdrosselung fallen sie nach unten aus. Der Feinanteil muß solange in Schwebelage gehalten werden, bis sich die Teilchen durch Zusammenfrieren mit frischen Tropfen vergrößern. Es ergäbe sich dann ein den Anforderungen des Gefriertrockenprozesses entsprechendes Gut.

Zur Beherrschung der Strömung ist die einseitige Führung des Luftstroms in der Umlaufeinheit nicht geeignet. Die Einrichtung zum Erproben geeigneter Reaktionskegel sollte daher konzentrisch mit außenliegendem Umluftstrom aufgebaut sein. Die Flossenrohrkühler sind gleichmäßig auf den Umfang zu verteilen.

1.2 Konzentrische Sprüheisapparatur

1.2.1 Vorversuche

Der Außenaufbau der Anlage ist achteckig, um fertigungstechnischen Schwierigkeiten besonders bei der Isolierung zu begegnen. Am Kopf trägt die Anlage das Hauptgebläse, das wegen der Vorteile einer steilen Kennlinie als Radialgebläse ausgeführt wurde. Es saugt aus dem oberen zylindrischen Ansatzstück des Reaktionsraumes mit Unterstützung eines Saugtrichters, der einer Düseneinrundung entspricht. Mitgerissene Feststoffteilchen (Eisstaub) werden gegen die Gehäusewand geschleudert, in der Fangrinne und unter Umgehen der Flossenkühler wieder zugespeist. Dadurch erhalten diese Partikeln bessere Gelegenheit, sich anderen Teilchen anzulagern und damit die erforderliche Größe zu erreichen.

Das Zylinderrohr zur Aufnahme des Reaktionskegels begrenzt nach innen den Ringraum, in dem die Flossenrohrkühler angeordnet sind. Die rückgekühlte Luft strömt nach unten, wo durch einen oder mehrere Ventilatoren ein Teil davon in das Innere des oben beschriebenen Zylinderrohres und damit in einem besonderen Druckraum um den Reaktionskörper gefördert wird. Der restliche Luftstrom wird im unteren Teil umgelenkt und strömt aufsteigend durch das Innere des Reaktionskegels. Eine Auffangschale auf dem Boden der Anlage kann soweit gehoben werden, daß der Hauptluftstrom gedrosselt wird und Partikeln einer gewünschten Größe nach unten in die Schale fallen.

Zur Ermittlung der Abmessungen des Reaktionskegels wurden verschiedene offene Modelle ohne eigene Rückkühlung gebaut. An solchen Modellen können die strömungstechnischen Gegebenheiten mit Prüfkörpern gleicher aerodynamischer Eigenschaften wie jener der erwarteten Tropfen gut beobachtet werden. Die Gefrier-eigenschaften der Anlage wurden anschließend in der Kältekammer unseres Hauses getestet. Sie ist bis unter -50° C zu kühlen und entspricht somit den erforderlichen Eigenschaften. Der wegen Einbeziehung der Raumkühlung offene Kreislauf ermöglicht eine Versuchseinrichtung mit entweder saugender oder drückender Gebläseanordnung.

1.2.1.1 Modell I

Ein freistehendes Modell wurde gebaut, an dessen oberem Ende des Reaktionsrohres das Gebläse saugend angeordnet ist. Der Trichter ist aus 10 Einzelschüssen

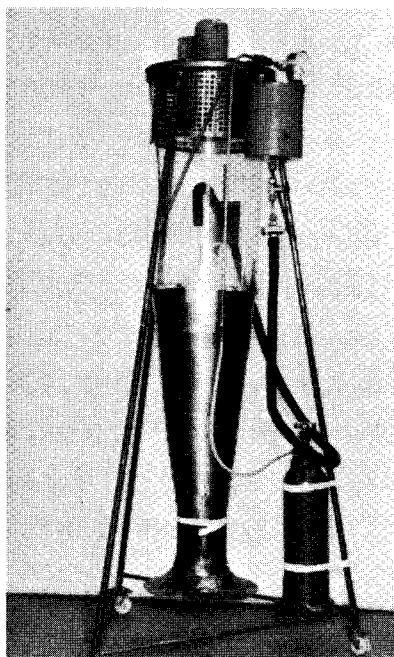


Abb. 13 Konzentrische Sprüheisapparatur Modell I

aufgebaut, die mit Drahtklammern auf Abstand von jeweils ca. 2,5 mm Weite gehalten werden.

Bei Versuchen mit Plastikgranulat war ein Schweben im freien Raum jeweils für einige Sekunden zu erreichen. Beim Kühlraumtest ergaben sich jedoch nur wenige Eiskörnchen. Sowohl beim Granulatversuch als auch beim Kühlraumbetrieb setzten sich Partikeln in den Schlitzen ab.

1.2.1.2 Modell II

Nach den Erkenntnissen aus der 1. Anlage wurde das 2. Modell modifiziert. Der Kegel wurde nur noch aus fünf Schüssen aufgebaut. Jeder Schuß wurde durch Einstecken in ein Blech mit entsprechendem Ausschnitt stabilisiert. Die quadratischen Stützbleche wurden an den 4 Ecken durch Führungsstangen und Distanzstücke befestigt. So entstand ein stabiles Paket, in dem die Ringschlitze zwischen den Kegeln durch geringe Nacharbeit eingestellt werden konnten. Drei Seiten des Blechpaketes sind von einer Wand umschlossen, während auf der 4. Seite der Luftstrom durch 5 Schieber geregelt werden kann. Um die Einzelluftmenge besser verteilen zu können, wurde das Gebläse druckseitig an einen Verteilkanal angeschlossen. Durch eine Regelklappe war es möglich, die Luftanteile vorzugeben, die in die Schlitzräume bzw. in den unter dem Kegel liegenden Druckraum strömten. Aus diesem wurde ein Luftstrahl, geformt durch eine aufsteckbare Düse, auf den unteren Kegelmund gerichtet.

Die ersten Versuche mit dieser Einheit waren erfolgversprechend, doch erwies es sich als nützlich, den Kegel innen mit einem Drahtnetz auszukleiden und so die Schlitzströmung gleichmäßig auf die gesamte Kegelmantelfläche zu verteilen. Die Luftströmung hielt nach dem Ergebnis der Granulatversuche auch Teilchen mit einer Abmessung von 2 bis 3 mm in Schwebelage (Tabelle 1).

Tabelle 1 Schweberversuche mit Prüfkörpern ($\gamma = 1,2$)

Parti- kelform	d mm	l mm	w m/sec.	Klappen- stellg.	Schieber geöffnet (t=teilw.)	Blas- düse	Bemerkungen
Zylinder	2	3	7	3/4	1;2;3t	eng	häufige Wand- berührung
Zylinder	1,5	2,5	5	3/4	1;2;3t	eng	Auswurf nach oben
Zylinder	1,5	2,5	4,5	1/2	1;2;3t	eng	gutes Schweben
Bruch (Gries)	0,8	0,8	3,5	1/2	1;2;3;4t	weit	wenig Wandbe- rührung
Kugeln	0,8	0,8	3,8	1/2	1;2;3;4t	weit	gleichmäßige Bewegungen

Die Wandberührung der Teilchen hatte, wie vergleichende Beobachtungen zeigten, weiterhin nachgelassen. Es erschien jedoch wünschenswert, einen veränderten Kegel zu untersuchen. Mit dieser Einrichtung ließ sich beim Kältekammerversuch (Abb. 14) eine verbesserte Ausbeute von Körnern der Größenordnung 0,8 bis 1 mm Durchmesser erzielen. Die Gebläseleistung mußte gedrosselt werden, damit nicht zu viele Teile nach oben herausgeworfen wurden.



Abb. 14 Konz. Sprüheisapparatur, Modell II
beim Kältekammerversuch

1.2.1.3 Modell III

Nach den Versuchen an Modell II ergab sich, daß sowohl die Häufigkeit der Wandberührung weiter herabgesetzt werden mußte, als auch Wege zu finden waren, um die Gefahr des Anfriерens teilweise gefrorener Partikeln zu verringern.

Der erstgenannte Effekt wird wesentlich durch die Baugröße bestimmt, da die Oberflächen im Quadrat, die Volumina aber mit der 3. Potenz der Hauptabmessung wachsen. Der zweitgenannte Effekt wird durch die Beschaffenheit der Wand bestimmt. Die Elastizität der Auftrefffläche gegenüber einem an der Oberfläche gefrorenen Tropfen entscheidet, ob dieser zerplatzt und die freigesetzte Flüssigkeit anfriert.

Andererseits gibt die Benetzbarkeit der Wand den Ausschlag, ob die Flüssigkeit eines noch nicht eingefrorenen Tropfens an der Wand soweit anhftet, daß er festfriert.

Damit beide Forderungen erfüllt werden, wurde ein großer Apparat mit einer Hauptgebläseleistung von $3000 \text{ m}^3/\text{h}$ aufgebaut (Abb. 15). Sein Oberteil ist ein

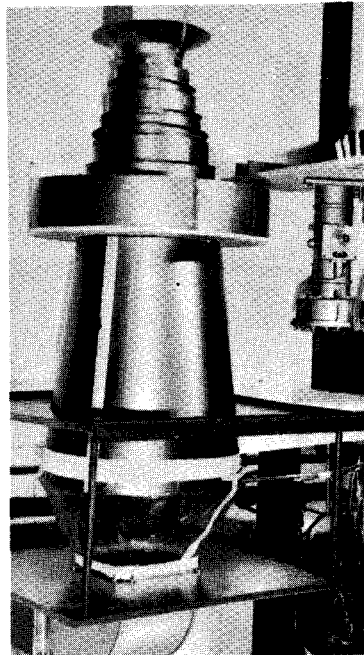


Abb. 15 Konz. Sprüheisapparatur, Modell III

Blechkegel (420 x 700 mm Durchmesser, 500 mm Höhe) ohne Luftführungsschlitze, in dem sich der schnell durchfrierende Feinantel aufhält. Das Unterteil des Apparates besteht aus einem Drahtnetzkegel (180 x 420 mm Durchmesser, 500 mm Höhe), in dem die Teilchen der gewünschten Größe ($> 0,5$ mm Durchmesser) schweben. Der Drahtkegel ist mit einem leichten, feinfädigen Gewebe ausgekleidet, das durch die ein-

geblasene Luft auf einige-Millimeter Abstand vom Drahtnetz gehalten wird. Dadurch ergibt sich die gewünschte Elastizität der Kegelmantelfläche. Die Zusatzluft strömt der Netzkegelwand über 6 konzentrische Zylinderringe zu. Die Teilströme können einzeln durch Drosselringe gesteuert werden. Ein Außengehäuse ermöglicht es, diesen Bereich durch ein Zusatzgebläse mit Luft höheren Druckes zu beschicken. Der Apparat wurde mit Granulat aerodynamisch abgeglichen.

1.2.2 Folgerungen aus den Vorversuchen

Bei diesem Verfahren traten zwei typische Probleme auf. Zum einen erwies es sich als schwierig, die Wandberührung der einzufrierenden Teilchen zu vermeiden bzw. zu verringern, obwohl Einbauten aus Drahtgeflecht und mehrere Strömungsformen versucht wurden. Dazu kommt, daß die Sprühdüse Tropfen mit verschiedenen Durchmessern erzeugt, die dann unterschiedliche Fallgeschwindigkeiten haben. So werden viele kleine Teile aus der Einfrierzone weggetragen und damit wird die Ausbeute sehr verringert.

In weiteren Versuchen soll deshalb das Schwebeverhalten von Körpern in einheitlicher Beschaffenheit zur optimalen Einstellung der Anlage und anschließend der Betrieb mit Wasser- und Salzlösungseis untersucht werden.

2 Sprengisverfahren

2.1 Versuchsaufbau

Für dieses Verfahren wurde als elastische Metallwand, die eine hinreichend große Verformung über die gesamte Fläche bei vernünftigem Aufwand zuließ, ein Wellrohr ermittelt.

Die Versuchsanordnung, deren Dimensionen in Vorversuchen mit einem vereinfachten Modell abgeschätzt worden waren, besteht aus dem Metallfaltenbalg, dem Kühlmittelkreislauf und den Behältern mit der einzufrierenden Flüssigkeit.

Der Metallfaltenbalg taucht in die einzufrierende Flüssigkeit und wird von innen durch Einspritzen von flüssigem Frigen gekühlt. Die Kältemittelführung besteht aus einem zentralen Absaugrohr für den Kältemitteldampf und einer exzentrisch liegenden Zuführung. Das Zuführungsrohr wird über ein druckkompensiertes Einspritzventil gespeist und endet in einer Lötstufe, die den Anschluß verschiedener Verteiler gestattet. So konnten in Versuchen verschiedene Verteilerformen erprobt werden. Als endgültige Form wurde ein Rohrring ermittelt, der auf dem Umfang drei Reihen Bohrungen trägt und auf $\frac{2}{3}$ der Wellrohrhöhe angeordnet ist. Die Strahlen aus den Bohrungen treffen das Wellrohr ganz oben und bei $\frac{2}{3}$ und $\frac{1}{3}$ seiner Höhe. So ergab sich eine gleichmäßige Eisschicht auf dem Wellrohr. Wenn sich an der Außenseite genügend Eis angesetzt hat, wird durch zwei Stößelstangen, die außerhalb, also im Flüssigkeitsraum, liegen und im Deckel des Apparates mit zwei O-Ringen abgedichtet sind, abwechselnd zu-

sammengedrückt und gestreckt. Später wurde statt der zwei außenliegenden Stangen eine in der Balgachse liegende verwendet, da so eine Abdichtung im radioaktiven Raum vermieden wird.

2.2 Versuchsdurchführung

Ein Arbeitsgang der Anlage besteht aus Anfrieren und Absprengen. Die Anfrierphase selbst muß jedoch nochmals in drei Abschnitte unterteilt werden. Das eigentliche Anfrieren von Flüssigkeit geschieht bei vollem Flüssigkeitsstand. Danach wird noch weiter Kältemittel eingespritzt, während die einzufrierende Flüssigkeit abgelassen ist. In dieser Phase bewirkt der Wärmeentzug eine Unterkühlung der Eisschicht. In der dritten Phase ist das Einspritzventil geschlossen und die Kühlmitteldämpfe werden abgesaugt. Beim Absprengen wird auch die Saugleitung geschlossen, um bei einem Balgbruch den Kältemittelkreislauf vor Feuchtigkeit zu schützen und gleichzeitig eine Kontamination der Kältemaschine zu verhindern. Ein Balgbruch ist nur in dieser Betriebsphase denkbar.

Die Zeiten für die einzelnen Phasen und die Zahl der zum vollständigen Absprengen des Eises erforderlichen Hübe wurden durch mehrere Versuchsreihen ermittelt und optimiert. Sie müssen je nach Zusammensetzung der Lösung verändert werden.

2.3 Versuchsergebnisse

Die besten Ergebnisse, nämlich abgesprengtes Eis in der besonders gut schütffähigen Form von viereckigen Tabletten, ergaben Versuche mit Wasser oder Salzeis

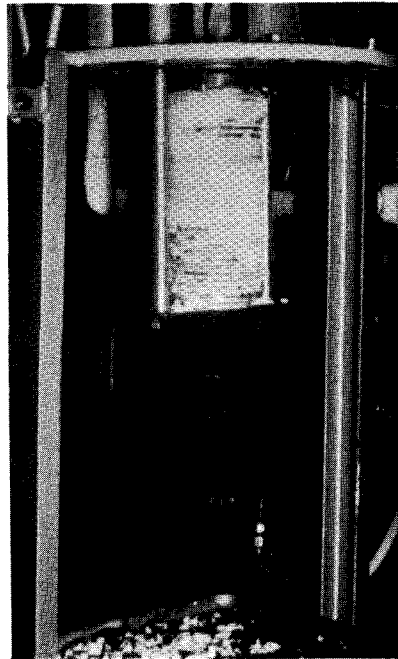


Abb. 16 Absprengen von Wassereis

sehr geringer Konzentration (Abb. 16).

Bei höheren Salzkonzentrationen wird das Eis auch bei längeren Nachfrierzeiten weniger spröde. Die Versuche ergaben ein Eis in Form von Stäbchen (Abb. 17).



Abb. 17 Absprengen von Salzlösungseis

3 Platteneisverfahren

3.1 Vorversuche

Grundlegende Versuche ergaben die Möglichkeit, Eisplatten nicht zu großer Dicke durch langsam ablaufende Schervorgänge zu zerkleinern, wobei ein gleichmäßiges Bruchgut und eine hohe Standzeit der Werkzeuge erzielt wurden. Der zu erwartende Durchsatz des Platteneisverfahrens wurde aufgrund von Vorversuchen mit einer nur für den konventionellen Gebrauch geeigneten Apparatur angestellt.

Die Einfrierapparatur besteht aus 2 durch angelötete Kältemittelschlangen (Abb. 18) gekühlten Platten von 500 x 450 mm Abmessung.

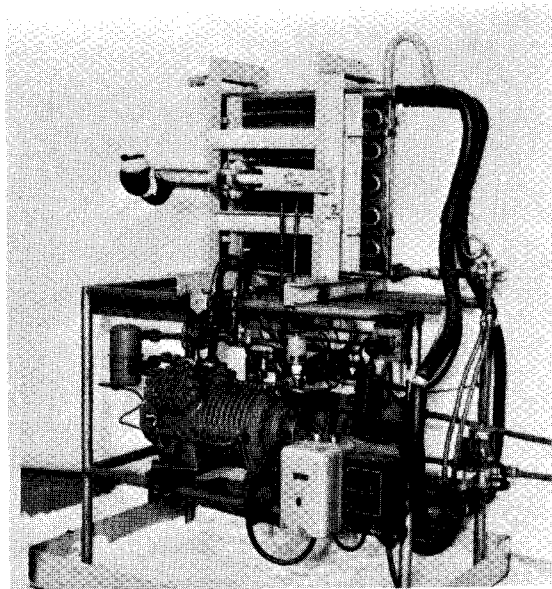


Abb. 18 Platteneisapparatur

Die Platten werden mit einem Druckluftzylinder gegen eine Dichtung gepreßt. Die in den Zwischenraum eingefüllte Lösung kann in ca. 1/2 Stunde zu einer Platte von ca. 400 x 400 x 16 mm eingefroren werden.

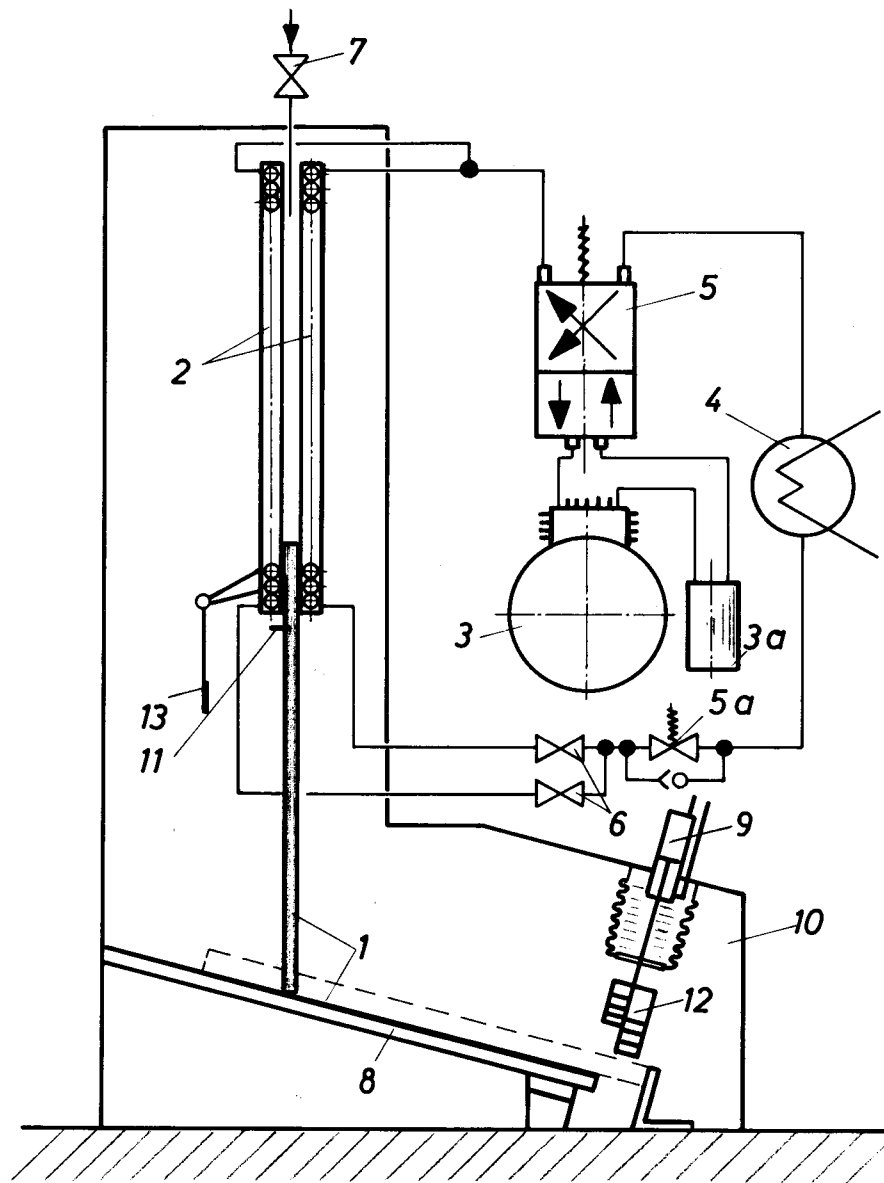
Nach dem Einfrieren wird die Kontaktfläche zwischen den Kühlplatten und dem Eis durch Heißgasbeaufschlagung der Kältemittelschlangen kurzzeitig angetaut, so daß die Eisplatte leicht entnommen werden kann.

3.2 Auslegung für kontinuierlichen Betrieb

Nach den oben beschriebenen Vorversuchen wurde eine Versuchsanlage ausgelegt (Abb. 19).

Es wird ein geschlossener Schacht verwendet, der einen Rechteckquerschnitt mit gerundeten Schmalseiten hat. Die Maße sind 180 x 15 mm. Die Schachthöhe beträgt 500 mm. Die untere Öffnung wird zum Start der Anlage durch eine Klappe verschlossen. In den Schacht wird bei gleichzeitiger Kühlung bis 30 mm unter den Rand Lösung eingefüllt. Nach dem Durchfrieren wird die Klappe entfernt und die Wandschicht im Gefrierschacht durch Heißgasbeaufschlagung angetaut. Die herausgleitende Eisplatte trifft unten auf einen Anschlag, so daß noch ein Stück von etwa 50 mm Höhe im Schacht verbleibt. Nach dem Wiedereinfrieren der Grenzschicht wird der Schacht erneut mit Lösung gefüllt.

Direkt unter dem Schacht wird der herausragende Teil der Eisplatte durch einen elektrisch beheizten Draht abgeschnitten und gleitet auf einem geneigten Rost aus 10 mm Vierkantstäben mit 11 bis 12 mm Lücke. In diese Lücken greifen die 10 mm breiten Zähne des Brecherkopfes, die in Form einer Doppeltreppe angeordnet sind. Die stehengebliebenen Zinken werden nach Vor-



- 1 Eisplatte
- 2 Kühlplatte
- 3 Kältekompressor
- 3a Ölabscheider
- 4 Verflüssiger
- 5 el. Umschaltventil
- 5a el. Ventil und Überdrucksicherung
- 6 Einspritzventile
- 7 Zuspeiseventile
- 8 Auflagerost
- 9 Hydraulikzylinder
- 10 Gehäuse
- 11 Schneiddraht
- 12 Brechzähne
- 13 Startklappe

Abb. 19
Kontinuierliche Platteneisapparatur

schub durch eine zweite am Brecherkopf befestigte Treppeneinheit gebrochen, die vor der Roststirnseite arbeitet. Durch Treppenversatz der Brechzähne wird eine gleichmäßige Verteilung der Brechkraft auf den Hub erreicht. Die Lagerung des Brechkopfes erfolgt durch Federzungen, wodurch eine Verschleißstelle im später radioaktiven Raum entfällt. Die Brechkraft wird durch einen hydraulischen Zylinder aufgebracht, der von außen auf eine Stößelstange drückt, die bei aktivem Betrieb durch einen Faltenbalg abgedichtet werden kann.

Durch die Auslegung des Brechgatters wird eine angenäherte Würfelform des Brechgutes mit ca. 10 bis 12 mm Kantenlänge erreicht, die sich gut zur Rippenschalentrocknung eignet.

4 Softeisversuche

4.1 Vorversuche

Beim Softeisverfahren wird der Flüssigkeit Wärme durch einen von außen gekühlten Metallzylinder entzogen. Die entstehenden Eiskristalle werden mit einer rotierenden Speziialschnecke von der Wand abgesondert und zur Austragöffnung befördert. Regelvorrichtungen sorgen für die Gleichmäßigkeit des Produktes, das aus einem Gemenge von Eiskörnern und Restsole besteht. Es muß daher in einer geeigneten Vorrichtung noch vollständig durchgefroren werden.

Mit der Softeisapparatur wurden verschiedene Versuche mit unterschiedlicher Salzkonzentration gefahren. Die Apparatur neigte bei niedrigem Feststoffgehalt unter

150 g/l zu Störungen. Durch Zugabe von organischen Stoffen, wie Gelatine, konnte das Arbeitsverhalten bis herab zu ca. 100 g/l Feststoffgehalt stabilisiert werden (Tabelle 2).

Tabelle 2 Versuche mit der Softeisapparatur

Konz. NaNO ₃ g/l	Konz. Zuschl. g/l	Art Zuschl.	Reißlänge mm	Stromaufn. A	Auftrag-Temp. °C	Bemerkungen
100	-	-	-	-	-	Schnecke friert fest
100	10	Gelat.	60	2,5	- 6	ungleichm. Arbeiten
200	-	-	70	3,2	- 9	weicher Austrag
200	10	Gelat.	90	2,8	- 8	knetbarer Austrag
200	30	Holzstaub	70	3,2	- 9	Austrag bröckelig
250	-	-	70	2,8	-10	Austrag weich, trocken
300	-	-	-	-	-12	halbflüssiger Austrag

4.2 In Aussicht genommene Aushärteverfahren

Da das Produkt der Softeismaschine noch nicht vollständig durchgefroren ist, muß eine Vorrichtung konstruiert werden, mit der die Softeismasse vor dem Gefriertrockenschritt ausgehärtet wird. Für diesen Verfahrensschritt wurde in Aussicht genommen, die Softeismasse zunächst durch einen Mehrdüsenkopf in kurze Zylinderstücke zu zerlegen. Das Abreißen in definierten Längen sollte durch erzwungene Beschleunigung erreicht werden. Die so erhaltenen Zylinderkörper sollten in einem gekühlten Raum fallend bzw. schwebend ausgehärtet werden. Als Kälteträger könnte sowohl ein gekühltes Gas als auch ein Kältemittelnaßdampf dienen.

Aussichtsreich erscheint es, den Schwebekonus der Sprüheiseinheit für die Nachhärtung des Softeises zu verwenden. Die gleichmäßige Größe der Teilchen erleichtert dabei die aerodynamische Beherrschung des Schwebens. Die vorgefrorene Struktur der Masse wirkt sich bei Wandberührung günstig aus, da keine freie Flüssigkeit austreten und einfrieren kann. Der Mehrdüsenkopf sollte von einem Schutzrohr umgeben sein, das ihn vom Kaltgasstrom isoliert und so verhindert, daß die Softeisstränge in den Austrittsdüsen festfrieren.

IV Gefriertrockenversuche

1 Versuchsaufbau

Nach den Erfordernissen des Gesamtverfahrens wie sie im Rahmen dieser Aufgabe gegeben sind, wurde aus in unserem Hause gefertigten Baugruppen eine Gefriertrockenanlage (Abb. 20) zusammengestellt.

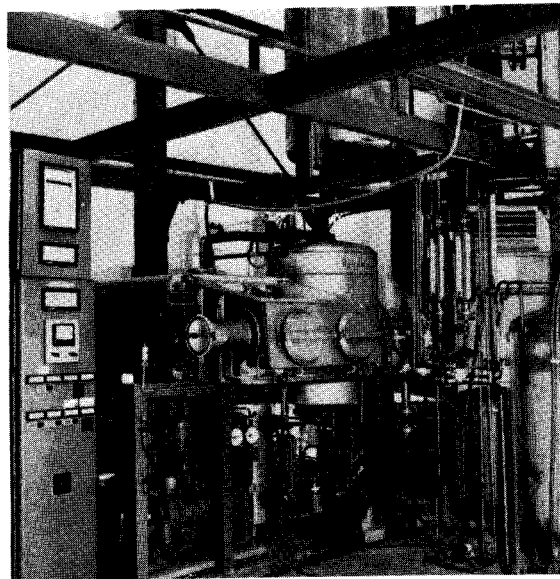


Abb. 20 Gefriertrockenanlage

Die Gefriertrockenanlage besteht im wesentlichen aus der Trockenkammer, die vakuumdampfbeheizte Stellflächen enthält und durch einen Handschuhkasten mit Schleuse und mehreren Durchführungen abgeschlossen wird, und aus dem Eiskondensator. Er wird mit einer Kältemaschine gekühlt und kann mit einem Ventil von der Trockenkammer abgesperrt werden. Für aktiven Betrieb kann die Trockenkammer, welche dann die gesamte im Verfahren eingesetzte Aktivität enthält, abgeschirmt werden. Daher wurde die Kammer soweit von den anderen Teilen abgerückt, daß um sie herum eine stärkere Bleischicht angebracht werden kann. Es wurde darauf geachtet, daß bei nachträglichem Anbringen einer solchen Bleiabschirmung nur wenige Stellen mit Schrot verfüllt werden müssen.

Als Kältemaschine wurde eine Baugruppe mit zweistufigem Verdichter und wassergekühltem Verflüssiger gewählt. Die Nulleistungstemperatur des Kältesatzes von -70°C gestattet bei Verzicht auf hohe Mengenleistung, auch Vorkonzentrate mit extrem tiefen eutektischen Temperaturen zu behandeln.

Die zur Sublimation des Wassers aus dem Eisgranulat erforderliche Wärme muß durch Heizung zugeführt werden. Hierbei ist eine gleichmäßige Temperatur an der wärmeabgebenden Fläche notwendig, um ohne die Gefahr örtlicher Überhitzung den größtmöglichen Wärmestrom im Trockengut zu erzeugen. Wie schon bei der Betrachtung des Verdampfers gesagt, ist hierzu eine Dampfheizung am besten geeignet. Es wurde hier eine elektrisch betriebene Naturumlaufheizung angeordnet, die durch einstellbare selbsttätige Zweipunktregelung auf konstanter Temperatur gehalten wird. Die Heizelemente in

der Kammer sind hohle Platten aus rostfreiem Stahl, die auf der oberen Fläche plangeschliffen sind, um eine gute Wärmeabgabe an darauf abgestellte Schalen sicherzustellen. Die Heizdampf­temperatur ist hierbei auf ca. 100 °C begrenzt, da bei höheren Temperaturen der Schoneffekt von Niederdruckeindampfung und Gefriertrocknung wieder zunichte gemacht wird. Daher wurde eine Vakuumdampfheizung gewählt, die den Temperaturbereich von 30 ... 100 °C bestreicht.

Um das Eis von der Kondensatorschlange zu entfernen, wurde eine Heißgasabtauung eingebaut. Hierbei wird die Kondensatorschlange mit Kältemitteldampf von der Druckseite des Kältekompressors beaufschlagt und durch die Kondensationswärme des Kältemittels abgetaut. Da sich die Druckverhältnisse an dieser Anlage nicht konstant einstellen lassen, sind die Abtauleistungen empirisch zu ermitteln.

2. Vorversuche

2.1 Untersuchung geeigneter Stückgrößen und Schalenformen

Gefriertrocknungsversuche wurden mit Eisstücken verschiedener Größe durchgeführt. Das Ziel der Testreihe war, festzustellen, wieweit Partikelform und -größe die Gefriertrocknungsdurchsätze beeinflussen. Dadurch wurden Anhaltspunkte für Modifikation der Einfrierverfahren gewonnen.

Die Eisstücke wurden durch Brechen von Eisplatten erzeugt und durch anschließendes Sieben in verschiedene

Größenklassen unterteilt. Durch Verwendung verschiedener Siebmaschenweiten und Auslassen von Zwischengrößen an den Gefriertrockenschalen wurden engere und breitere Bänder des Größenspektrums herausgegriffen. Die Feststoffkonzentration der einzufrierenden Lösung wurde mit 200 g/l vorgegeben. Es wird erwartet, daß eine Salzlösung mit dieser Konzentration noch erzeugt werden kann.

Zur Prüfung wurden verschiedene Schalentypen verwendet, um den Anforderungen verschiedener Eisstückgrößen Rechnung tragen zu können. Hier ist zu beachten, daß der Partikel einerseits die Sublimationswärme zugeführt werden muß und andererseits der entstehende Wasserdampf gleichmäßig und mit möglichst geringen Druckverlusten abzuführen ist.

Bei den Tests zeigte sich, daß für die Eisstückgrößen, die mit den verschiedenen Verfahren erzeugt werden, Leistungsunterschiede auftreten. Aus dem Gesamtbruch mit inhomogener Größenverteilung ausgesiebte Fraktionen ließen sich nur mit vermindertem Durchsatz pro Stellflächeneinheit trocknen. Das ist dadurch zu erklären, daß die kleineren Partikeln in der Schüttung die Dampfabzugswege in den Zwischenräumen verstopfen und dadurch die Druckverluste bei der Abströmung des Sublimationsdampfes erhöhen. Außerdem wurde beobachtet, daß einige Teilchen während der Trocknung angetaut waren und sich dadurch miteinander oder mit der Wand verschweißten hatten. Dadurch war das Ausleeren der Schalen behindert. Zur Abhilfe wurden diese Schalen mit besonders angepaßten Dampfabzugseinrichtungen versehen, wodurch der Fehler behoben werden konnte.

Die Trocknung von Fraktionen sehr kleiner Partikelgröße erwies sich als schwierig. Eine befriedigende Lösung war bisher nicht zu erreichen. Als besonders störend wurde die Beobachtung gewertet, daß während der Trocknung im Inneren der Schüttung gebildete Dampfblasen eruptiv zur Oberfläche durchbrechen. Weitere Versuche werden zeigen, ob es möglich ist, diese Partikelgrößen in begrenzten Mengen zusammen mit wesentlich größeren Teilchen zu trocknen, oder ob dieser Anteil zum Einfrierverfahren zurückgespeist werden muß.

Durch Zusatz von Mangan zum Trockengut und Spurennachweis dieses Elements im Eiskondensat wurde überschlägig der Dekontaminationsfaktor für den Gefrier-trockenschritt zu ca. 10^3 bestimmt. Wegen der geringen Eiskondensatmengen ist die Messung relativ ungenau und kann nur als Größenordnung gewertet werden. Da beim Gefriertrocknen je nach Ausgangsfeststoffgehalt und Zwischenkonzentration nur 0,5 bis 5 % des gesamten Wassers abgeschieden werden, ist hier jedoch der DF nur von sekundärer Bedeutung gegenüber dem des Verdampfers.

2.2

Meßanordnung zur Bestimmung von Heizprogrammen

Zum Erhöhen des Durchsatzes bei Schalentrocknung sind in Abhängigkeit von Stückgröße und Produktzusammensetzung angepaßte Zeitfolgen für Schalenbodentemperatur und Heizleistung erforderlich. Die Versuchsanordnung (Abb. 21) besteht aus einer Tafelwaage mit aufmontierter elektrischer Heizeinrichtung auf einer

Platte für eine Trockenschale mit 160 x 160 mm Grundfläche. Die andere Platte dient zur Aufnahme von Tarriergewichten.

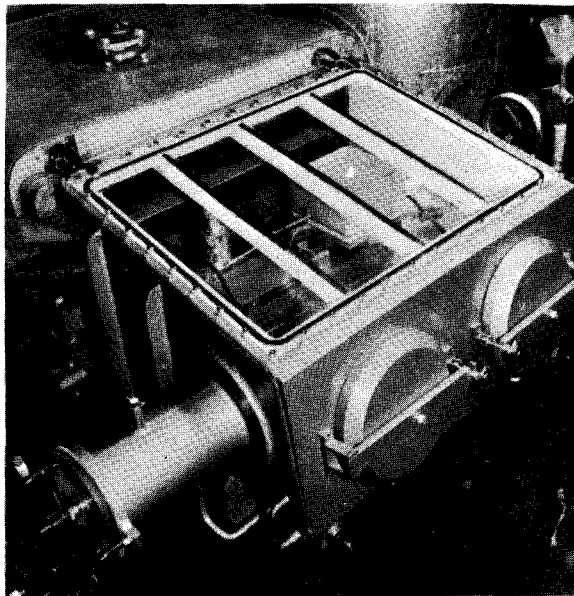


Abb. 21 Handschuhkasten mit Wägevorrichtung

Ein federnder Fühler mit Dehnmeßstreifen gibt eine dem Gewichtsverlust proportionale Spannung ab. Die Empfindlichkeit betrug 2 mV/100 g und gestattet, sowohl ein anzeigendes Meßgerät als auch einen Schreiber voll auszusteuern. Bei Zuordnung von Gewichts- und Spannungsanzeigen durch Eichung ergab sich eine Genauigkeit von $\pm 2 \%$.

3. Zuordnung von Einfrier- und Gefriertrocknungsverfahren

Während die Verkoppelung des Verdampfungs- und Einfrierschritts im wesentlichen durch die Konzentration bestimmt ist, sind Einfrier- und Gefriertrockenschritt bedeutend vielfältiger miteinander verbunden. Deshalb

können beide Verfahren nur in Kombination miteinander entwickelt werden. So wurde abgeschätzt, welche Stückgrößen und welche Durchsätze für die einzelnen Verfahren infrage kommen. Hierdurch wird eine vorläufige Zuordnung von Einfrier- und Trocknungsverfahren möglich, nach der sich die weitere Entwicklung ausrichten kann.

Die Diagramme (Abb. 22) geben eine überschlägige Darstellung dieser Durchsatz- und Partikelgrößenzuordnung und lassen folgende Verfahrenskombinationen in Abhängigkeit vom Durchsatz als günstig erscheinen.

- kleine Mengen
Sprengeseinfrieren (dabei möglichst Schalen in Füllstation gerüttelt wegen kompakter Lage der Teilchen).

- mittlere Mengen
Platteneiseinfrieren, Brechen und Sieben sowie Gefriertrocknen in verschiedenen Schalen je nach Fraktion.

- größere Mengen
Sprüheis- oder Softeiseinfrieren mit anschließender Aushärtung im Schwebezustand oder freien Fall und Gefriertrocknung in Schalen oder mittels Dünnschichtförderung.

V Fortführung der Versuche

1 Verdampfen

Die Versuche mit dem Verdampfer waren während der ersten Versuchszeit zu einem vorübergehenden Abschluß gekommen. Wegen der dabei festgestellten

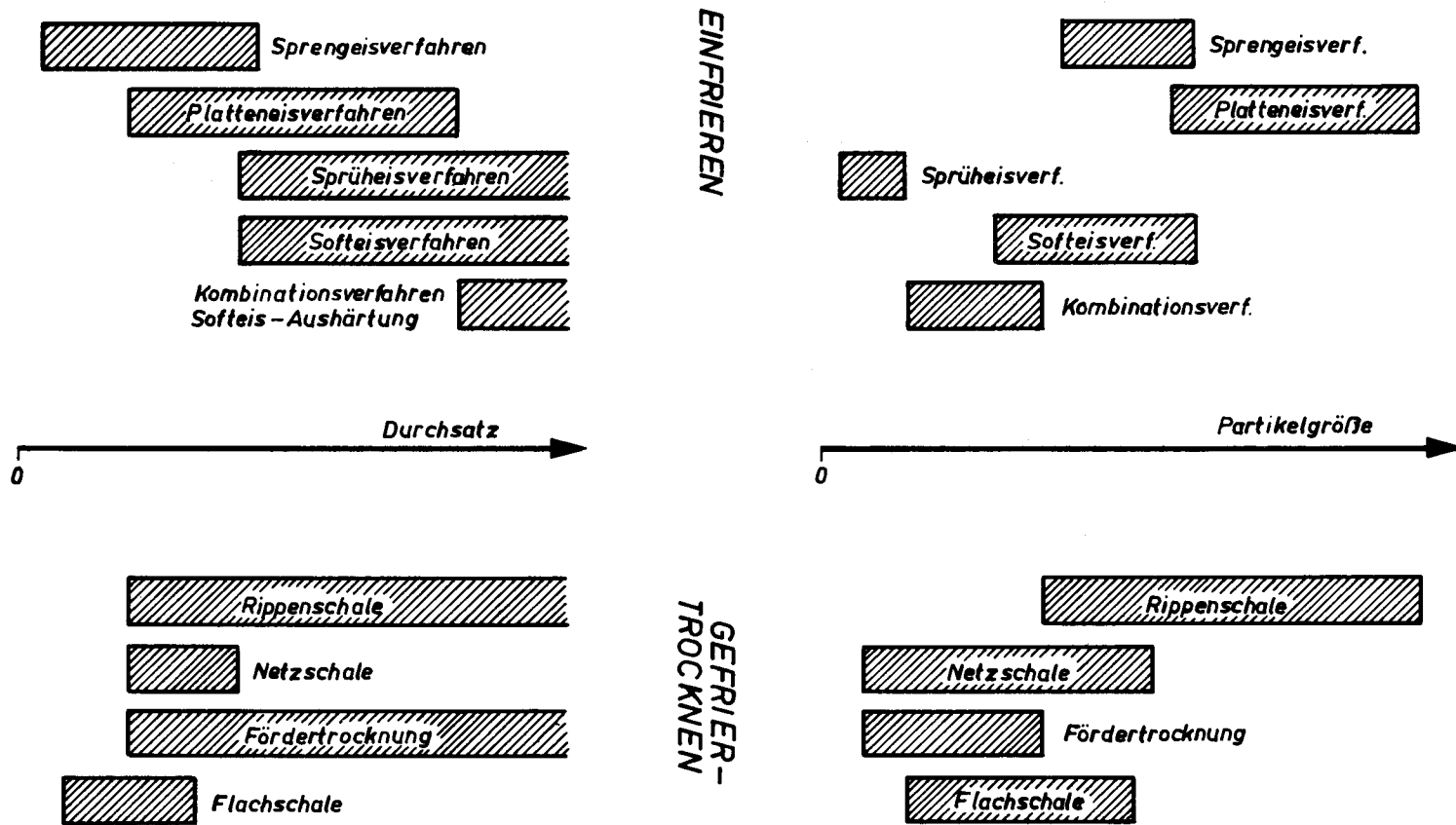


Abb. 22

Zuordnung verschiedener Einfrier- und Gefriertrockenverfahren

Korrosionserscheinungen sollen alle rostbildenden Stellen des Verdampfers durch rostfreien Stahl ersetzt werden. Die vorgesehenen Dauerversuche sollen im Rahmen des Versuchsbetriebes der Gesamtanlage ausgeführt werden. Die Dekontaminationsfaktoren werden unter Verwendung von radioaktiven Tracern ermittelt.

2. Einfrieren

Die vorhandenen Modelle II und III zum Sprüheiseinfrieren werden weiter untersucht und verbessert und mit Salzlösung betrieben. An der automatisch arbeitenden Sprengeisapparatur werden Dauerstandsversuche und Einfrierversuche mit Salzlösung hoher Konzentration durchgeführt.

Die Anlage zur Platteneiserzeugung und ein Apparat zum Softeisverfahren mit anschließender Aushärtung werden erstellt und erprobt. Dabei muß besonderen Wert auf die optimale Ausbildung des Düsenkopfes zur Zerlegung des Softeises gelegt werden.

3. Gefriertrocknung

Mit der bestehenden diskontinuierlichen Anlage werden Versuche unternommen zur Ermittlung für Salzeis geeigneter Heizprogramme und zur Bestimmung der Dekontaminationsfaktoren in Abhängigkeit von Durchsatz und Korngrößenverteilung.

4

Auslegung einer Anlage im Pilot-Maßstab

Die Ergebnisse der Versuche werden für die Auslegung einer Anlage im größeren Maßstab benutzt und Vorschläge für die technische Realisierung des Projektes ausgearbeitet. Gleichzeitig wird ein Überblick über die Eignung der Verfahren in Abhängigkeit vom Feststoffgehalt erarbeitet.

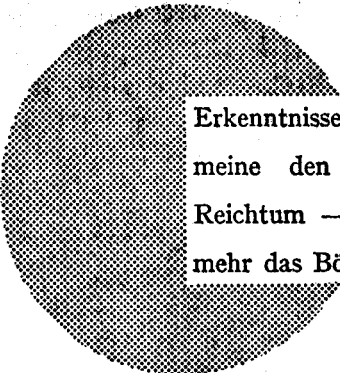
AN UNSERE LESER

Alle Euratom-Berichte werden nach Erscheinen in der von der Zentralstelle für Information und Dokumentation (CID) herausgegebenen Monatszeitschrift **EURATOM INFORMATION** angezeigt. Abonnements (1 Jahr : DM 60) und Probehefte sind erhältlich bei :

Handelsblatt GmbH
"Euratom Information"
Postfach 1102
D-4 Düsseldorf (Deutschland)

oder

Office central de vente des publications
des Communautés européennes
2, Place de Metz
Luxembourg



Erkenntnisse verbreiten ist soviel wie Wohlstand verbreiten — ich meine den allgemeinen Wohlstand, nicht den individuellen Reichtum — denn mit dem Wohlstand verschwindet mehr und mehr das Böse, das uns aus dunkler Zeit vererbt ist.

Alfred Nobel

VERTRIEBSSTELLEN

Alle Euratom-Berichte sind bei folgenden Stellen zu den auf der ersten Rückseite des Umschlags angegebenen Preisen erhältlich (bei schriftlicher Bestellung bitte die EUR-Nummer und den Titel, die beide auf der ersten Umschlagsseite jedes Bericht stehen, deutlich angeben).

OFFICE CENTRAL DE VENTE DES PUBLICATIONS DES COMMUNAUTES EUROPEENNES

2, place de Metz, Luxembourg (Compte chèque postal N° 191-90)

BELGIQUE — BELGIË

MONITEUR BELGE
40-42, rue de Louvain - Bruxelles
BELGISCH STAATSBLAD
Leuvenseweg 40-42 - Brussel

LUXEMBOURG

OFFICE CENTRAL DE VENTE
DES PUBLICATIONS DES
COMMUNAUTES EUROPEENNES
9, rue Goethe - Luxembourg

DEUTSCHLAND

BUNDESANZEIGER
Postfach - Köln 1

NEDERLAND

STAATSDRUKKERIJ
Christoffel Plantijnstraat - Den Haag

FRANCE

SERVICE DE VENTE EN FRANCE
DES PUBLICATIONS DES
COMMUNAUTES EUROPEENNES
26, rue Desaix - Paris 15°

ITALIA

LIBRERIA DELLO STATO
Piazza G. Verdi, 10 - Roma

UNITED KINGDOM

H. M. STATIONERY OFFICE
P. O. Box 569 - London S.E.1

EURATOM — C.I.D.
51-53, rue Belliard
Bruxelles (Belgique)