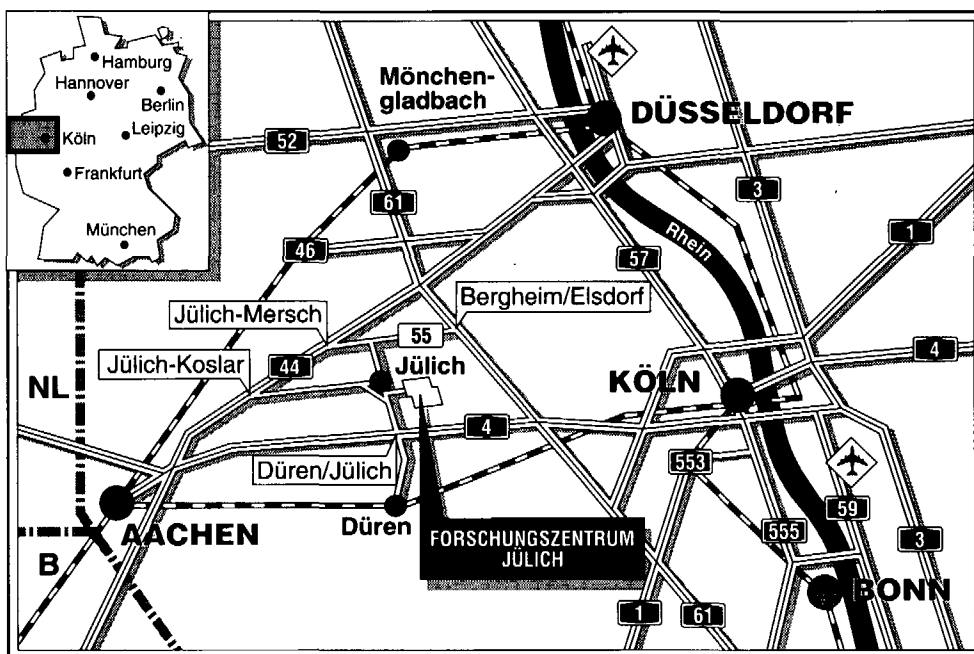


Institut für Chemische Technologie

**Experimentelle Untersuchungen
zur Charakterisierung des Fließ- und
Zerstäubungsverhaltens von Pulverharz-
Suspensionen im Hinblick auf eine
Sprühinjektions-Verbrennung**

Andreas Bohlender



Berichte des Forschungszentrums Jülich ; 2758

ISSN 0944-2952

Institut für Chemische Technologie Jül-2758

D 82 (Diss. RWTH Aachen)

Zu beziehen durch: Forschungszentrum Jülich GmbH · Zentralbibliothek

Postfach 1913 · D-5170 Jülich · Bundesrepublik Deutschland

Telefon: 02461/61-6102 · Telefax: 02461/61-6103 · Telex: 833556-70 kfa d

JÜI-2758

Mai 1993

ISSN 0944-2952

Experimentelle Untersuchungen zur Charakterisierung des Fließ- und Zerstäubungsverhaltens von Pulverharz- Suspensionen im Hinblick auf eine Sprühinjektions-Verbrennung

Andreas Bohlender

Das diesem Bericht zugrundeliegende Vorhaben wurde mit Mitteln des Bundesministeriums für Forschung und Technologie unter dem Förderkennzeichen KWA 7903 0 gefördert. Die Verantwortung für den Inhalt dieser Veröffentlichung liegt beim Autor.

Experimental investigations to characterize the flow and atomization properties of powdered resin slurries under consideration of a spray-injection incineration

by
Andreas Bohlender

Abstract

Used bead- and powdered resins respectively powdered resin / polyacrylonitrile fibre mixtures from nuclear power plants are usually dried before they will be stored in barrels. Treatment by an incineration process might become the method of choice, because future disposal of combustible radioactive waste will be further restricted. Promising experiences have been gained with a spray-injection incineration process, where a large combustion surface is created by atomizing the waste with the help of nozzles.

Considering the design of a spray-injection combustion facility this thesis evaluates as well the material- and slurry specific- as the process- and apparatus-technical parameters. To perform corresponding experiments a laboratory facility was designed and constructed at the institute for "Chemische Technologie" for testing of different nozzles in respect of their atomization characteristics. As carrier liquids were used water and a hydrocrack gasoil residue.

The essential results of the experimental investigations can be summarized as followed:

Wet grinding experiments showed, that resins can be easily crushed. In particular bead resins can be grinded down to the size of powdered resin particles.

Without additives aqueous powdered resin slurries (mixture ratios of cation- and anion exchanger between 1:1 and 3:1) are flowable up to resin contents of 20 wt.%. By adding of additives it is possible to increase the maximum solid content up to 28 wt.%.

If oil is used as carrier liquid, the resins have to be dried, because moist resins agglomerate in combination with oil. Since used resins are usually dried anyhow before they will be stored in barrels, oil is an interesting alternative as against water. Comparing with water oil offers the advantage to get stable and flowable slurries up to resin contents of 40 wt.% without the necessity of adding supplementary fuel for the incineration process.

High concentrated aqueous powdered resin / polyacrylonitrile (PAN) fibre slurries show a tendency to form agglomerates. Only one of the tested nozzles, the so called supersonic nozzle, guaranteed a trouble free atomization. Powdered resin / PAN-fibre (mixture ratio of 4:1) slurries were atomized up to solid contents of 26 wt.%. Powdered resin / oil slurries without PAN-fibres could be atomized up to solid contents of 40 wt.%. Up to which solid content a trouble free atomization of oil slurries is possible wasn't cleared up precisely. By experiments with a real radioactive waste from the nuclear power plant Krümmel (KKK) could be demonstrated, that a 25 wt.% waste containing oil slurry can be easily atomized.

Experimentelle Untersuchungen zur Charakterisierung des Fließ- und Zerstäubungsverhaltens von Pulverharz-Suspensionen im Hinblick auf eine Sprühinjektions-Verbrennung

von
Andreas Bohlender

Kurzfassung

Nach heutiger Praxis werden die in Kernkraftwerken anfallenden und radioaktiv kontaminierten Kugel- und Pulverharze bzw. Pulverharz / Polyacrylnitrilfasergemische getrocknet und unfixiert in Behältern verpackt und zwischengelagert. Da in einem zukünftigen Endlager für radioaktive Stoffe nach Möglichkeit keine organischen brennbaren Abfälle eingelagert werden sollen, wird nach Verfahren gesucht, um die Abfallharze in eine anorganische, nicht brennbare Form zu überführen. Erfolgsversprechende Ansätze sind in einer Sprühinjektions-Verbrennung zu sehen, bei der Harzsuspensionen mittels Düse zerstäubt und dabei mit großer Brennstoffoberfläche einem Brenner zugeführt werden.

Im Hinblick auf die Auslegung einer Sprühinjektions-Verbrennungsanlage wurden am Institut für Chemische Technologie entsprechende Untersuchungen zur Klärung des Fließ- und Zerstäubungsverhaltens von suspendierten Harzen durchgeführt. Als Trägerfluide wurden Wasser und ein beim Gasöl-Hydrocrackprozeß anfallendes Rückstandsöl ausgewählt.

Die wesentlichen Ergebnisse des Untersuchungsprogramms lassen sich wie folgt zusammenfassen:

Durch Naßmahlversuche lassen sich die Harze weiter zerkleinern, insbesondere lassen sich die Kugelharze in eine mit den Pulverharzen vergleichbare Partikelform überführen.

Ohne Zugabe von Additiven wird bei üblichen Mischungsverhältnissen von Kationen- zu Anionenaustauscherharzen (3:1 bis 1:1) in wässrigen Suspensionen bei Harzgehalten von ca. 20 Gew.% die Fließgrenze erreicht. Durch Zugabe eines Additivs läßt sich der Feststoffgehalt auf ca. 28 Gew.% steigern.

Wird Öl als Trägerfluid verwendet, muß vorher eine Trocknung erfolgen, weil feuchte Harze in Verbindung mit Öl zu großflockiger Agglomeratbildung neigen. Da die Trocknung ohnehin zum Zwecke der Zwischenlagerung durchgeführt wird, ist Öl als Trägerfluid dem Wasser vorzuziehen. Neben dem Vorteil einer Verbrennung ohne zusätzliche Energiezufuhr bleibt die Fließfähigkeit bis zu Feststoffgehalten von ca. 40 Gew.% erhalten.

Pulverharz / Polyacrylnitrilfaser (PAN-Faser)-Gemische neigen bei der Suspendierung verstärkt zur Agglomeratbildung. Suspensionen mit zusätzlicher PAN-Faserfracht ließen sich nur mit Überschall-Pneumatikdüsen störungsfrei zerstäuben.

Wässrige Pulverharz-/PAN-Fasersuspensionen (Mischungsverhältnis 4:1) konnten mit dieser Düse bis zu einer Feststoffkonzentration von ca. 26 Gew.% zerstäubt werden. Öl / Harzsuspensionen ohne PAN-Faserfracht konnten bis zu Feststoffgehalten von ca. 40 Gew.% zerstäubt werden. Welcher maximale Feststoffgehalt bei Ölsuspensionen mit PAN-Faserfracht möglich ist, wurde nicht abschließend geklärt. In Versuchen mit echten Pulverharz / PAN-Fasergemischen aus dem Kernkraftwerk Krümmel, wurden Ölsuspensionen bis zu Feststoffgehalten von 25 Gew.% zerstäubt.

Inhaltsverzeichnis

1. Einleitung.....	1
1.1 Übergeordnete Zielsetzung	1
1.2 Zielsetzung und Abgrenzung der Arbeit	2
 2. Ionenaustauscherharze als Betriebsmittel zur Aufbereitung und Reinigung verschiedener Wasserkreisläufe in Kernkraftwerken	 4
2.1 Struktureller Aufbau, physikalisch-chemische Eigenschaften und verfahrenstechnische Anforderungen	4
2.2 Ausführungsformen, jährlich anfallende Verbrauchs- bzw. Abfallmengen und deren spezifische Radioaktivitätsinventare	6
2.2.1 Pulverharze aus dem SWR-Kraftwerksbetrieb	6
2.2.2 Kugelharze aus dem DWR-Kraftwerksbetrieb	10
 3. Vorbehandlung von Ionenaustauscherharzen bzw. -suspensionen für den verfahrenstechnischen Schritt der Zerstäubung.....	 14
3.1 Zerkleinerung von Ionenaustauscherharzen	14
3.1.1 Naßmahlversuche mit Pulverharzen	14
3.1.2 Naßmahlversuche mit Kugelharzen	15
3.2 Rheologische Untersuchungen an Pulverharzsuspensionen.....	16
3.2.1 Pulverharzsuspensionen mit Wasser als Trägermedium	16
3.2.1.1 Additive und deren Einfluß auf die Fließfähigkeit und den Feststoffgehalt....	18
3.2.1.2 Korngrößenspektrum und dessen Einfluß auf die Fließfähigkeit und den Feststoffgehalt	22
3.2.1.3 Thermische Vorbehandlung und deren Einfluß auf die Austauscher- kapazität, die Fließfähigkeit und den Feststoffgehalt.....	24
3.2.2 Pulverharzsuspensionen mit einem Rückstandsöl als Trägerflüssigkeit.....	26
3.2.2.1 Stoffwerte und Chemische Zusammensetzung des untersuchten Öls	26
3.2.2.2 Notwendigkeit einer thermischen Vorbehandlung der Harze.....	28
3.2.2.3 Fließeigenschaften von Pulverharz-Ölsuspensionen.....	28
3.2.2.4 Additive und deren Einfluß auf die Fließfähigkeit und den Feststoffgehalt....	29

4. Allgemeine Grundlagen zum Zerstäuben von Ionenaustauscherharz / Flüssigkeitsgemischen	30
4.1 Düsen zur Suspensionszerstäubung	30
4.1.1 Einstoff-Druckdüsen (EDD)	31
4.1.2 Zweistoffdüsen	32
4.1.2.1 Zweistoffdüsen mit äußerer Mischung	33
4.1.2.1.1 External-Mix-Flachstrahldüse	33
4.1.2.1.2 KSD-Düse	34
4.1.2.2 Zweistoffdüsen mit innerer Mischung	35
4.1.2.2.1 Überschall-Pneumatikzerstäuberdüse	35
4.1.2.2.2 Internal-Mix-Flachstrahldüse	36
4.2 Theoretische Grundlagen.....	37
4.2.1 Modellhafte Beschreibung des Zerstäubungsvorgangs	37
4.2.2 Dimensionsanalytische Betrachtung	42
4.2.2.1 Kennzahlen von EDD bei der Zerstäubung reiner Flüssigkeiten	44
4.2.2.2 Kennzahlen von Zweistoffdüsen bei der Zerstäubung reiner Flüssigkeiten....	46
4.2.2.3 Einfluß der Feststoffkomponente	48
5. Experimentelle Untersuchungen für die Zerstäubung von Ionenaustauscherharz / Flüssigkeitsgemischen	50
5.1 Vorversuche zur Zerstäubung von wässrigen Harzsuspensionen mit EDD.....	50
5.2 Aufbau und Wirkungsweise der Laborzerstäubungsanlage.....	53
5.2.1 Apparative Ausrüstung und Instrumentierung sowie meß- und regel- technische Einrichtungen.....	53
5.2.2 Partikelgrößenmeßgerät	57
5.2.2.1 Gerätetechnische Anordnung	57
5.3 Abmessungen der ausgewählten Düsen.....	59
6. Darstellung der Versuchsergebnisse	62
6.1 Festlegungen bei der Versuchsauswertung.....	62
6.2 Notwendigkeit der Vorbehandlung von Ionenaustauscherharz-Suspensionen	65
6.3 Zerstäubung wässriger Pulverharzsuspensionen mit Zweistoffdüsen	66
6.3.1 Zerstäubungsversuche zum Vergleich und zur Beurteilung der ausgewählten Düsentypen.....	66
6.3.2 Einfluß des Korngrößenspektrums bzw. der verwendeten Pulverharzsorte	72
6.3.3 Einfluß der Feststoffkonzentration bzw. der Suspensionsviskosität	75
6.3.4 Einfluß der Vorbehandlungsmethode.....	78

6.4 Zerstäubung wässriger Polyacrylnitrilfaser / Pulverharzsuspensionen.....	82
6.4.1 Suspensionszusammensetzung und Einfluß der PAN-Fasern auf die Zerstäubung	82
6.4.2 Notwendige Vorbehandlungsmaßnahmen sowie Festlegung eines geeigneten Düsentyps	83
6.4.3 Vergleichende Zerstäubungsversuche zur Beurteilung derÜberschall- Pneumatikdüsen.....	84
6.4.3.1 Einfluß der Pulverharzsorte, der Feststoffkonzentration sowie der Düsenabmessungen auf die Zerstäubung.....	84
6.4.3.2 Tropfengrößenverteilung in Abhängigkeit vom Zerstäubergasstrom und Suspensionsdurchsatz.....	87
6.4.4 Einfluß der Additivzugabe (NTS) auf den maximalen Feststoffgehalt.....	90
6.5 Zerstäubung von Suspensionen mit Rückstandsöl als Trägerflüssigkeit.....	92
6.5.1 Versuche zur Festlegung einer zweckmäßigen Zerstäubergas- und Öltemperatur	92
6.5.2 Zerstäubung von Pulverharzsuspensionen ohne PAN-Faseranteile.....	94
6.5.2.1 Vergleichende Zerstäubungsversuche mit Öl- und Wassersuspensionen zur Bewertung der Trägerflüssigkeiten.....	94
6.5.2.2 Einfluß derPulverharzsorte und der Düsenabmessungen.....	96
6.5.3 Zerstäubung von Pulverharzsuspensionen mit PAN-Faseranteilen.....	98
6.5.3.1 Suspensionszusammensetzung und notwendige Vorbehandlungsmaß- nahmen	98
6.5.3.2 Vergleichende Zerstäubungsversuche zur Bewertung der Träger- flüssigkeiten Wasser und Öl.....	99
6.5.3.3 Tropfengrößenanalyse in Hinblick auf den Verbrennungsprozeß	100
6.6 Zerstäubungsversuche mit einem radioaktiv kontaminierten Betriebsabfall aus dem Kernkraftwerk Krümmel	102
 7. Schlußfolgerungen und Ausblick	107
 8. Zusammenfassung.....	111
 9. Literaturverzeichnis	115
 10. Formelzeichen, Indices und Abkürzungen	122

1. Einleitung

1.1 Übergeordnete Zielsetzung

In Leichtwasserreaktor-Kernkraftwerken werden Ionenaustauscherharze zur Reinigung der Primär- und Sekundärkühlwasserkreisläufe in Form von Kugel- oder Pulverharzen eingesetzt. Bei einem Kraftwerk mit 1000 MW elektrischer Leistung fallen im Jahr bis zu ca. 25 m³ verbrauchte Austauscherharze als sauer oder alkalisch reagierende Abschlammung an. Die verbrauchten und radioaktiv kontaminierten Harze werden zunächst in Abfalltanks gesammelt und danach in der Regel nach einer vorhergehenden Trocknung ohne weitere Fixierung in Abschirmbehältern verpackt und zwischengelagert /1/. Alternative Konditionierungsverfahren wie Zementieren, Bituminieren und Fixieren in Kunststoffen zum Zweck der Zwischenlagerung finden vor allem im Ausland Anwendung /2/, /3/.

In einem zukünftigen deutschen Endlager für radioaktive Abfallstoffe sollen nach Möglichkeit keine organischen und brennbaren Substanzen eingebracht werden, um chemische, bakterielle und radiolytische Umwandlungs- oder Zersetzungsprozesse mit der Folge eines nicht auszuschließenden Aktivitätstransportes weitestgehend zu unterbinden. Daraus ergibt sich die Notwendigkeit, derartige Abfallarten durch geeignete Behandlungsverfahren in eine nicht brennbare bzw. anorganische Form zu überführen. Die Ionenaustauscherharze, die eine brennbare und organische Gerüstsubstanz aus Polystyrol besitzen, sollen durch Verbrennung in eine anorganische Form überführt werden. Bisher ist es jedoch noch nicht gelungen, ein geeignetes Verbrennungsverfahren zu finden. Versuche, Austauscherharze mit statischen Verbrennungsverfahren (z.B. in Schachtföfen) zu verbrennen, erbrachten nicht den gewünschten Erfolg /4/, /5/. Als aussichtsreicher könnten sich dynamische Verfahren erweisen, wobei insbesondere das Verfahren der Sprühinjektionsverbrennung zu nennen wäre. In Japan wurden zu diesem Verfahren experimentelle Untersuchungen durchgeführt, bei denen unverbrauchte Pulverharze in Wasser als Trägermedium suspendiert wurden /6/. Die Zerstäubung der Suspension und Aufnahme in einen Verbrennungsraum erfolgte mit einer Zweistoffdüse, wie sie auch bei der Verbrennung von Kohle-Wassersuspensionen eingesetzt wird.

1.2 Zielsetzung und Abgrenzung der Arbeit

Aufbauend auf diesen ersten erfolgversprechenden Ergebnissen soll hier untersucht werden, ob eine entsprechende verfahrenstechnische Behandlung der in deutschen Kernkraftwerken anfallenden Ionenaustauscherharze möglich ist.

Mit Blick auf die Auslegung einer Sprühinjektions-Verbrennungsanlage sollen in dieser Arbeit die stoff- und suspensionsspezifischen sowie verfahrens- und apparatetechnischen Einflußgrößen und -parameter für den Verfahrensschritt des Zerstäubens von Pulverharzsuspensionen experimentell untersucht werden.

Da für die Verbrennung eine möglichst große Brennstoffoberfläche, d.h. eine feine Partikelverteilung der Harze wünschenswert ist und ein suspendiertes, feinverteiltes Partikelspektrum die Verstopfungsgefahr in einer Düse herabsetzt, sollen die Partikelverteilungen der anfallenden Harze ermittelt und das Zerkleinerungsverhalten, insbesondere das der gröber verteilten Kugelharze, untersucht werden. Wegen strahlenschutztechnischer Probleme, die sich aus der Aufkonzentrierung des Radioaktivitätsinventars im Verbrennungsrückstand der deutlich höher aktivitätsbeladenen Kugelharze ergeben könnten, wird bisher eine Verbrennung dieser Harze nicht in Betracht gezogen. Sofern ein einfaches Zerkleinerungsverfahren gefunden werden kann, könnten auch Kugelharze durch Mischen mit Pulverharzen möglicherweise einer Verbrennung zugeführt werden.

Um einen für die Verbrennung günstigen Sprühnebel zu erzeugen, dessen Tropfengrößenverteilung vergleichbar mit der der suspendierten Harzpartikeln sein sollte, sollen Untersuchungen zur Aufrechterhaltung fließfähiger Suspensionen mit möglichst hohen Feststoffgehalten durchgeführt werden. Die Untersuchungsergebnisse sollen Aufschluß darüber geben, welchen Einfluß die Partikelverteilung der zerkleinerten Harze selbst, eine thermische Vorbehandlung der Harze sowie die Zugabe geeigneter Additive auf die Viskosität bzw. die Fließfähigkeit haben. Da wässrige Suspensionen wegen ihres zu niedrigen Heizwertes nur durch zusätzliche Energiezufuhr (z.B. Stützflamme) verbrannt werden können, sollen auch andere Trägerflüssigkeiten, insbesondere organische in das Untersuchungsprogramm einbezogen werden.

Weiter sollen die Ergebnisse dieser Voruntersuchungen die notwendige stoffliche Datenbasis schaffen, um die wesentliche Zielsetzung der Klärung der technischen und verfahrenstechnischen Fragestellungen beim Schritt des Zerstäubens von harzbeladenen Suspensionen verfolgen zu können. In einer eigens dafür zu konzipierenden und aufzubauenden Laborzerstäubungsanlage sollen dabei durch eine entsprechende Meßinstrumentierung und Meßwerterfassung als geeignet erscheinende Düsenkonstruktionen hinsichtlich ihres Zerstäubungsverhaltens vergleichend untersucht und der für eine Sprühinjektion am besten geeignete Düsentyp ermittelt werden. Darüberhinaus sollen die Versuchsergebnisse Aussagen zulassen, mit welcher Trägerflüssigkeit und unter welchen verfahrenstechnischen Randbedingungen Harzsuspensionen feinverteilt, d.h. mit

möglichst großer Brennstoffoberfläche in einen Verbrennungsraum aufgegeben werden können.

Den Abschluß der Untersuchungen soll ein Sprühversuch bilden, bei dem unter Einstellung als geeignet ermittelter Prozeßparameter eine entsprechende Menge von radioaktiv beladenem Pulverharz aus dem Kernkraftwerk Krümmel eingesetzt wird. Damit soll nachgewiesen werden, daß die Ergebnisse der mit unverbrauchten Pulverharzen durchgeführten Untersuchungen auf echte Abfall-Pulverharze übertragbar sind.

Letztlich sollen die erzielten Untersuchungsergebnisse dazu dienen, den verfahrenstechnischen Schritt der Verbrennung zu planen. Unter Anwendung der Dimensionsanalyse läßt sich für die als geeignet ermittelte Düse eine überschlägige Berechnung der Tropfenverteilung charakterisierenden mittleren Tropfendurchmessers in Abhängigkeit von den als wesentlich ermittelten Einflußgrößen durchführen. Zusammen mit den zugrundeliegenden Stoffmengenströmen und einer Aufstellung der Stoffbilanzen könnte dann eine erste Abschätzung der Stoffaustauschvorgänge zur Konzipierung eines Verbrennungsraumes durchgeführt werden. Dies ist allerdings nicht mehr Gegenstand der vorliegenden Arbeit.

2. Ionenaustauscherharze als Betriebsmittel zur Aufbereitung und Reinigung verschiedener Wasserkreisläufe in Kernkraftwerken

Ionenaustauscherharze können als organische Feststoffe definiert werden, die positiv und negativ geladene Ionen enthalten und die Fähigkeit besitzen, diese gegen andere Ionen gleichen Ladungsvorzeichens auszutauschen. Aus Gründen der Elektroneutralität muß der Austauscher zur Kompensierung der Gerüstladung eine äquivalente Menge von Ionen entgegengesetzten Vorzeichens haben. Diese Gegenionen sind es, die gegen andere gleichen Ladungsvorzeichens ausgetauscht werden können. Bewegliche Ionen gleichen Ladungsvorzeichens wie die Festionen heißen Co-Ionen. Je nach Ladungsvorzeichen der Gegenionen unterscheidet man zwischen Kationen - und Anionenaustauscherharzen.

Die kernkraftspezifische Anwendung von Ionenaustauscherharzen basiert auf ihrer Fähigkeit, aus sehr verdünnten wässrigen Lösungen aktive und inaktive Ionen sowie Verunreinigungen aufzunehmen. Daher werden sie in Kernkraftwerken zur Verhinderung von Ablagerungen und zur Entfernung radioaktiver Verunreinigungen eingesetzt. Eine Regenerierung der Harze findet wegen ihrer radioaktiven Beladung nicht statt.

2.1 Struktureller Aufbau, physikalisch - chemische Eigenschaften und verfahrenstechnische Anforderungen

Aus der Vielzahl der angebotenen Ionenaustauschertypen haben sich in der Kerntechnik Harze auf Polystyrolbasis durchgesetzt /7/, die als Kationenaustauscher mit der starksauren Sulfosäuregruppe und als Anionenaustauscher mit der starkbasischen quaternären Ammoniumgruppe, sogenannte Typ-I- Harze, eingesetzt werden (s. Abb.2.1). Im Gegensatz zum hydrophoben Polystyrol sind die am Polystyrol-Molekül verankerten Festionen hydrophil. Querverbindungen zwischen den Polystyrol-Fadenmolekülen, gebildet aus dem Vernetzer Divinylbenzol, verhindern, daß das Polystyrol wegen dieser Festionen in Lösung geht.

Durch die Vernetzung erhalten die Harze außerdem eine stabile Struktur und sind unter Einwirkung von Wärme nicht verformbar /7/. Unter dem Einfluß von Strahlung behalten Anionenaustauscher bis zu einer Gesamtstrahlendosis von 10^4 Gy bis 10^5 Gy und Kationenaustauscher von 10^5 Gy bis 10^6 Gy eine ausreichende Beständigkeit und Austauschkapazität /8/. In der Praxis liegt die Strahlenbelastung von radioaktiv beladenen

Harzen deutlich niedriger, weil ihre Standzeiten durch andere Faktoren begrenzt werden /8/, /9/.

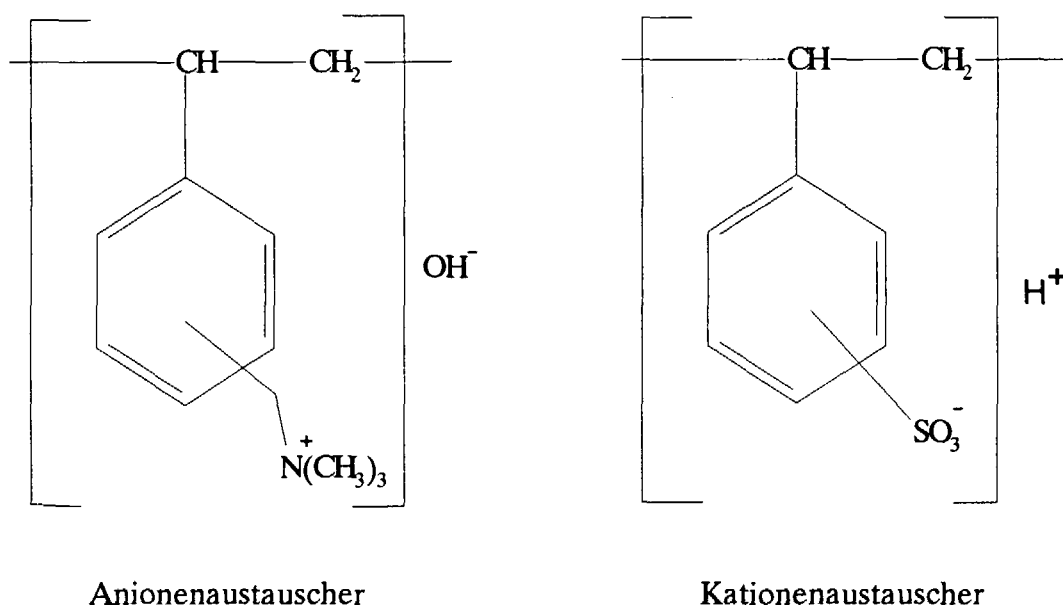


Abb. 2.1 Strukturformel von Anionen- und Kationenaustauscherharzen

Handelsübliche Polystyrolharze weisen einen Vernetzeranteil an Divinylbenzol (DVB) zwischen 2 und 12% auf /10/, wobei man zwischen makroporösen Harzen und Gel-Harzen unterscheidet. Bei Gel-Harzen steht dem Vorteil der höheren mechanischen und chemischen Festigkeit infolge eines hohen Vernetzungsgrades, d.h. eines hohen Gehalts an DVB, der Nachteil kleinerer Poren und somit geringerer Austauschfläche bzw. Gesamtkapazität entgegen. Makroporöse Harztypen weisen die Nachteile, die sich aus dem Vernetzungsgrad ergeben, nicht auf. Sie verhalten sich bezüglich ihres Ionenaustauschverhaltens wie wenig vernetzte Gel-Harze und bezüglich ihrer Stabilität wie hochvernetzte Gel-Harze.

Ein weiterer wichtiger Punkt hinsichtlich der Leistungscharakteristik von Ionenaustauscherharzen ist ihr geometrischer Strukturaufbau. Mit zunehmender Korngröße des Harzpartikels verkleinert sich die für die Wirksamkeit des Ionenaustausches maßgeblich mitbestimmende Harzoberfläche. Im gleichen Maße fällt auch der Druckverlust in den Ionenaustauscherharzfiltern. Umgekehrt steigt der Druckverlust mit abnehmender Korngröße. Die Folgen eines höheren Druckverlustes sind höhere Pumpenenergien sowie Harzverluste durch Kugelbruch. Bei einsetzendem Kugelbruch kann der Druckverlust über den Filtern unter Umständen so weit ansteigen, daß es zu einem Verschleiß ganzer Harzfüllungen kommt.

Wo die Reaktionsgeschwindigkeit des Austausches wichtig ist, wie z.B. in der Kondensatreinigung in SWR-Kernkraftwerken, muß in erster Linie ein Harz feiner Körnung verwendet werden. In der Regel werden deshalb in SWR-Kernkraftwerken die kleineren Pulverharze und in DWR-Kernkraftwerken, wo die Ionenaustauschgeschwindigkeit weniger wichtig ist, die größeren Kugelharze eingesetzt.

2.2 Ausführungsformen, jährlich anfallende Verbrauchs- bzw. Abfallmengen und deren spezifische Radioaktivitätsinventare

2.2.1 Pulverharze aus dem SWR-Kraftwerksbetrieb

In der Reaktorwasser- und Brennelemente-Lagerbeckenreinigung von SWR-Kernkraftwerken haben sich Anschwemmfilter mit Pulverharzen als zweckmäßig erwiesen. Die große Oberfläche der pulverförmigen Harze erhöht die Reaktionsgeschwindigkeit für den Ionenaustausch, und das dünne homogene Gefüge der Anschwemmschicht zeigt eine ausgezeichnete Filterwirkung bei geringem Druckverlust.

Zu der sehr guten mechanischen Filtrationsschärfe eines Anschwemmfilters kommt noch die Abscheidung durch elektrostatische Kräfte hinzu, durch die auch kolloidal gelöste Teilchen abgeschieden werden. Die Trenngrenze zwischen gelösten und ungelösten Verunreinigungen wird damit beinahe geschlossen.

Zur Vermeidung von Rißbildungen in der Anschwemmschicht wird eine Deckschicht aus einem Inertmaterial aufgebracht /11/ - /15/. Als besonders geeignet hat sich das von der Firma Bayer unter dem Handelsnamen Lewasorb AF 2 KR vertriebene Polyacrylnitrilfaserprodukt (PAN-Fasern) erwiesen.

In den Tabellen 2.1 und 2.2 sind die jährlich anfallenden Pulverharzmengen aus deutschen Kernkraftwerken mit Siedewasserreaktoren aufgeführt /2/ /16/.

SWR- Kernkraftwerk	Nennleistung MW (elektr.)	Menge		Aktivität Bq/kg
		kg/a	m ³ /a	
KKI-1 Isar/Ohu	907	13250	18.6	2.6 E7
		2915	4.1	1.0 E8 - 1.6 E8
		1620	2.3	2.6 E8 - 5.2 E9
		-----	-----	
Summe		17785	25.0	
KKB Brunsbüttel	806	8000-10500	20	1.1 E8 - 6.0 E8
KKW Würgassen	670	10000	20.0	5.0 E6 - 4.0 E8
		1000	2.0	2.0 E8 - 8.0 E8
		500	1.0	4.3 E7 - 6.5 E7
		-----	-----	
Summe		11500	23.0	
KKP-1 Philippsburg	900	34000*	80.0	3.2 E7
		1750	2.5	2.9 E10
		10000	2.5	2.3 E8
		-----	-----	
Summe		45750	85	
KKK Krümmel	1316	9500	17.0	7.2 E7 - 3.0 E8 größter Teil < 7.7 E7
KRB-B+C Grundremmingen	je 1300	5300	14.4	3.2 E9 - 4.6 E9
Summe gesamt pro Jahr	7199	97835 - 100335	184	

* Mischung 9:1; Pulverharze:Kieselgur

Tab. 2.1 Nennleistung sowie jährlich anfallende Menge und Aktivität an
Pulverharzen aus deutschen Kernkraftwerken mit Siedewasserreaktor
(Stand Ende 1991) /2/,/16/

<u>Reaktorwasserreinigung</u>	
Eingesetzte Menge:	zwei Kerzenfilter mit Pulverharzen (ca. 30 l)
Standzeit:	ca. 3 Wochen
Wechselkriterien:	Leitfähigkeit, erhöhter Differenzdruck, SiO ₂ -Konzentration im Primärkühlmittel
Aktivitätskonzentration:	3.7 E11 - 1.5 E12 Bq/m ³ (10 - 40 Ci/m ³)
<u>Lagerbeckenreinigung</u>	
Eingesetzte Menge:	zwei Plattenfilter mit Pulverharzen (ca. 30 l)
Standzeit:	ca. 8 Wochen
Wechselkriterien:	Leitfähigkeit, erhöhter Differenzdruck
Aktivitätskonzentration:	1.9 E11 - 7.4 E11 Bq/m ³ (5 - 20 Ci/m ³)
<u>Kondensatreinigung</u>	
Eingesetzte Menge:	Anschwemmfilter (ca. 900 l Pulverharze)
Standzeit:	ca. 3 Wochen
Wechselkriterien:	Differenzdruck, Leitfähigkeit
Aktivitätskonzentration:	3.7 E10 - 1.5 E 11 Bq/m ³
<u>Kühlmittelreinigung</u>	(auch Abwasserreinigung)
Eingesetztes Volumen:	2 x 1800 l Kugelharze
Standzeit:	ca. 6 Monate
Wechselkriterien:	Leitfähigkeit, erhöhter Differenzdruck
Aktivitätskonzentration:	1,9 E10 - 1,9 E11 Bq/m ³ (0.5 - 5 Ci/m ³)

Tab. 2.2 Zusammenstellung anfallender Pulverharze für ein SWR - Kernkraftwerk der Leistungsklasse 1300 MWe (/17/ und /18/)

Die wichtigsten physikalisch-chemischen Eigenschaften verbrauchter Ionenaustauscher - Pulverharze sind in den Tabellen 2.3 und 2.4 zusammengestellt.

Aggregatzustand	Flüssig - fest, fließfähig
Dichte	1.0 - 1.2 g/cm ³
Schüttdichte (für nutschenfeuchtes Harz)	0.5 - 0.6 g/cm ³
Korngröße	Pulver: Durchmesser < 150 µm *
Restfeuchte	45 - 55 Gew.%; getrocknet : ca. 10 Gew.%
Struktur	Gel-Form
chemische Zusammensetzung	- Ionenaustauscher (= Polystyrolgerüst mit Sulfosäure- bzw. Aminogruppen) Mischungsverhältnis: Kationenaustauscher / Anionenaustauscher: 3/1 bis 1/1 (bezogen auf die Trockenmasse) ist von Kraftwerk zu Kraftwerk verschieden - Zusatzstoffe (z.B. Polyacrylnitrilfasern) Mischungsverhältnis bezogen auf die Trockenmasse: Pulverharze / Polyacrylnitrilfasern: 4/1 - kolloidale Korrosionsprodukte (Hämatite, Ferrite, Magnetite) - ionale Korrosionsprodukte (Co²⁺) - Spaltprodukte (Cs⁺, Sr²⁺, I⁻)
chemische Form der Inhalts- produkte (Aktivitätsträger)	- wasserlösliche Salze, Säure und Basen: ionische Bindung an Austauschergruppen, mit Säuren und Basen eluierbar - unlösliche Korrosionsprodukte, Schwebstoffe: elektrostatische Haftung an der Oberfläche der Ionenaustauscher, auslaugbar
Aktivitätskonzentration	1.9 E10 - 1.5 E12 Bq/m ³ (0.5 - 40 Ci/m ³)
Verhalten gegenüber Wasser	hohe Wasseraufnahmefähigkeit (Quellung) bei trockenen Harzen
thermisches Verhalten	brennbar; Zersetzung des Anionenaustauschers (Abspaltung von Aminen) bei 60 °C

* Pulverharzprodukte der Firma Bayer

Tab. 2.3 Physikalisch-chemische Eigenschaften verbrauchter Ionenaustauscher-
Pulverharze aus SWR (entnommen aus /18/)

Nuklid	Anteil der Gesamtaktivität in % *	Halbwertszeit $t_{1/2}$	Strahlungsart
H-3	1.1E-2	12.35 a	β^-
Mn-54	9E-1	312.2 d	ϵ, γ
Co-60	39	5.27 a	β^-, γ
Sr-90	6	28.8 a	β^-
I-129	4E-5	1.7E7 a	β^-, γ
Cs-134	14	2.06 a	β^-, γ
Cs-137	40	30.17 a	β^-, γ
Gesamt- α	2.5E-5		

* Abfallalter 2 Jahre

Tab. 2.4 Mittlere, typische Aktivitätsverteilung relevanter Nuklide bei verbrauchten Pulverharzen aus SWR (entnommen aus /18/)

2.2.2 Kugelharze aus dem DWR-Kraftwerksbetrieb

Verbrauchte Kugelharze fallen in DWR-Kernkraftwerken in der Kühlmittelreinigung, Brennelemente-Lagerbeckenreinigung, Kühlmittelaufbereitung und Kondensatreinigung an.

Die eingesetzten Kationen- und Anionenaustauscher sind üblicherweise stark saure Kationen- bzw. stark basische Anionenaustauscher im Mengenverhältnis 2:1 bis 1:2. Hauptsächlich werden makroporöse Harze verwendet, die bei hinreichender mechanischer Festigkeit Standzeiten von bis zu 3 Jahren ermöglichen.

Die in Mischbettfiltern befindlichen Kugelharze haben die Aufgabe ional gelöste Spaltprodukte (z.B. Cs^+ , Sr^{2+} , I^-) sowie Metallionen (z.B. Co^{2+} , Ni^{2+} , Fe^{2+} , $\text{Fe}^{2+/3+}$), chemisch zu binden. Während die Spaltprodukte aus defekten Brennstäben freigesetzt werden, stammen die z. T. als Aktivierungsprodukte (z. B. Co 60) anfallenden Metallionen aus der Korrosion von Strukturwerkstoffen.

Darüber hinaus üben Kugelharze auch einen mechanischen Reinigungseffekt aus, da sich an ihrer Oberfläche Schwebstoffe niederschlagen.

Aus Tabelle 2.5 geht hervor, mit welchen Mengen an radioaktiv kontaminierten Kugelharzen jährlich in der BR Deutschland zu rechnen ist.

DWR-Kernkraftwerk	Nennleistung MW (elektrisch)	anfallende Menge Ionenaustauscherharze m ³ /a
KWO Obrigheim	357	ca. 1.0
KKS Stade	672	ca. 1.5
KWB-A Biblis	1204	ca. 3.0
KWB-B Biblis	1300	ca. 3.0
GKN-1 Neckarwestheim	855	ca. 2.0
KKU Unterweser/Esenshamm	1300	ca. 3.0
KKG Grafenrheinfeld	1300	ca. 3.0
KWG Grohnde	1366	ca. 3.0
KKP-2 Philippsburg	1346	ca. 3.0
KBR Brokdorf	1395	ca. 3.0
KKI-2 Isar/Ohu	1390	ca. 3.0
KKE Emsland	1300	ca. 3.0
GKN-2 Neckarwestheim	1314	ca. 3.0
Summe gesamt pro Jahr	15099	ca. 38

Tab. 2.5 Nennleistung und jährlich anfallende Menge an Ionenaustauscherharzen aus deutschen Kernkraftwerken mit Druckwasserreaktor (Stand Ende 1988)
entnommen aus /2/ und /16/

Nuklid	Anteil der Gesamtaktivität in % *	Halbwertszeit $t_{1/2}$	Strahlungsart
H-3	1,5E-2	12.35 a	β^-
Mn-54	8E-1	312.2 d	ϵ, γ
Co-60	19	5.27 a	β^-, γ
Sr-90	2	28.8 a	β^-
I-129	1E-3	1.7E7 a	β^-, γ
Cs-134	10	206 a	β^-, γ
Cs-137	68	30.17 a	β^-, γ
Gesamt- α	2.5E-4		

* Abfallalter 2 Jahre

Tab. 2.6 Mittlere, typische Aktivitätsverteilung relevanter Nuklide bei verbrauchten Kugelharzen aus DWR (entnommen aus /18/)

Die wesentlichen physikalisch chemischen Eigenschaften verbrauchter Ionenaustauscherharze aus der Primärkühlkreislauf- und Lagerbeckenreinigung eines DWR-Reaktors sind in Tab. 2.6 und 2.7 zusammengestellt.

Aggregatzustand	Flüssig - fest, fließfähig
Dichte	1.05 - 1.3 g/cm ³
Schüttdichte (für nutschenfeuchtes Harz)	0.65 - 0.9 g/cm ³
Korngröße	0.3 - 1.2 mm; durchschnittlich: 0.5 - 0.8 mm
Restfeuchte	40 - 55 Gew.%; getrocknet : 1 - 10 Gew.% (80°C)
Struktur	makroporös
chemische Zusammensetzung	- Ionenaustauscher (= Polystyrolgerüst mit Sulfosäure- bzw. Aminogruppen) - Mischungsverhältnis: 2:1 bis 1:2 - Li- und Borationen - kolloidale Korrosionsprodukte (Hämatite, Ferrite, Magnetite) - ionale Korrosionsprodukte (Co²⁺) - Spaltprodukte (Cs⁺, Sr²⁺, I⁻)
chemische Form der Inhalts- produkte (Aktivitätsträger)	- wasserlösliche Salze, Säure und Basen: ionische Bindung an Austauscherguppen, mit Säuren und Basen eluierbar - unlösliche Korrosionsprodukte, Schwebstoffe: elektrostatische Haftung an der Oberfläche der Ionenaustauscher, auslaugbar
Aktivitätskonzentration	3.7 E11 - 1.5 E13 Bq/m ³ (10 - 400 Ci/m ³)
Verhalten gegenüber Wasser	hohe Wasseraufnahmefähigkeit (Quellung) bei trockenen Harzen
thermisches Verhalten	brennbar; Zersetzung (Abspaltung von Aminen) bei 70 °C

Tab. 2.7 Physikalisch-chemische Eigenschaften verbrauchter Ionenaustauscher - Kugelharze aus DWR (entnommen aus /18/)

Die anfallenden Mengen, Herkunft und Aktivitätskonzentrationen von verbrauchten Kugelharzen sind für DWR-Kernkraftwerke der Leistungsklasse 1300 MWe aus /2/ entnommen und in Tab. 2.8 zusammengestellt.

<u>Kühlmittelaufbereitung</u>	
Eingesetztes Volumen:	600 l Kugelharze
Standzeit:	ca. 6 Monate
Wechselkriterien:	Li-, Cs-Durchbruch oder erhöhter Differenzdruck
Aktivitätskonzentration:	$3.7 \text{ E11} - 3.7 \text{ E12 Bq/m}^3$ ($10 - 100 \text{ Ci/m}^3$)
<u>Kühlmittelreinigung</u>	
Eingesetztes Volumen:	2 x 2000 l Kugelharze
Standzeit:	ca. 1.5 - 2 Jahre
Wechselkriterien:	Verfahrenstechnik, Dekontfaktoren für zu entziehendes Isotop, z.B. Li-7-Durchbruch, Differenzdruck
Aktivitätskonzentration:	$7.4 \text{ E11} - 1.5 \text{ E13 Bq/m}^3$ ($20 - 400 \text{ Ci/m}^3$)
<u>Lagerbeckenreinigung</u>	
Eingesetztes Volumen:	2000 l Kugelharze
Standzeit:	ca. 2 - 3 Jahre
Wechselkriterien:	Jod-, Cs-Durchbruch oder erhöhter Differenzdruck
Aktivitätskonzentration:	$3.7 \text{ E11} - 7.4 \text{ E12 Bq/m}^3$ ($10 - 200 \text{ Ci/m}^3$)
<u>Dampferzeugerabschlammmentsalzung</u>	
Eingesetzte Volumen:	2 x 3000 l Kugelharze
Standzeit:	abhängig von der Abschlammrate, der Dampferzeugerwasserqualität und Dampferzeugerleckagen
Wechselkriterien:	Kornzerfall, schlechtes Regenerieverhalten oder erhöhter Differenzdruck
Aktivitätskonzentration:	abhängig von Dampferzeugerleckagen
<u>Abwasseraufbereitung</u>	
Eingesetztes Volumen:	1200 l Kugelharze
Standzeit:	abhängig von Betriebsweise
Wechselkriterien:	Leitfähigkeit, erhöhter Differenzdruck
Aktivitätskonzentration:	abhängig von Betriebsweise

Tab. 2.8: Zusammenstellung anfallender Kugelharze für ein DWR-Kernkraftwerk der Leistungsklasse 1300 MWe (entnommen aus /2/)

3. Vorbehandlung von Ionenaustauscherharzen bzw. -suspensionen für den verfahrenstechnischen Schritt der Zerstäubung

3.1 Zerkleinerung von Ionenaustauscherharzen

In Mahlversuchen wurde das Zerkleinerungsverhalten von Pulverharzen und Kugelharzen untersucht. Beide Harztypen fallen im Kernkraftwerk als wässrige Aufschlämmung an, so daß sich ein Naßmahlverfahren für die Zerkleinerung anbietet. Aus der Vielzahl der auf dem Markt befindlichen Mühlen wurde eine mit Korundkugeln betriebene Planetenmühle der Firma Retsch verwendet.

3.1.1 Naßmahlversuche mit Pulverharzen

Als Untersuchungsmaterial wurden Pulverharze der Firma Bayer verwendet, die unter der Artikelbezeichnung Lewasorb A 10 (Kationenaustauscher) bzw. Lewasorb A 50 (Anionenaustauscher) in der Kerntechnik eingesetzt werden.

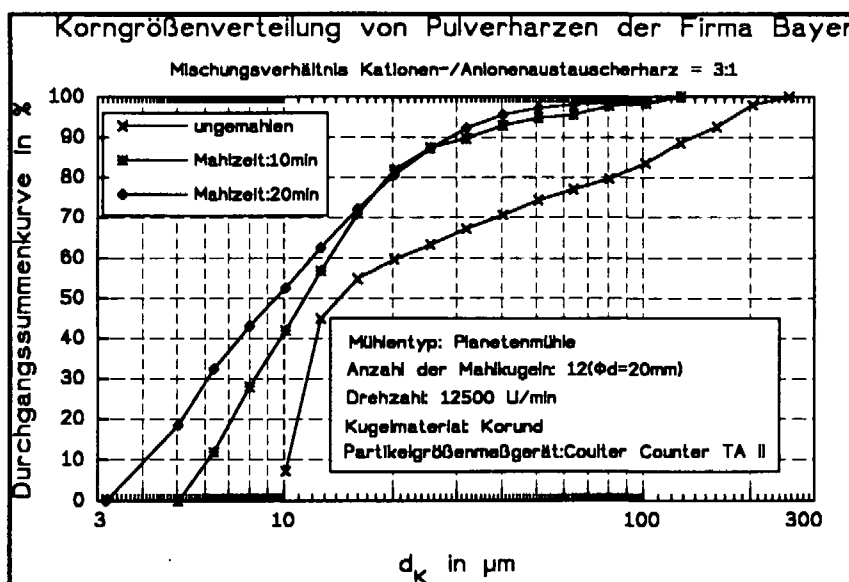


Abb. 3.1 Zerkleinerungsversuche mit Polystyrol-Pulverharzen in wässriger Lösung ($c_{\text{Wasser}} = 80 \text{ Gew.}\%$)

In Abb.3.1 sind die Korngrößenverteilungen von einer unzerkleinerten Probe und von zwei Proben, die 10 min bzw. 20 min lang gemahlen wurden, dargestellt. Die Partikelgrößenverteilungen wurden mit einem auf der Basis der elektrischen Widerstandsmessung arbeitenden Meßgerät (Coulter Counter) ermittelt. Wie zu ersehen ist, kann eine deutliche Zerkleinerungswirkung festgestellt werden. Lagen die größten Partikeln bei

den unzerkleinerten Proben noch bei etwa $250\ \mu\text{m}$, so reduzierte sich dieser Wert bei einer Mahlzeit von 10 min auf $130\ \mu\text{m}$ und bei 20 min Mahldauer auf $100\ \mu\text{m}$.

In zahlreichen weiteren Naßmahlversuchen konnte nachgewiesen werden, daß längere Mahlzeiten sowie kleinere Mahlkugeln nur unwesentlich zur Bildung kleinerer Korngrößen beitragen. Auf eine Darstellung der hierbei erzielten Ergebnisse wird deshalb verzichtet.

3.1.2 Naßmahlversuche mit Kugelharzen

In dieser Versuchsreihe sind ebenfalls Produkte der Firma Bayer verwendet worden. Die in Druckwasserreaktoren eingesetzten Kationen- (Lewatit S 100) und Anionenaustauscherharze (Lewatit M 500) wurden in wässriger Lösung im Verhältnis 1:1 suspendiert. In Abb. 3.2 sind die Ergebnisse eines Zerkleinerungsversuchs bei Mahlzeiten von 10 min und 20 min dargestellt.

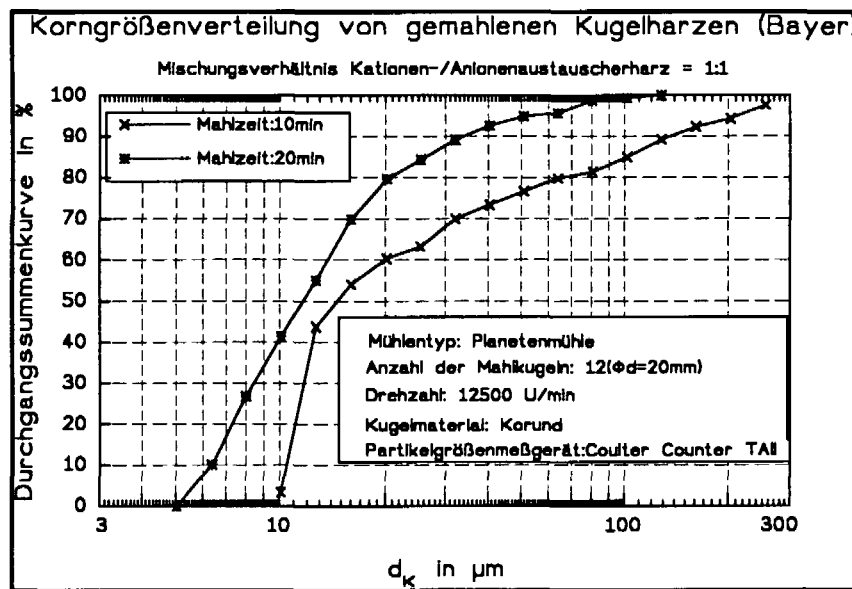


Abb.3.2 Zerkleinerungsversuche mit Polystyrol-Kugelharzen in wässriger Lösung ($c_{\text{Wasser}} = 80\ \text{Gew.}\%$)

Es wird deutlich, daß die Kugelharze mit einem geeigneten Mahlverfahren zerkleinert werden können. Da ihre mechanische Festigkeit erheblich höher ist als die der gelförmigen Pulverharze (s. auch Kap. 2.1), war dies nicht unbedingt zu erwarten. Der Korngrößenbereich unzerkleinerter Kugelharze liegt zwischen $300\ \mu\text{m}$ und $1250\ \mu\text{m}$. Der Hauptanteil liegt im Korngrößenbereich zwischen $500\ \mu\text{m}$ und $800\ \mu\text{m}$. Die nach 10 min Mahldauer ermittelte Korngrößenverteilung ist mit der von unzerkleinerten Pulverharzen vergleichbar. Nach einer Mahlzeit von 20 min entspricht die Korngrößenverteilung

der der Pulverharze nach 10 min Mahlzeit. Weitere Zerkleinerungsversuche zeigten, daß sich das Zerkleinerungsverhalten der gröberen Kugelharze nicht mehr von dem der chemisch vergleichbaren, feineren Pulverharze unterscheidet. Da die Kugelharze durch eine mechanische Zerkleinerung in eine Pulverform überführt werden können, sind die Versuchsergebnisse mit Pulverharzen auf zerkleinerte Kugelharze übertragbar.

3.2 Rheologische Untersuchungen an Pulverharzsuspensionen

Mit Blick auf den Zerstäubungsschritt wurden rheologische Untersuchungen an Pulverharzsuspensionen durchgeführt. Ziel war es herauszufinden, wie der Feststoffanteil in der Suspension unter Beibehaltung guter Fließeigenschaften gesteigert werden kann.

Vorversuche zeigten, daß das Fließverhalten durch die Art der Suspensionsherstellung beeinflußt werden kann. Bei der Verwendung oberflächenaktiver Substanzen wurden die besten Ergebnisse erzielt, wenn diese portionsweise untergerührt wurden. Unmittelbar vor den Viskositätsmessungen sind die Suspensionen jeweils zehn Minuten mit hoher Drehzahl gerührt worden. Geringere Viskositätswerte wurden auch gemessen, wenn tensidhaltige Suspensionen sehr intensiv über eine längere Zeitdauer gerührt wurden. Als Ursache hierfür ist anzunehmen, daß mit dieser Behandlung eine gleichmäßigere Tensidadsorptionsdichte auf den Harzpartikeln erreicht wird. Zur Reproduzierbarkeit der Ergebnisse wurden alle Suspensionen auf die gleiche Art und Weise zubereitet, indem die Additive mit einem Blattrührer in die vorgelegte Flüssigkeit eingerührt wurden.

Die Viskositäten der untersuchten Suspensionen wurden mit einem Rotationsviskosimeter der Firma Haake (Typ: RV 2) unter Verwendung des profilierten Zylinder-Meßsystems "MV II P" ermittelt. Durch die profilierten Oberflächen der beiden konzentrisch angeordneten Zylinder werden Randzoneneffekte, wie sie bei glatten Oberflächen beobachtet werden, verhindert. Durch Randzoneneffekte bildet sich ein Flüssigkeitsgleitfilm an den Wänden aus, der dazu führt, daß zu niedrige Viskositätswerte vorgetäuscht werden.

3.2.1. Pulverharzsuspensionen mit Wasser als Trägermedium

Der Schwerpunkt der rheologischen Untersuchungen wässriger Pulverharzsuspensionen lag in der Suche nach geeigneten Additiven. Ohne Additivzugabe würde man bei üblichen Mischungsverhältnissen von Kationen- zu Anionenaustauscherharzen (3:1 bis 1:1) schon ab Harzgehalten unter 20 Gew.% die Fließgrenze erreichen. Der Grund hierfür liegt sowohl in der hohen Wasseraufnahmefähigkeit der Ionenaustauscherharze als auch in der Bildung großflockiger Harzagglomerate, in denen sich Wassereinschlüsse bilden.

Abb. 3.3 zeigt die Viskositätsverläufe einer mit 15 Gew.% und einer mit 20 Gew.% Harzen beladenen wässrigen Pulverharzsuspension. Es ist deutlich das strukturviskose Verhalten wässriger Pulverharzsuspensionen zu erkennen. Strukturviskoses Verhalten liegt dann vor, wenn bei steigender Schergeschwindigkeit eine starke Viskositätsabnahme stattfindet. Der Grund dafür ist, daß bei zunehmender Schergeschwindigkeit die Harzflocken zerstört werden und sich die Partikeln so in Strömungsrichtung orientieren, daß sie benachbarten Strömungsschichten einen geringeren Widerstand entgegensetzen.

Das gewählte Mischungsverhältnis 3:1 von Kationen- zu Anionenaustauscher entspricht dem im Kernkraftwerk Phillipsburg. Kleinere Mischungsverhältnisse wie z.B im KK-Krümmel (Kationen-/Anionenaustauscher = 1.3 : 1) führen zu einer vermehrten Flockenbildung und somit auch zu höheren Viskositätswerten.

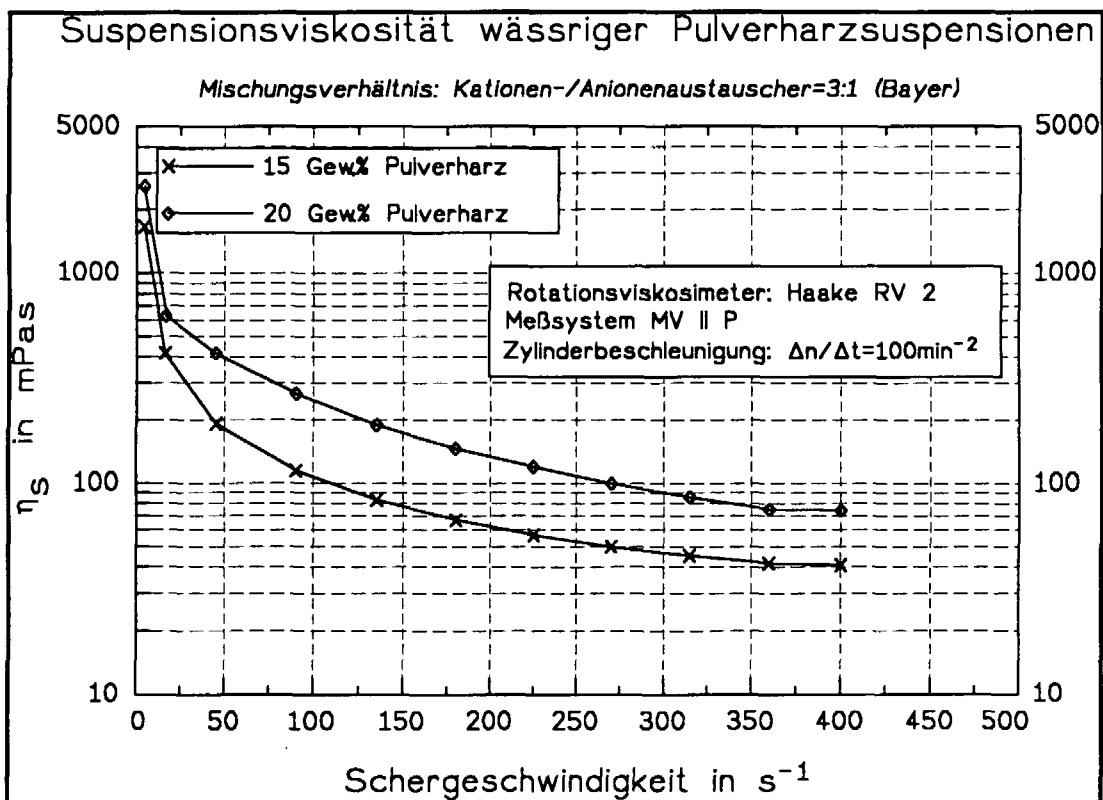


Abb. 3.3 Viskositäten von wässrigen mit unzerkleinerten Pulverharzen beladenen Suspensionen

Als Ergebnis der Viskositätsmessungen hat sich herausgestellt, daß oberhalb eines Viskositätswertes von etwa 300 mPas Suspension als nicht mehr fließfähige Schlämme vorliegen. Aus Abb. 3.3 wird ersichtlich, daß dieser Viskositätswertebereich bei einer Suspension mit 15 Gew.% Harzbeladung ab einer Schergeschwindigkeit von $D^* > 25 \text{ s}^{-1}$ bzw. bei 20 Gew.% Harzbeladung ab $D^* > 50 \text{ s}^{-1}$ unterschritten wird. Mit zunehmender

Schergeschwindigkeit nähern sich die beiden Viskositätsverläufe asymptotisch den Grenzwerten $\eta_s = 40 \text{ mPa s}$ (15 Gew.% Harzbeladung) bzw. $\eta_s = 70 \text{ mPa s}$ (20 Gew.% Harzbeladung). Für eine Verbrennungsanlage, die für Suspensionsdurchsätze zwischen 80 kg/h und 120 kg/h ausgelegt werden soll, liegen die Schergeschwindigkeiten selbst bei kleinen Rohrleitungen ($d < 6 \text{ mm}$) weit unterhalb eines Wertes von $D^* = 25 \text{ s}^{-1}$. Eine Verbrennung wässriger Pulverharzsuspensionen ohne Vorbehandlungsmaßnahmen ist deshalb nur bei höheren Wasserkonzentrationen möglich. Erst unterhalb einer Feststoffkonzentration von ca. 16 Gew.% lassen sich Suspensionen herstellen, die auch im unteren Schergeschwindigkeitsbereich ($D^* < 25 \text{ s}^{-1}$) fließfähig sind.

3.2.1.1 Additive und deren Einfluß auf die Fließfähigkeit und den Feststoffgehalt

Zur Herstellung nicht agglomerierender Pulverharzsuspensionen mit günstigen Fließeigenschaften bietet sich vor allem die Zugabe von Tensiden an.

Allgemein sind Tenside asymmetrisch aufgebaute chemische Substanzen, deren Moleküle aus einem hydrophilen und einem hydrophoben Teil bestehen. Dem Charakter des hydrophilen Teils nach unterscheidet man zwischen anionischen, kationischen, ampholytischen und nichtionischen Tensiden.

Das Tensidmolekül orientiert sich im Wasser so, daß der hydrophobe Teil der wässrigen Umgebung abgewandt ist, während der hydrophile Teil mit dem Wasser in Kontakt bleibt. Dieser Zustand wird durch Adsorption des Tensids an der Phasengrenze Feststoffpartikel/Wasser, bzw. Luft/Wasser oder durch Aggregation der Tensidmoleküle in der Lösung erreicht. Letztgenannte Gebilde werden Mizellen genannt und bestehen aus einer größeren Anzahl von Tensidmolekülen, die so orientiert sind, daß die hydrophilen Reste zur Wasserphase zeigen. Sie schirmen damit die hydrophoben Gruppen, die den Kern der Mizelle bilden, gegen die wässrige Umgebung ab. Die Bildung von Mizellen findet nur oberhalb einer als "kritische Mizellbildungskonzentration" (CMC) bezeichneten Konzentrationsgrenze statt /24/-/26/.

Bei den Untersuchungen zum Einfluß der Tenside auf die Fließfähigkeit und den Feststoffgehalt wässriger Pulverharzsuspensionen sind zwei Möglichkeiten verfolgt worden:

- 1) Ausnutzung des Effekts der sterischen Abstoßung und
- 2) Ausnutzung des Effekts der elektrostatischen Abstoßung

zu 1)

Die erste Möglichkeit stabile fließfähige Suspensionen herzustellen ist die Ausnutzung der sterischen Abstoßung durch Adsorption bestimmter nichtionischer Makromoleküle. Die Versuche mit den nichtionischen Tensiden (Nonylphenylpolyglycolether, Glycerinmonostearinsäureester, Polyvinylalkohol, Saccharose und Cocosfettalkohol) führten nicht zum gewünschten Ergebnis, d. h. es wurde keine meßbare Verbesserung der Fließeigenschaften erreicht. Der Grund hierfür ist darin zu sehen, daß die abstoßenden Kräfte der nichtionischen Tenside nicht ausreichen, um das Flockengemisch aus Kationen- und Anionenaustauscherharzen aufzutrennen.

zu 2)

Elektrostatische Abstoßungskräfte entstehen, wenn durch Adsorption ionischer Tenside zusätzliche Ladungen auf die Partikeloberfläche gebracht werden. Entsprechend ihrer gleichsinnigen Oberflächenladungen muß dem System Energie zugeführt werden, um zwei der Teilchen zusammenzubringen /19/ - /23/.

In Versuchen mit kationischen Tensiden (Cocosfettsäureamidoalkyldimethylaminoxid, Tricoctylphosphinoxid und vier anderen nicht näher spezifizierbaren kationischen Tensiden) konnten ebenfalls keine nennenswert niedrigeren Viskositätswerte ermittelt werden. Erst die Versuchsreihe mit anionischen Tensiden zeigte die erwünschten Resultate. Der Zusatz bestimmter Anionentenside zu einer Ionenaustauscherharz-Wasser-Mischung äußert sich schon bei niedriger Dosierung durch einen merklichen Rückgang der Viskosität.

Die Adsorption des Anionentensids erfolgt sowohl auf der positiv geladenen Oberfläche des Kationenaustauschers als auch auf der negativ geladenen Anionenaustauscheroberfläche. Wie bei der Mizellbildung orientiert sich der negativ geladene hydrophile Teil in Richtung Wasserphase, während der hydrophobe Teil sich auf der Harzpartikeloberfläche befindet. Damit entsteht neben den Ladungen, welche direkt auf der Harzoberfläche sitzen, in einer Entfernung, die der Länge eines ausgerichteten Tensidmoleküls entspricht, eine zusätzliche negative Ladungshülle. Dies führt dazu, daß die negative Oberflächenladung des Kationenaustauschers weiter verstärkt wird und der positiv geladene Anionenaustauscher sich mit steigender Tensidbedeckung ebenfalls wie ein Partikel mit negativer Oberflächenladung verhält.

In einer Rohrströmung überholen sich die einzelnen Teilchen unter der Wirkung der Schergeschwindigkeit. In einem System ohne Fließhilfsmittel stoßen die Partikel zusammen und müssen aneinander "abrutschen", um ihre Bewegung fortsetzen zu können. Hierfür muß Reibungsenergie aufgebracht werden, was sich makroskopisch in hohen

Viskositätswerten äußert. Durch den Zusatz von Anionentensiden wirken sich zwei Effekte positiv auf die Fließeigenschaften wässriger Pulverharzsuspensionen aus. Bedingt durch die einheitliche negative Oberflächenladung der Harzpartikeln lösen sich die Harzflocken auf und das in ihnen eingeschlossene Wasser wird freigesetzt. Der zweite viskositätsreduzierende Effekt tritt dadurch ein, daß die Teilchen nicht mehr zusammenstoßen, sondern vielmehr wie auf einem Schmierfilm aneinander abgleiten.

Wie man aus Abb. 3.4 erkennt macht sich bei den untersuchten anionischen Tensiden schon die Zugabe geringer Mengen in einem starken Rückgang der Suspensionsviskosität bemerkbar (s. Abb. 3.4). Mit zunehmender Tensidkonzentration erreicht die Viskosität einen Minimalwert und nimmt in der Regel im weiteren Verlauf wieder zu. Der Minimalwert stellt den schon angesprochenen kritischen Mizellbildungspunkt (CMC-Punkt) dar. Die in Abb. 3.4 angegebenen Tensidkonzentrationen entsprechen dem CMC-Punkt des jeweiligen Tensids. Für das besonders viskositätsreduzierende Tensid Naphtalintrisulfonsäure ist der CMC-Effekt in Abb. 3.5 dargestellt. Untersuchungen von Richter /23/ an Kohle-Wassersuspensionen haben gezeigt, daß der CMC-Punkt den für die Tensidadsorption auf der Kohlenstoffoberfläche begrenzenden Faktor darstellt. Die sich bei weiterer Tensidzugabe bildenden Mizellen sind nach Richter für den Anstieg der Viskosität verantwortlich, weil sie die Desorption von bereits an der Kohle adsorbierten Tensidmoleküle begünstigen.

Aus Abb. 3.4 geht weiter hervor, daß es durch Tensidzugabe möglich ist, bei 20 Gew.% Harzbeladung auch im Scherbereich $D^* < 50 \text{ s}^{-1}$ Viskositätswerte zu erzielen, die unterhalb der Fließgrenze liegen. Das wirkungsvollste Tensid ist danach Naphtalintrisulfonsäure (NTS). Ein Vergleich mit den gemessenen Werten einer unbehandelten Pulverharzsuspension zeigt, daß die Viskosität durch die Zugabe von 0.5 Gew.% Naphtalintrisulfonsäure bei einer Schergeschwindigkeit von $D^* = 5 \text{ s}^{-1}$ von knapp 3000 mPa s auf 170 mPa s reduziert werden kann. Für den Anwendungsfall bedeutet dies, daß auch bei geringen Strömungsgeschwindigkeiten und somit kleinen Schergeschwindigkeiten eine Suspensionsförderung möglich ist. Aus Gründen der Übersichtlichkeit werden nicht alle getesteten anionischen Tenside in Abb. 3.4 aufgeführt. Die viskositätsreduzierende Wirkung der nicht näher erläuterten Tenside Naphtalinsulfonsäure, C_{14}/C_{16} - α -Olefinsulfonat und eines C_{15} -Alkansulfonats lagen alle im Bereich zwischen Dioctylsulfosuccinat und Dodecylsulfat.

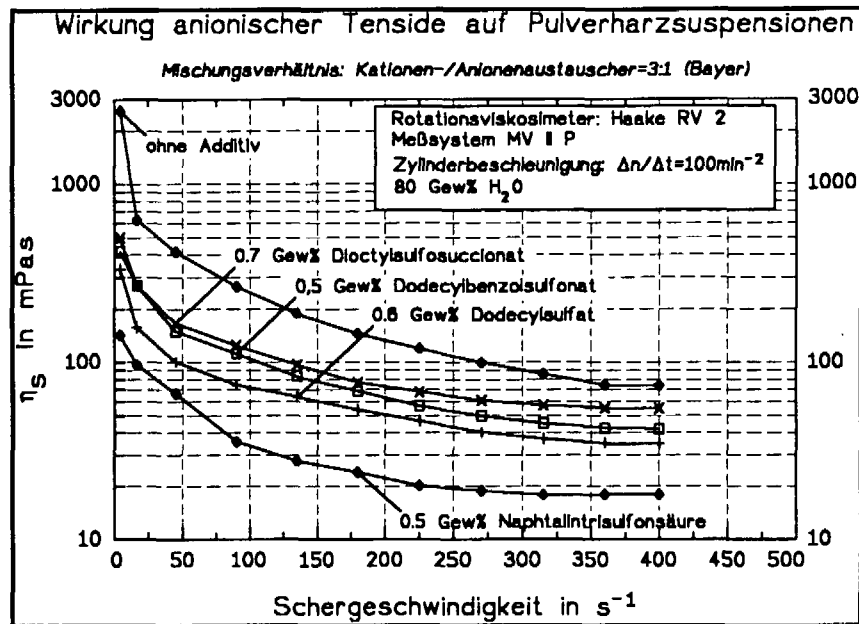


Abb. 3.4 Viskositätsreduzierende Wirkung verschiedener anionischer Tenside

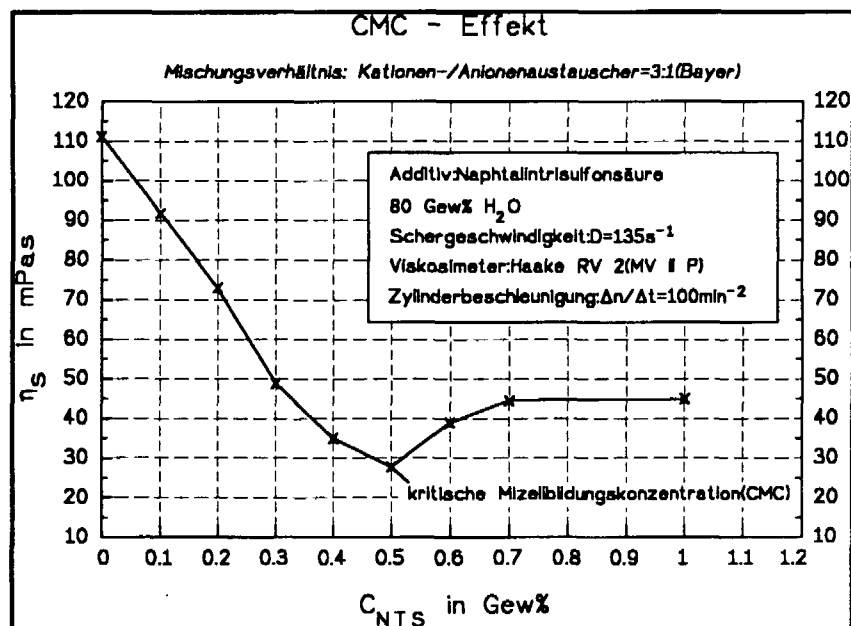


Abb. 3.5 Darstellung des CMC-Effekts am Beispiel von Naphtalintrisulfonsäure

Abb. 3.6 verdeutlicht die Wirkung von Naphtalintrisulfonsäure (NTS) auf unterschiedlich konzentrierte Pulverharzsuspensionen. Es ist abzulesen, daß durch die Zugabe von 5 Gew.% NTS fließfähige Suspensionen hergestellt werden können, die mit einer Harzbelastung von 27.5 Gew.% über ein Drittel mehr Pulverharze pro kg Suspension aufnehmen als eine gerade eben noch fließfähige Pulverharzsuspension ohne Tensideingabe (vgl. Abb. 3.3). Dabei besitzt die Suspension bei dieser hohen Konzentration annähernd newtonsche Eigenschaften, d.h. eine konstante Viskosität über dem gesamten

Scherbereich. Geringere NTS-Konzentrationen reichen bei der hohen Pulverharzkonzentration nicht aus, um die Fließfähigkeit herzustellen.

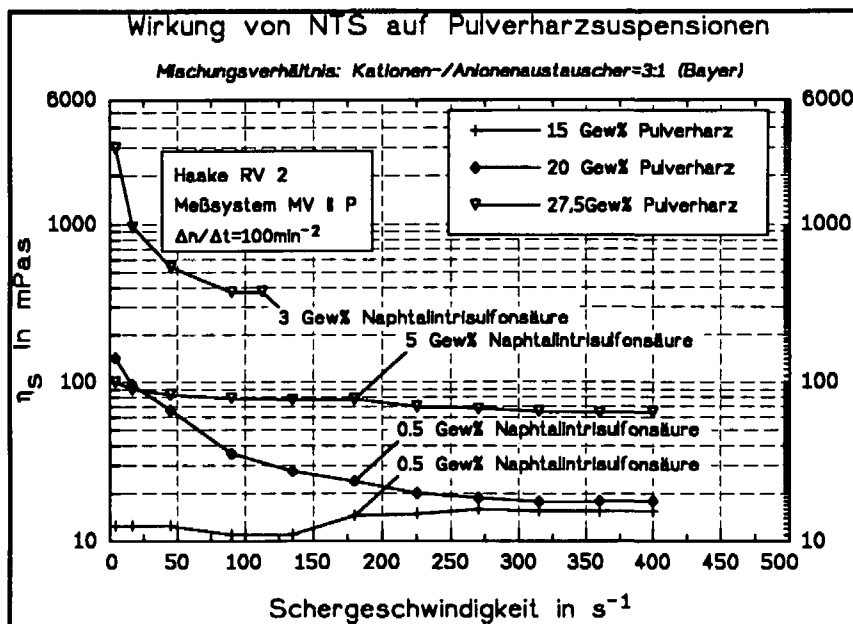


Abb. 3.6 Wirkung von Naphtalintrisulfonsäure (NTS) auf die Viskosität von wässrigen mit unzerkleinerten Pulverharzen beladenen Suspensionen in Abhängigkeit von der Pulverharzbeladung

3.2.1.2 Korngrößenspektrum und dessen Einfluß auf die Fließfähigkeit und den Feststoffgehalt

Die Viskosität einer Pulverharzsuspension ist im wesentlichen geprägt durch die Teilchen-Teilchen-Wechselwirkungen. Diese sind ihrerseits abhängig von den physikalisch-chemischen und den geometrischen Eigenschaften des Stoffsystems und damit auch von der Korngröße der suspendierten Partikel. Die Teilchen-Teilchen-Wechselwirkungen leiten sich in erster Linie aus den Stoß- und Reibungsenergien der Partikel ab und werden somit von der Größe der spezifischen Oberfläche beeinflusst. Da eine Reduzierung der Korngröße eine Zunahme dieser Fläche bewirkt, muß dies bei konstanter Feststoffkonzentration eine Erhöhung der Suspensionsviskosität mit sich bringen.

Bei einer Vergrößerung der spezifischen Oberfläche verstärken sich auch die Wechselwirkungen zwischen den Teilchen und der sie umgebenden Flüssigkeit. Je größer die spezifische Oberfläche, desto stärker ist auch die Wechselwirkung zwischen dem Trägermedium Wasser und den Harzpartikeln (Adsorption, Quellung), was sich ebenfalls in einem Anstieg der Viskosität äußert.

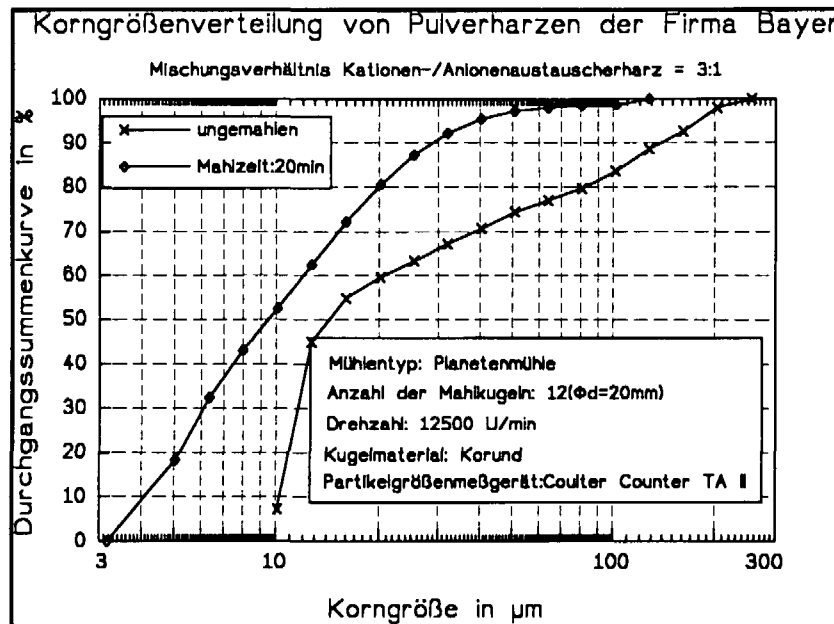


Abb. 3.7 Korngrößenverteilung zu den zerkleinerten Pulverharzen aus Abb.3.8

Abb. 3.8 verdeutlicht, welche Auswirkungen kleinere Korngrößen auf die Fließeigenschaften einer Suspension haben. Ohne Zugabe eines Tensids lassen sich oberhalb einer Konzentration von 15 Gew.% Pulverharzen keine fließfähigen Suspensionen mehr herstellen. Die bei dieser Konzentration gemessenen Viskositätswerte liegen deutlich über den Werten einer vergleichbaren mit unzerkleinerten Pulverharzen beladenen Suspension (vgl. Abb. 3.3).

Durch Adsorption von Tensiden werden die Oberflächenladungen der Harzteilchen und damit die abstoßenden Kräfte wesentlich verstärkt. Bei einer feineren Kornverteilung nimmt das Verhältnis Oberfläche / Volumen der Teilchen zu. Unter der Voraussetzung gleicher Belegungsdichte der Tenside auf der Oberfläche folgt mit abnehmender Partikelgröße eine größere Gesamtladung pro Teilchenvolumen. Eine Verkleinerung des mittleren Partikeldurchmessers hat zwar dann nach wie vor eine entsprechende Vergrößerung der spezifischen Oberfläche zur Folge, allerdings auch eine Verstärkung der abstoßenden Kräfte pro Teilchenvolumen, bedingt durch die zusätzliche Tensidadsorption. Daß die Suspensionsviskosität dadurch weniger stark zunimmt als dies ohne Tensidzusatz der Fall ist, geht ebenfalls aus Abb.3.8 hervor.

Vergleicht man z.B. Suspensionen mit 20 Gew.% zerkleinerten (s.Abb. 3.8) und mit unzerkleinerten Pulverharzen (s.Abb.3.6), so stellt man fest, daß die über der Schergeschwindigkeit aufgetragenen Suspensionsviskositäten bei einer Steigerung des NTS-Anteils von 0.5 Gew.% auf 3.5 Gew.% einen nahezu identischen Verlauf haben.

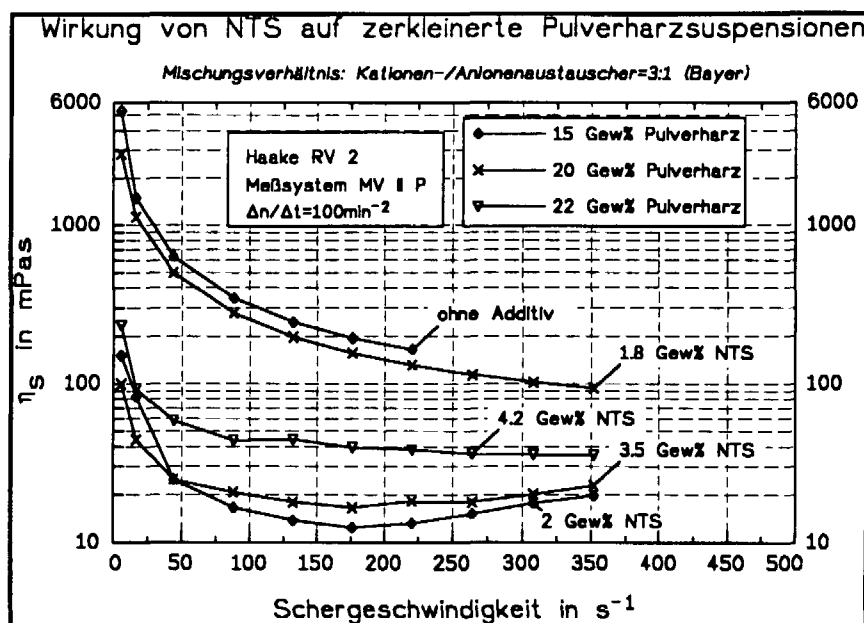


Abb.3.8 Viskositätsreduzierende Wirkung von NTS auf Suspensionen mit zerkleinerten Pulverharzen

Im Vergleich zu Suspensionen mit unzerkleinerten Harzen reduzierte sich indessen der Pulverharzanteil, bei dem unter Zugabe von NTS gerade noch eine fließfähige Suspension vorliegt, von 27.5 Gew.% auf 22 Gew.%(vgl. Abb. 3.8 und 3.6).

3.2.1.3 Thermische Vorbehandlung und deren Einfluß auf die Austauscherkapazität, die Fließfähigkeit und den Feststoffgehalt

Ab einer Temperatur von etwa 70°C beginnt bei starkbasischen Anionenaustauschern ein Kapazitätsverlust durch die Abspaltung von Trimethylamin. Die Abb. 3.9 und 3.10 zeigen die Abhängigkeit des Kapazitätsverlusts von der Trocknungstemperatur und der Trocknungszeit. Bei einer Trocknungstemperatur von 150°C und einer Trocknungszeit von 12 Stunden wird die Kapazität eines Anionenaustauschers um 100% abgebaut, d.h., daß die positive Oberflächenladung des Anionenaustauschers nicht mehr vorhanden ist und die für die Fließeigenschaften negative Flockenbildung ausbleibt.

Die Auswirkungen einer thermischen Vorbehandlung der Ionenaustauscherharze auf die Suspensionsviskosität werden in Abb. 3.11 dargestellt. Die Pulverharze sind vor dem Anrühren der Suspension bei einer Temperatur von 120°C über einen Zeitraum von 24 Stunden getrocknet worden. Dies entspricht genau der Trocknungstemperatur mit der die Harze den Walzentrocknerprozeß im KK-Krümmer durchlaufen. Beim Anrühren der Suspension war keine Flockenbildung erkennbar. Diese Beobachtung

äußert sich auch in den ermittelten niedrigen Viskositätsverläufen, die es ermöglichen, fließfähige Suspensionen bis zu einer Pulverharzbeladung von 29.3 Gew.% herzustellen.

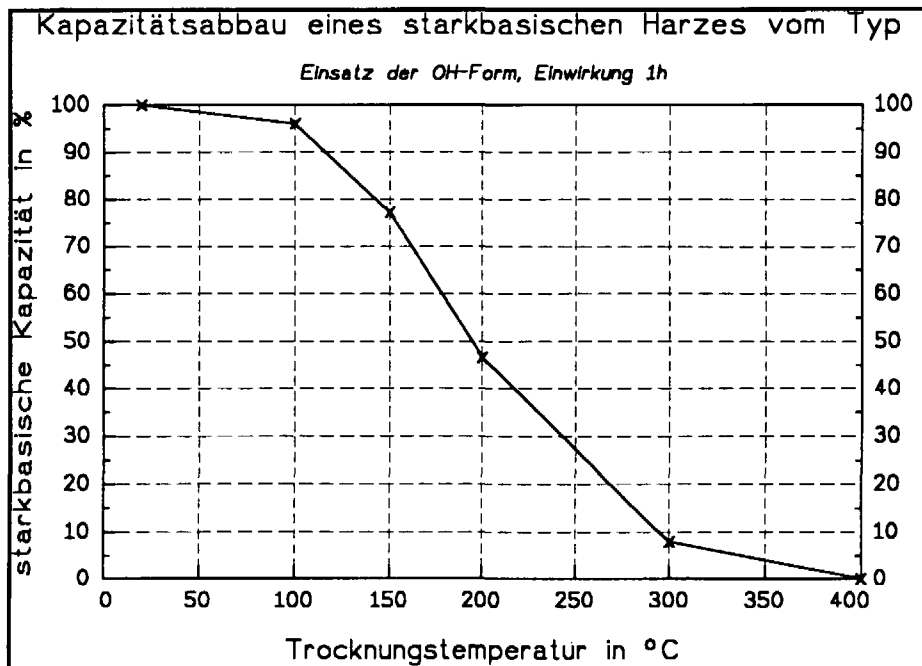


Abb. 3.9 Kapazitätsverlust des Anionenaustauschers in Abhängigkeit von der Trocknungstemperatur /27/

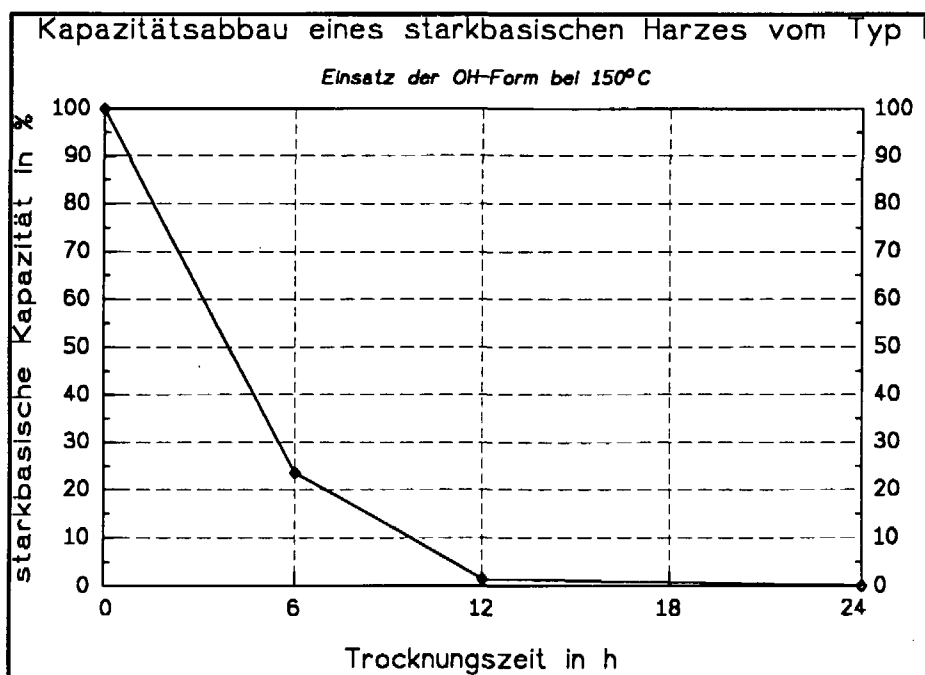


Abb. 3.10 Kapazitätsverlust des Anionenaustauschers in Abhängigkeit von der Trocknungszeit /27/

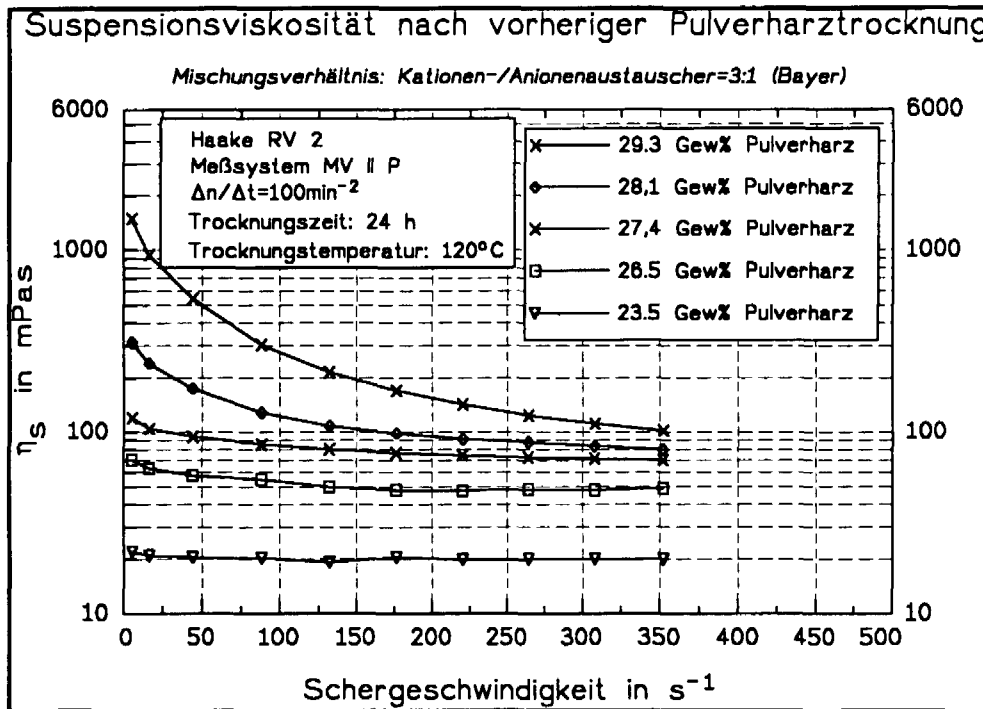


Abb.3.11 Viskosität wässriger Harzsuspensionen nach einer vorangegangenen Trocknung der Pulverharze

Der Vergleich zwischen den Viskositätswerten einer Suspension mit 27.4 Gew.% getrockneten Pulverharzen und einer Suspension mit 27.5 Gew.% Pulverharzen plus 5 Gew.% NTS zeigt einen nahezu identischen Kurvenverlauf (vgl. Abb. 3.6 und Abb. 3.11), was darauf hindeutet, daß auch im Fall der Tensidzugabe die Anziehungskräfte zwischen Kationen- und Anionenaustauscher weitgehend aufgehoben sind.

3.2.2 Pulverharzsuspensionen mit einem Rückstandsöl als Trägerflüssigkeit

Mit Blick auf die Verbrennung von Pulverharzsuspensionen ist Wasser aufgrund des fehlenden Energieinhalts als Ballaststoff zu bewerten. Geeigneter wäre ein organisches Trägermedium, das einen hohen Heizwert besitzt und möglichst nur aus Kohlenwasserstoffverbindungen mit einem hohen H/C-Verhältnis besteht. Ein solches Produkt ist das beim Gasöl-Hydrocrackprozeß anfallende Rückstandsöl.

3.2.2.1 Stoffwerte und Chemische Zusammensetzung des untersuchten Öls

Das Öl besteht zu mehr als 96 Gew.% aus Paraffinen und Naphtenen. Die Dichte des Öls beträgt bei einer Temperatur von 80°C $\rho_{\text{Öl}} = 805 \text{ kg/m}^3$. Entscheidend für eine Verbrennung bzw. eine Abgasreinigung ist, daß im Öl praktisch keine Schwefel- (< 50 ppm) und Stickstoffanteile (< 1 ppm) enthalten sind. In Analysen ist ein Brennwert von

46 340 kJ/kg und ein Heizwert von 43 278 kJ/kg ermittelt worden. Das H / C-Verhältnis beträgt ungefähr 2. Wegen des hohen Flammpunktes von 144°C bedarf es bei der Lagerung keiner besonderen Sicherheitsmaßnahmen. Da der Stockpunkt des Öls bei etwa 36°C liegt, sind rheologische Voruntersuchungen notwendig, um festzustellen bei welcher Temperatur sich optimale Fließeigenschaften einstellen.

T_L in °C	Wasser σ_A in N/m	Öl σ_A in N/m
20	0.0728	
30	0.0712	
40	0.0696	
50	0.0679	0.0290
60	0.0662	0.0275
70	0.0644	0.0270
80	0.0626	0.0265
90		0.0265

Tab. 3.1 Vergleich der Flüssigkeitsoberflächenspannungen in Abhängigkeit von der Temperatur

Eine für den Zerstäubungsprozeß wichtige Stoffgröße stellt die Flüssigkeitsoberflächenspannung σ_A dar. Je geringer ihr Wert ist, desto weniger Energie muß für die Zerstäubung aufgewendet werden. Aus Tab. 3.1 kann man entnehmen, daß die im Vergleich zum Wasser erheblich geringere Oberflächenspannung des Öls im untersuchten Bereich nur schwach temperaturabhängig ist.

Gegenüber der des Wassers ist die Viskosität des Öls stark temperaturabhängig. Aus Abb. 3.12 geht hervor, daß die Ölviskosität bei 40°C noch etwa 50 mPa s und im weiteren Verlauf bei 90°C nur noch 9 mPa s beträgt. Für die nachfolgenden Viskositätsuntersuchungen sind Temperaturen von 80°C ($\eta_{OL} = 11$ mPa s) gewählt worden. Noch höhere Temperaturen sind nicht sinnvoll, weil hierdurch weder die Fließeigenschaften des Öls wesentlich verbessert werden noch die für den Zerstäubungsvorgang wichtige Oberflächenspannung nennenswert reduziert wird.

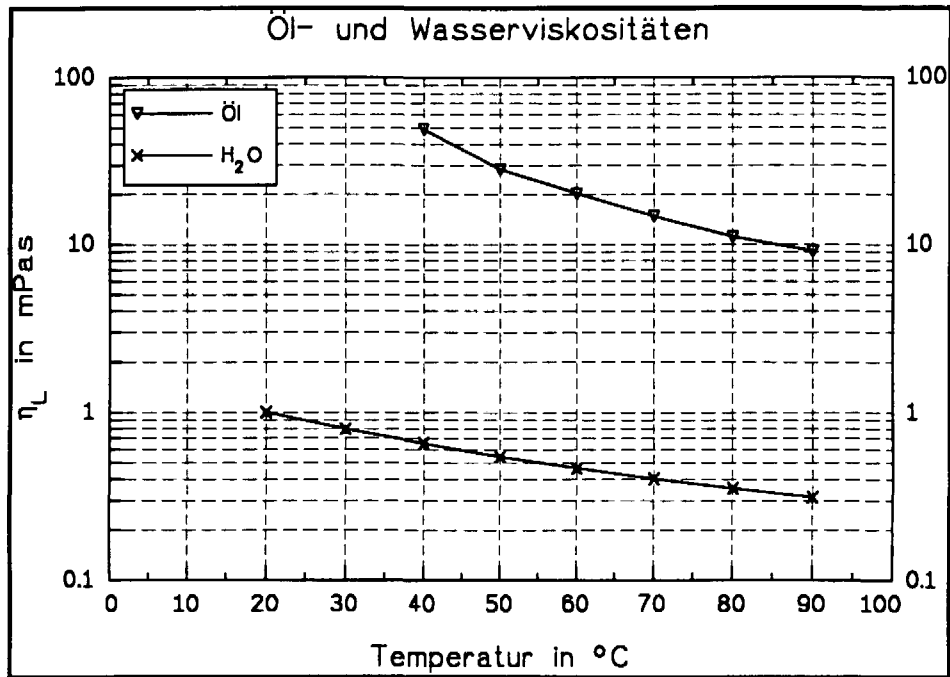


Abb.3.12 Vergleich der Flüssigkeitsviskositäten in Abhängigkeit von der Temperatur

3.2.2.1 Notwendigkeit einer thermischen Vorbehandlung der Harze

Vorbedingung für eine Zerstäubung öliger Pulverharzsuspensionen ist eine vorhergehende Trocknung der Harze. Feuchte Harze bilden zusammen mit dem Öl größere Agglomerate, die beim Zerstäuben zu Verstopfungen der Düse führen. Zur Vermeidung der Agglomeratbildung wurden die feuchten Harze vor Versuchsbeginn über einen Zeitraum von 24 Stunden bei einer Temperatur von 120°C getrocknet.

3.2.2.3 Fließeigenschaften von Pulverharz-Ölsuspensionen

Das rheologische Verhalten von Pulverharz-Öl-Suspensionen unterscheidet sich deutlich von demjenigen wässriger Suspensionen. Die Abhängigkeit der Viskosität vom Feststoffgehalt ist in Abb. 3.13 dargestellt. Da das Öl eine niedrigere Dichte (805 kg/m³ bei 80°C) als Wasser besitzt und die Ionenaustauscher aufgrund ihrer oleophoben Oberflächenstruktur kein Öl aufnehmen, sind in einer Ölsuspension erheblich höhere Feststoffbeladungen möglich. Pulverharzsuspensionen zeichnen sich verglichen mit Wasser durch einen stärkeren newtonschen Charakter aus. Wie man aus Abb. 3.13 gut erkennen kann, besitzt eine Suspension mit 34 Gew.% Pulverharzanteil noch quasi-newtonsche Eigenschaften. Erst bei einer weiteren Steigerung der Feststoffkonzentration lassen sich strukturviskose und thixotrope Effekte feststellen.

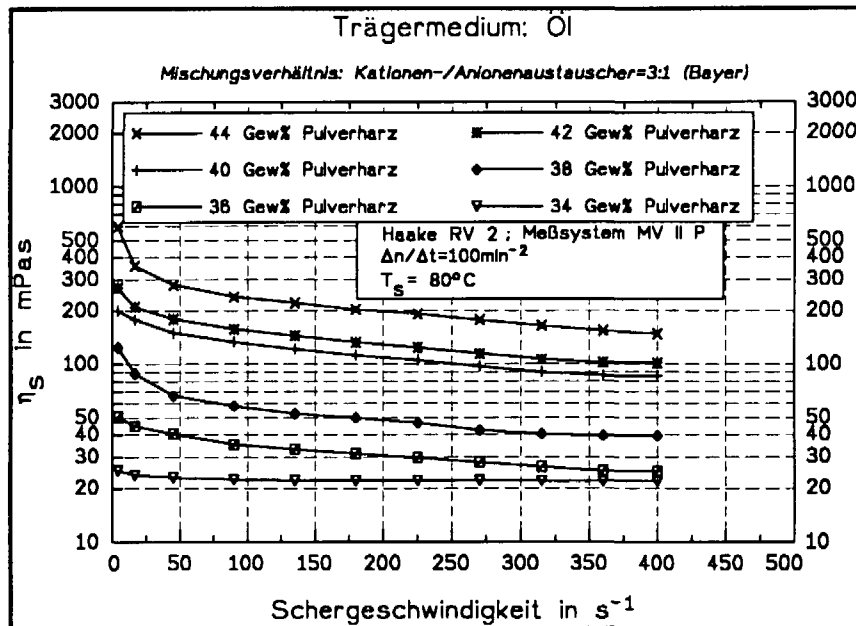


Abb. 3.13 Viskositäten von Pulverharzsuspensionen mit einem Öl als Trägermedium

3.2.2.4 Additive und deren Einfluß auf die Fließfähigkeit und den Feststoffgehalt

Mit verschiedenen aschelosen Detergentien auf Mineralölbasis (Paranox 24 (Exxon), Oloa 340R, Oloa219, Oloa 1200 (alle Chevron), Lubrizol 74, Lubrizol 6465, Lubrizol 65 sowie Lubrizol 6483 (alle Lubrizol)), deren Wirkung gleichfalls auf dem Effekt der elektrostatischen Abstoßung beruht, konnten bei Suspensionen mit einem bestimmten Feststoffgehalt nur geringfügig reduzierte Viskositätswerte gemessen werden. Weiterhin war bei deren Zugabe eine nennenswerte Erhöhung des Feststoffgehaltes unter Beibehaltung der Fließfähigkeit nicht mehr möglich, sodaß bei den Zerstäubungsversuchen auf eine Zugabe von Additiven verzichtet wurde.

4. Allgemeine Grundlagen zum Zerstäuben von Ionenaustauscherharz / Flüssigkeitsgemischen

Das Ziel der Zerstäubung ist, ein gegebenes Flüssigkeitsvolumen, in Tropfen von vorgeschriebenem Durchmesser aufzuteilen. Je kleiner die Tropfen sind, desto größer wird die erzeugte Oberfläche, die für die Durchführung vieler technischer Prozesse von Bedeutung ist. Für die Erzeugung der Oberfläche muß gegen die Oberflächenspannung σ_A Arbeit verrichtet werden. Diese Arbeit wird als Oberflächenenergie E_σ bezeichnet und ist definiert als:

$$E_\sigma = \frac{6 \sigma_A V}{d_{32}} \quad (4.1)$$

Bei der Zerstäubung einer Flüssigkeit mit dem Volumen V entstehen Tropfen der Anzahl z mit dem gleichwertigen Kugeldurchmesser (Sauterdurchmesser) d_{32} . Per Definition ist der Sauterdurchmesser der Durchmesser desjenigen angenommenen Tropfens, der das gleiche Volumen- / Oberflächenverhältnis hat wie alle Tropfen des Sprühnebels zusammengerechnet.

$$d_{32} = \frac{\sum n_i d_{Ti}^3}{\sum n_i d_{Ti}^2} \quad (4.2)$$

Die Oberflächenenergie stellt nur einen kleinen Teil der Zerstäubungsenergie dar, die zur Erzeugung von Tröpfchen mit dem Sauterdurchmesser d_{32} erforderlich ist. Bei der Zerstäubung wird nämlich gegenüber der Oberflächenenergie ein Mehrfaches an Energie in kinetische Energie der Tropfen (Translation, Rotation, Schwingungen), Reibungsenergie und elektrische Energie (elektrostatische Aufladung) umgewandelt. Das Verhältnis der Oberflächenenergie zur technischen Zerstäubungsenergie, der energetische Wirkungsgrad der Zerstäubung, ist mit 0.001 bis 0.01 sehr niedrig.

4.1 Düsen zur Suspensionszerstäubung

Das Zerstäuben von Feststoff / Flüssigkeits-Mischungen erfordert im Vergleich zur Zerstäubung reiner Flüssigkeiten Düsen, die ein Blockieren durch Feststoffpartikeln verhindern. Gleichzeitig soll der Verschleiß in der Düse infolge Abrasion durch eine für den Zerstäubungsprozeß günstige Führung des Suspensionsmassenstromes sowie durch die Auswahl eines geeigneten Düsenwerkstoffes möglichst unterbunden werden.

Die für die Zerstäubung von Suspensionen geeigneten Düsen lassen sich in zwei Gruppen unterteilen, die der Einstoff-Druckdüsen und die der Zweistoffdüsen (Pneumatische Düsen).

4.1.1 Einstoff-Druckdüsen (EDD)

Die Einstoff-Druckdüsen sind die am häufigsten eingesetzten Zerstäuber. Bei EDD wird die Druckenergie der Flüssigkeit in kinetische Energie am Düsenaustritt umgesetzt. Die Geometrie der Düse bestimmt den Wirkungsgrad der Umsetzung.

Die Aspekte des Blockierens und der Verschleißminimierung spielen bei der Auswahl einer geeigneten EDD eine große Rolle. Besteht die Aufgabe z.B. darin, eine Suspension in möglichst kleine Tropfen zu zerteilen, gerät man aufgrund des engen Regelbereiches von EDD in ein Dilemma. Einerseits wird der minimale Düsenquerschnitt durch die in der Suspension enthaltenen größten Feststoffpartikeln bestimmt und andererseits sind zum Erreichen guter Zerstäubungsergebnisse ausreichend hohe Strömungsgeschwindigkeiten notwendig. Da sich der Durchsatz proportional zur Wurzel des Düsen vordrucks verhält ($\dot{V}_s \sim \sqrt{\Delta p}$) ist bei einer Verdopplung des Düsendurchmessers D ein vierfach höherer Düsen vordruck notwendig, um die Austrittsgeschwindigkeit konstant zu halten. Bei großen Strömungsquerschnitten müssen hierfür große Pumpenleistungen bereitgestellt werden, was neben einem hohen Düsenverschleiß eine je nach Aufgabenstellung nicht mehr akzeptable Steigerung des Durchsatzes zur Folge hat.

Im Bereich der Suspensionszerstäubung findet insbesondere die einbaulose, tangential gespeiste Hohlkegel-Dralldüse (HKD) eine breite Anwendung, weil sie unter den EDD trotz der verhältnismäßig großen Querschnitte bei vergleichbaren Betriebsbedingungen die kleinsten Tropfen liefert [28].

Die Strömung in einer tangential gespeisten HKD ist durch das charakteristische Wirbelfeld innerhalb der Drallkammer gekennzeichnet. Die Suspensionsströmung wird in der Düse in so starke Rotation versetzt, daß sich um die Düsenachse ein gasgefüllter Hohlraum ausbildet. Bei einem hinreichend hohen Drall wird eine hyperbolische Flüssigkeitslamelle erzeugt, deren Dicke am Düsenaustritt nur einen Bruchteil des Düsenquerschnitts beträgt. Außerhalb der Düse zerfällt die Flüssigkeitslamelle durch das Zusammenwirken der gas- und flüssigkeitsseitig angreifenden Kräfte zu feinsten Tröpfchen. Die filmbildenden HKD arbeiten aufgrund der relativ freien Strömungsquerschnitte, die mit Ausnahme des Tangentialkanals vom Durchmesser D_E nicht vollständig mit Flüssigkeit gefüllt sind, in hohem Maße verstopfungsfrei.

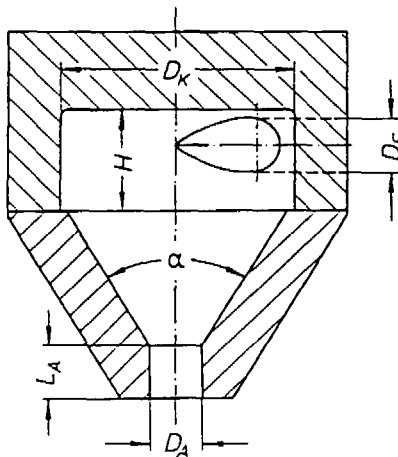


Abb. 4.1

Geometrie von Hohlkegel-Dralldüsen

Problematisch wird das Verdüsen von Suspensionen, wenn bei geringem Volumenstrom gleichzeitig feine Tropfen gefordert sind und die in der Mischung enthaltenen größten Feststoffpartikeln die Mindestgeometriegrößen vorgeben. Wie schon erwähnt wird bei einer Reduzierung des Düsenvordrucks die zur Bildung neuer Oberfläche benötigte kinetische Energie am Düsenaustritt quadratisch verringert.

4.1.2 Zweistoffdüsen

Bei den Zweistoffdüsen wird die zum Zerteilen notwendige Energie durch das Zerstäubergas geliefert. Trifft ein Gas auf eine Flüssigkeitsoberfläche mit ausreichender Relativgeschwindigkeit auf, so wird die Flüssigkeit beschleunigt und dabei zerteilt. Die Zerteilung tritt genau dann ein, wenn der Staudruck des Gases den Innendruck im Tropfen übersteigt. Das Verhältnis von Staudruck und Kapillardruck zu Beginn des Vorgangs ist die Gas-Weber-Zahl:

$$\text{We}_G = \frac{v_G^2 \rho_G d_T}{\sigma_A} \quad (4.3)$$

Im Unterschied zu den Einstoff-Druckdüsen arbeiten Zweistoffdüsen auch bei sich ändernden Volumenströmen noch zufriedenstellend. Sie erzeugen Sprühkegel ohne signifikanten Unterschied der Tropfengrößen in Kern- und Randzone. Besonders bei geringen Suspensionsmassenströmen und kleiner Viskosität sind mit Zweistoffdüsen enge Tropfengrößenverteilungen erreichbar. Dank ihres geringen Verschleißes und ihrer Unanfälligkeit gegen Verschmutzungen werden sie bevorzugt zum Zerstäuben von Suspensionen eingesetzt. Als wesentlicher Nachteil gegenüber den Druckdüsen sind der

geringe energetische Wirkungsgrad und die zusätzliche Bereitstellung von komprimierten Gasen zu nennen.

Je nach Bauart unterscheidet man zwischen Zweistoffdüsen mit äußerer Mischung und Düsen mit innerer Mischung.

4.1.2.1 Zweistoffdüsen mit äußerer Mischung

Den einfachsten Fall einer Zerstäuberdüse mit äußerer Mischung stellt die Rohrdüse, bei der sowohl der Austritt des Gases als auch derjenige der Flüssigkeit in Achsrichtung erfolgt, dar. Der Flüssigkeitskanal ist konzentrisch zu einem Gasringkanal angeordnet. Die unter Druck geförderte Feststoff / Flüssigkeitsmischung verläßt das Rohr als Suspensionsvollstrahl. Nach einer bestimmten Lauflänge erfolgt in der Atmosphäre der Zerfall zu Tropfen. Die für diesen Vorgang bestimmenden Parameter sind die Zähigkeitskraft der Suspension $\eta_s v_s D$, die Oberflächenkraft der Suspension $\sigma_A D$, die Trägheitskraft der Suspension $\rho_s v_s^2 D^2$ und die Trägheitskraft des umgebenden Gases $\rho_G v_G^2 D^2$, wobei D der Rohrdurchmesser ist. Die gerade Rohrdüse erfüllt zwar die Voraussetzungen einer verschleißfreien Suspensionsführung, das Erzeugen feiner Tropfen wird aber erst dann erfolgen, wenn die im turbulenten Suspensionsstrahl auftretenden Trägheitskräfte um mehrere Zehnerpotenzen größer sind als die Oberflächen- und Zähigkeitskräfte. Die hierzu erforderlichen Reynolds- und Weberzahlen, sind nur mit Strömungsgeschwindigkeiten in der Größenordnung der Schallausbreitungsgeschwindigkeit zu erreichen. Wegen der fehlenden Strahlurbulenz hochkonzentrierter und damit hochviskoser Suspensionen, die mit mäßiger Geschwindigkeit die Rohrdüse verlassen, überwiegt die Zähigkeitskraft der Suspensionen. Oberflächenkräfte und Trägheitskräfte sind nur von zweiter Ordnung. Zweistoffdüsen mit äußerer Mischung arbeiten umso wirkungsvoller, je größer die Strahloberfläche und damit die Angriffsfläche des Zerstäubungsgases und je geringer der von der Luft zu durchdringende Suspensionsstrahlquerschnitt ist.

4.1.2.1.1 External-Mix Flachstrahldüse

Die in Abb. 4.2 dargestellte "External-Mix-Flachstrahl.....1/4 J Düse" wird z. B. von der Firma Spraying Systems zum Zweck der Zerstäubung von hochviskosen Flüssigkeiten und abrasiven Suspensionen angeboten. Genau wie bei der einfachen Rohrdüse tritt die Suspension in Achsrichtung aus. Der Unterschied zur Rohrdüse besteht darin, daß das Zerstäubergas den Düsenaustritt durch zwei Bohrungen verläßt und unter einem Winkel von ca. 45° auf den Suspensionsvollstrahl trifft. Die Folge ist ein höherer Turbulenzgrad im Suspensionsstrahl und damit verbunden die Bildung feinerer Tropfen.

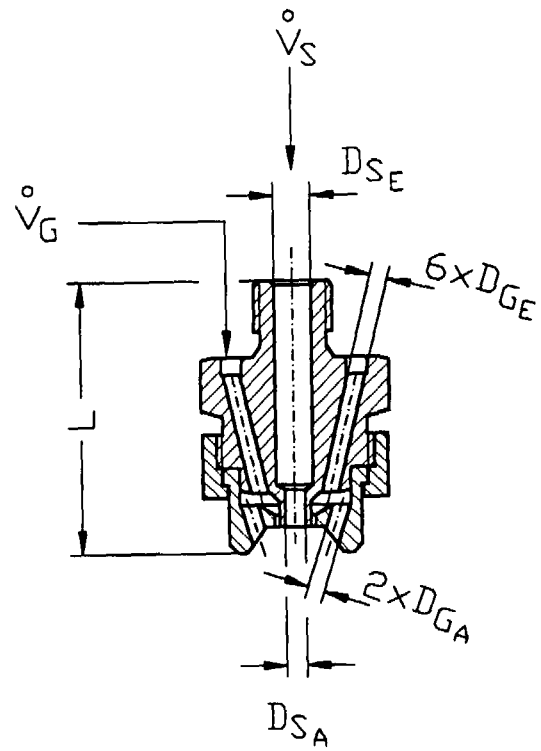


Abb. 4.2

External-Mix-Flachstrahldüse

4.1.2.1.2 KSD-Düse

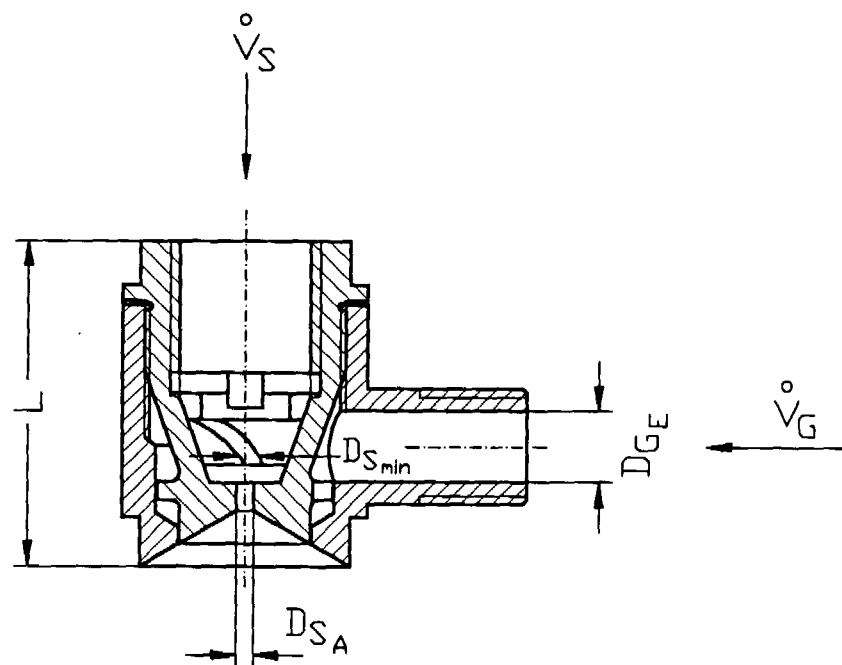


Abb. 4.3

KSD-Düse

In Abb. 4.3 ist die von der Firma Lechler entwickelte KSD-Düse dargestellt. Die speziell unter dem Gesichtspunkt der Zerstäubung viskoser Medien konzipierte Düse macht sich das Prinzip der Hohlkegel-Dralldüsen zu eigen. Durch einen Drallkörper innerhalb der Düse wird die Suspensionsströmung in so starke Rotation versetzt, daß die Suspension die Düse als hyperbolisch ausgebildeter Lamellenfilm verläßt. Wie bei den Hohlkegel-Dralldüsen ist die Lamellendicke wesentlich dünner als der durchströmte Düsenquerschnitt. Mit dem konzentrisch um die Suspensionslamelle angeordneten Gasstrom wird somit eine besonders wirkungsvolle Zerstäubung erzielt, weil durch die Filmbildung neben einer Vergrößerung der Suspensionsoberfläche auch eine Verringerung des vom Gasstrom zu durchdringenden Suspensionsstrahlquerschnitts erzeugt wird.

Voraussetzung für die Ausbildung eines Lamellenfilms sind keine zu hohen Suspensionsviskositäten. Hohe Viskositätswerte führen dazu, daß der Lamellenfilm zu einem Vollstrahl entartet und die KSD-Düse somit nur noch die Eigenschaft einer einfachen Rohrdüse besitzt.

4.1.2.2 Zweistoffdüsen mit innerer Mischung

Bei den Düsen mit innerer Mischung findet, wie der Name schon aussagt, die Vermischung von Suspension und Gas innerhalb der Düse statt. Mit dieser Form der Zerstäubung wird im allgemeinen die intensivste Durchmischung und somit auch der höchste Zerstäubungsgrad erzielt. Im Gegensatz zu den Düsen mit äußerer Mischung lassen sich bei den Düsen mit innerer Mischung Suspensions- und Gasdurchsatz nicht unabhängig voneinander einstellen, weil der Druck in der Mischkammer und somit der Differenzdruck für beide Teilströme vom Gesamtdurchsatz abhängt.

4.1.2.2.1 Überschall-Pneumatikzerstäuberdüse

In Abb. 4.4 ist die ebenfalls von der Firma Lechler entwickelte Überschall-Pneumatikzerstäuberdüse dargestellt. Große freie Querschnitte ermöglichen insbesondere die Zerstäubung von Flüssigkeiten mit Feststoffanteilen. Weitere Vorteile der großen Querschnitte sind ein wartungsfreier Betrieb mit geringen Funktionsstörungen sowie die Möglichkeit, die Düse über einen großen Volumenstrombereich zu regeln. Der große Regelbereich erlaubt es, die Flüssigkeitsmenge bei konstantem Luftvordruck den Verfahrensanforderungen optimal anzupassen. Aufgrund der intensiven Durchmischung von Gas und Suspension erzeugt die Düse extrem kleine Tropfen.

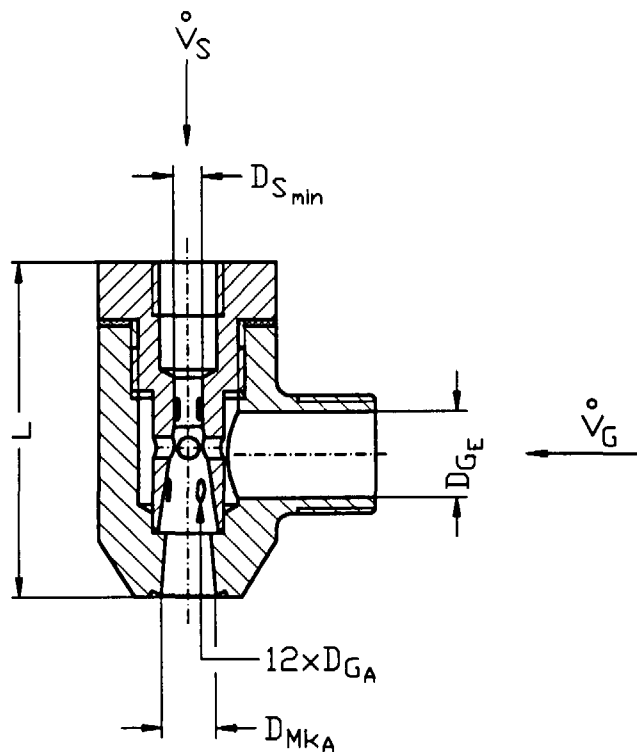


Abb. 4.4

Überschall-Pneumatikzerstäuberdüse

Die axial zugeführte Suspension wird vom Zerstäubungsgas durch radial zur Mischkammer angeordnete, in Strömungsrichtung aufeinanderfolgenden, Querbohrungen angeströmt. In der in Strömungsrichtung sich konisch weitenden Mischkammer findet sowohl eine Druckminderung als auch eine intensive Phasenmischung statt. Durch die der Mischkammer nachfolgenden Verengung erfolgt ein Drucksprung mit einer Geschwindigkeitsänderung auf Überschall und einer damit verbundenen zusätzlichen Feintropfenbildung. Im Anschluß an die Verengung passiert das Suspensions - Gasgemisch eine divergente Rohrstrecke. In diesem Abschnitt wird das Gemisch, ähnlich dem Lavalprinzip, ohne Vorentmischung zusätzlich beschleunigt. Der Strahl verläßt die Düse schließlich ohne Bildung von Grobtropfen.

Um eine möglichst feine Zerstäubung zu gewährleisten, empfiehlt es sich, den Suspensionsdruck gleich oder kleiner dem Luftdruck einzustellen. Zu kleine Suspensionsmengenstrom-Gasverhältnisse sollten jedoch im Interesse einer gleichmäßigen Verbrennung vermieden werden, weil die Suspension hierbei trotz einer sehr feinen Zerstäubung stoßartig die Düse verläßt.

4.1.2.2.2 Internal-Mix-Flachstrahldüse

Bei dieser Düsenform, die von der Firma Spraying Systems unter der Artikelbezeichnung "Luftzerstäubungsdüsen....Flachstrahl....1/4 J Düsen" vertrieben wird, tritt der Suspensionsstrahl aus einem zentralen Flüssigkeitskanal in eine Beschleunigungskam-

mer ein. Durch Einleiten des Zerstäubungsgases in die Kammer wird der Strahl beschleunigt durch die Düsenöffnung transportiert und zerteilt. Eine Vordispersion von Gas und Suspension innerhalb der Beschleunigungskammer findet nicht statt.

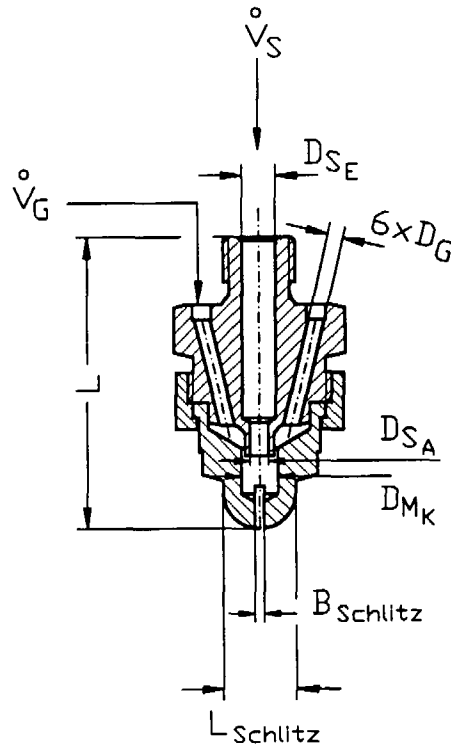


Abb. 4.5

Internal-Mix-Flachstrahldüse

Mit dieser Art der Zerstäubung ist es möglich, hochkonzentrierte und somit auch hochviskose Suspensionen derart zu beschleunigen, daß eine Strahl-turbulenz entsteht, die unmittelbar nach Austritt aus der Düsenöffnung zu einer sehr feinen Zerstäubung führt.

Je nach Geometrie des Düsenmundstückes können außer einem Flachstrahl- auch Vollkegel- oder Hohlkegelspritzbilder erzeugt werden.

4.2 Theoretische Grundlagen

4.2.1 Modellhafte Beschreibung des Zerstäubungsvorgangs

Sollen Feststoff-Suspensionen zum Ziel der Verbrennung zerstäubt werden, ist die Zusammensetzung der Tropfen von großer Bedeutung. Unabhängig von der gewählten Zerstäuberdüse stellt sich die Frage, ob das komplette Tropfengrößenspektrum tatsächlich aus Suspensionstropfen und / oder aus Tropfen des feststofffreien Trägermediums zuzüglich getrennt vorliegender Feststoffpartikeln besteht. Ein Modell möglicher Kollektivzustände beim Zerstäuben von Suspensionen für unterschiedliche Feststoffkonzentrationen und Feststoffpartikelgrößenverteilungen wird von Glaser /28/ gegeben

(s. Abb. 4.6). Eingegrenzt von der Tropfengrößenverteilung des reinen Trägermediums (a) und der Partikelgrößenverteilung des dispersen Feststoffes (g) existieren fünf denkbare Sprühnebelzusammensetzungen.

Der Zustand (b) beschreibt den Fall, daß die in einem niedrigviskosen Trägermedium dispergierten monodispersen Feststoffpartikeln größer sind als die vom Trägermedium gebildeten Tropfen. Der Sprühstrahl setzt sich dann aus voneinander getrennt vorliegenden Feststoffteilchen und Flüssigkeitstropfen zusammen. Mit zunehmendem Feststoffanteil verringert sich dann das freie Volumen der flüssigen Phase. Der hierdurch bedingte Zuwachs der Feststoffteilchen am zu zerstäubenden Gesamtvolumen bewirkt eine vermehrte Bildung kleinerer Flüssigkeitströpfchen. Steigt die Feststoffkonzentration weiter an, so können sich die Flüssigkeitströpfchen nur noch durch die auf der Partikeloberfläche verbliebene Flüssigkeit bilden, was dazu führt, daß dem Feststoffteilchen der Charakter eines Suspensionstropfens verloren geht.

Abb. 4.6 (c) und (d) veranschaulichen den Zustand monodisperser Feststoffpartikeln, die erheblich kleiner sind als die Mehrzahl der aus der Trägerflüssigkeit gebildeten Tropfen. Bei geringeren Feststoffkonzentrationen sind sowohl Suspensionstropfen als auch Flüssigkeitstropfen vorzufinden. Erst bei einer erhöhten Feststoffkonzentration (Zustand (d)) ist die Voraussetzung gegeben, daß das gesammte Sprühgebilde ausschließlich aus Suspensionstropfen besteht. Wenn die Trägerflüssigkeit nicht mehr in ausreichendem Maße vorhanden ist, vergrößert sich die Wahrscheinlichkeit, daß einzelne Feststoffpartikeln nur noch mit einem dünnen Flüssigkeitsfilm benetzt sind.

Niedrigkonzentrierte Suspensionen mit einer polydispersen Feststoffverteilung besitzen eine Sprühnebelzusammensetzung, die einer Überlagerung der Zustände (b) und (c) im unteren Konzentrationsbereich entspricht. Der in (e) dargestellte Sprühnebel setzt sich dementsprechend aus Flüssigkeits- und Suspensionstropfen sowie einzelnen nur schwach benetzten Feststoffpartikeln zusammen.

Das Ziel der Suspensionszerstäubung, aus einer Feststoff-/ Flüssigkeitsmischung eine definierte Sprühnebelzusammensetzung zu erzeugen, die der Partikelgrößenverteilung der Feststoffkomponente nahe kommt, ist in (f) dargestellt.

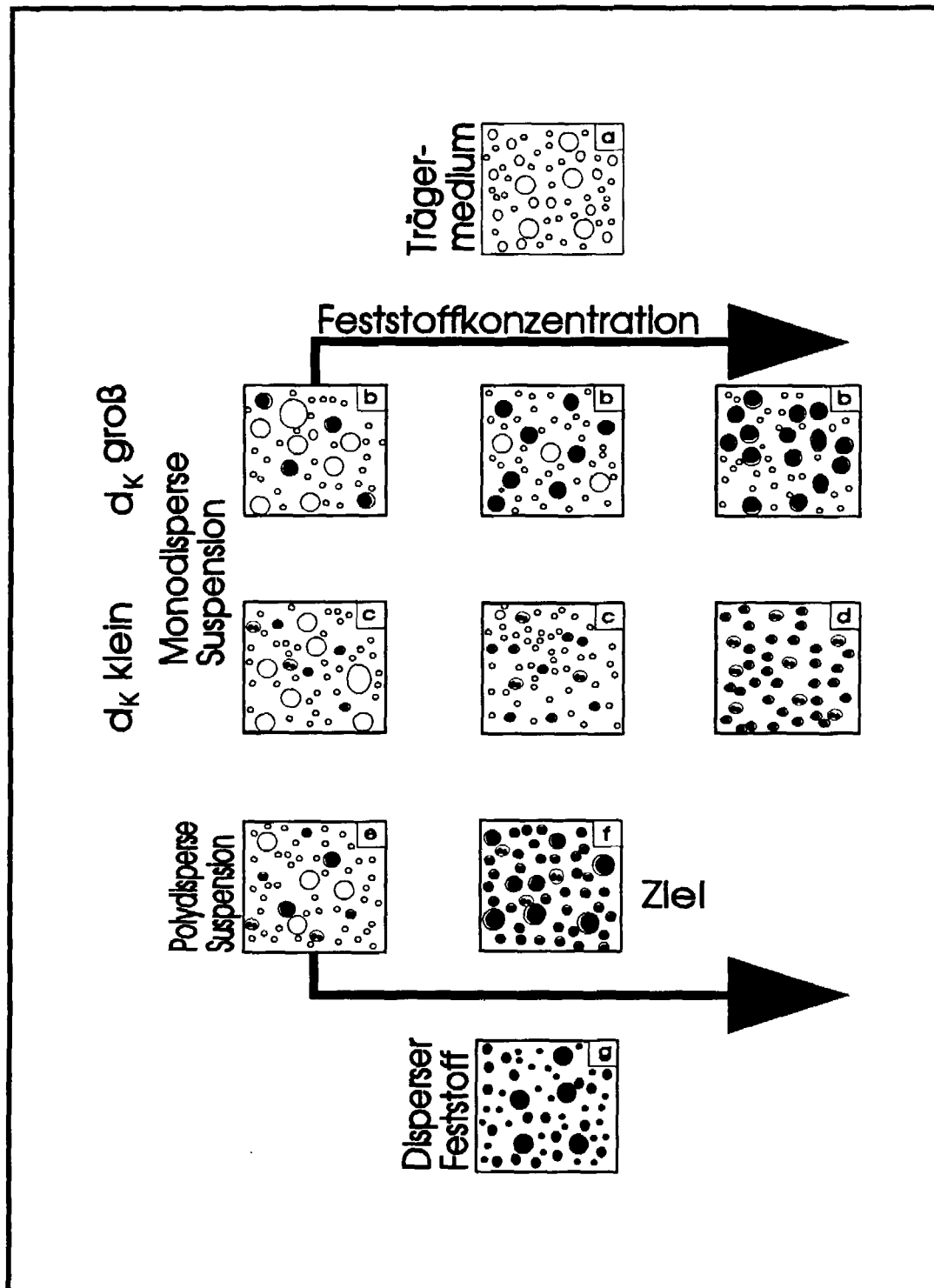


Abb. 4.6 Sprühnebelmodell der Suspensionszerstäubung /28/:

- (a) Flüssigkeitstropfen; (b) Flüssigkeitstropfen und Feststoffteilchen;
- (c) Flüssigkeits- und Suspensionstropfen; (d) Suspensionstropfen;
- (e) Feststoffteilchen plus Flüssigkeits- und Suspensionstropfen;
- (f) Suspensionstropfen zuzüglich Feststoffteilchen; (g) disperser Feststoff

Ein anderes Tropfenmodell der Suspensionszerstäubung, das auf einer statischen Gleichgewichtsbetrachtung beruht, wird von Petela /29/ vorgestellt. In einem ersten Ansatz geht der Autor von der Zerstäubung einer reinen Flüssigkeit aus. Bei diesem Vorgang versucht das Zerstäubungsgas den einzelnen Tropfen zu deformieren und aufzuteilen. Entgegen der aerodynamischen Widerstandskraft wirkt die Oberflächenspannung der Flüssigkeit, die das Bestreben hat, die Kugelform des Tröpfchens aufrechtzuerhalten. Der Zerkleinerungsprozeß des Tröpfchens wird nun genau dann beendet sein, wenn keine Deformation mehr auftritt, d.h., wenn die Oberflächenspannungskraft der aerodynamischen Widerstandskraft entspricht.

$$F_{\sigma} = F_w \Rightarrow \sigma_A \pi d_T = \frac{\pi d_T^2}{4} \frac{\rho_G v_G^2}{2} c_w \quad (4.4)$$

Mit d_T = Tröpfchendurchmesser und c_w = Aerodynamische Widerstandszahl.

Die Betrachtung der Gl. 4.4 führt zum Maximalwert d_{Tm} des Tröpfchendurchmessers, der unter den gegebenen Bedingungen auftreten kann.

$$d_{Tm} = \frac{\sigma_A We_G}{\rho_G v_G^2} \quad (4.5)$$

Dabei ist $We_G = 8/c_w$ der Grenzwert der Weberzahl, die das Verhältnis von Trägheitskraft zu Oberflächenspannungskraft beschreibt.

Petela geht in seiner Modellvorstellung davon aus, daß sich bei der Suspensionszerstäubung ein Sprühnebel ausbildet, der dem in Abb.4.6 (d) dargestellten Zustand entspricht, wobei jedoch in keinem Tropfen mehr als ein Feststoffteilchen vorhanden ist. Die von ihm definierten Zerfallsstadien verschiedener Suspensionstropfen werden in Abb. 4.7 dargestellt. Nach Petelas Annahme verhält sich der Suspensionstropfen wie ein bewegungsloser Körper, der von einem Gasstrom angeblasen wird. Diese Modellannahme trifft insbesondere dann zu, wenn hohe Zerstäubergasgeschwindigkeiten vorliegen. Die den Feststoff umhüllende Flüssigkeit wird vom Gasstrom bis zu einem gewissen Grad abgeblasen. Die Deformation ist wie beim reinen Flüssigkeitstropfen genau dann abgeschlossen, wenn die Oberflächenspannungskraft des Tropfens mit der aerodynamischen Widerstandskraft im Gleichgewicht steht. Analog zu Gl.4.4 ergibt sich folgende Gleichung:

$$F_{\sigma} = F_w \Rightarrow \sigma_A \pi d_T = \left(\frac{\pi d_T^2}{4} + \frac{\pi d_K^2}{4} \right) \frac{\rho_G v_G^2}{2} c_w \quad (4.6)$$

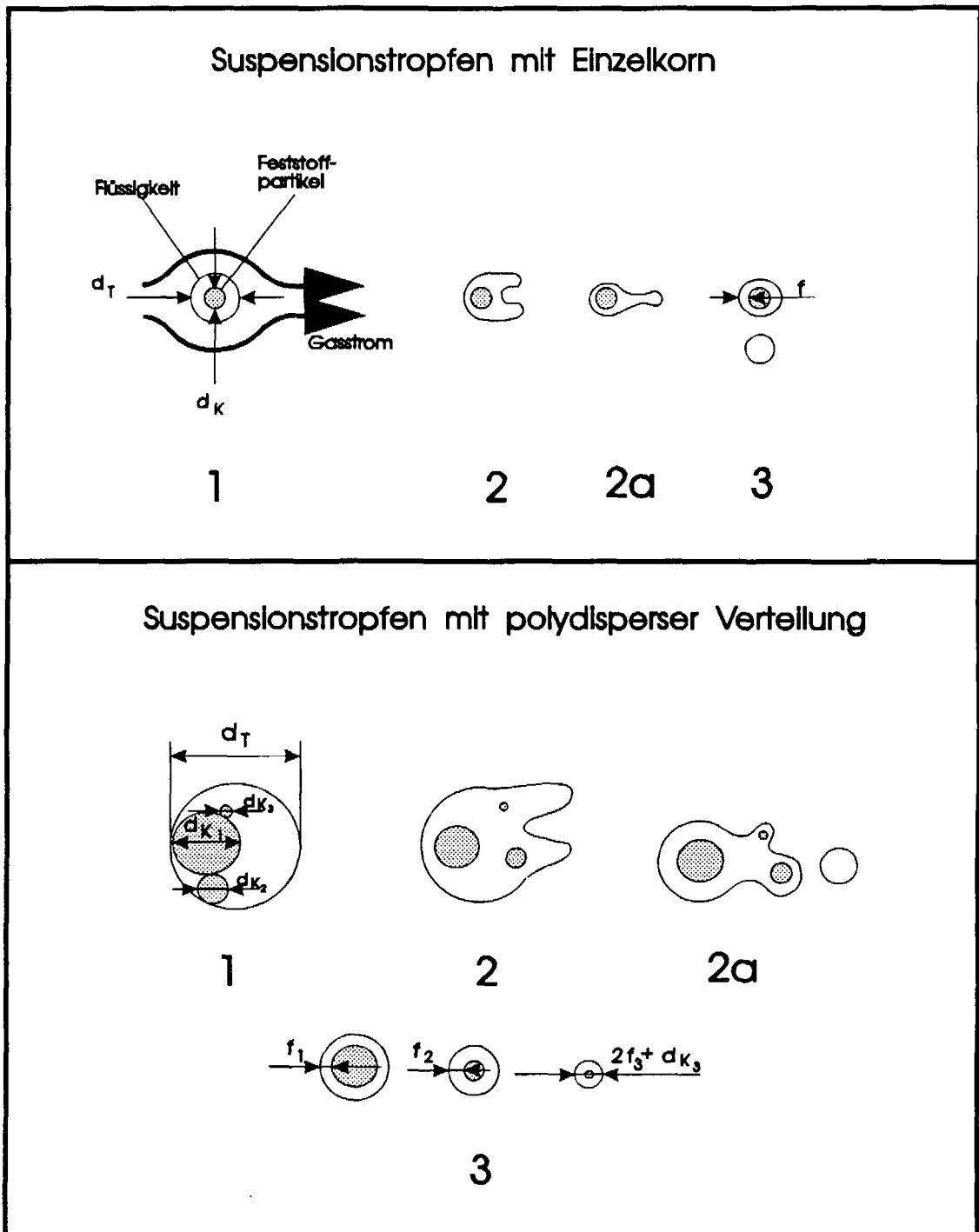


Abb. 4.7 Zerfallsstadien verschiedener Suspensionstropfen /29/

Mit d_K als Korndurchmesser erhält man für die Dicke f der Flüssigkeitsschicht, die das Korn bedeckt die Gleichung:

$$f = d_T/2 - d_K/2 = r_T - r_K \quad (4.7)$$

Durch Einsetzen von Gl. 4.5 und Gl. 4.7 in Gl. 4.6 erhält man die Beziehung für den Maximalwert der auf den Partikelradius bezogenen Flüssigkeitsschichtdicke f_m :

Durch Einsetzen von Gl. 4.5 und Gl. 4.7 in Gl. 4.6 erhält man die Beziehung für den Maximalwert der auf den Partikelradius bezogenen Flüssigkeitsschichtdicke f_m :

$$\frac{f_m}{r_K} = \frac{\sigma_A We_G}{4 r_K \rho_G v_L^2} - 1 + \sqrt{\left(\frac{\sigma_A We_G}{4 r_K \rho_G v_L^2} \right)^2 + 1} \quad (4.8)$$

Der Wert für f_m aus Gl. 4.8 ist der reelle der beiden möglichen Lösungen der quadratischen Gleichung. Aus Gl. 4.8 kann man ableiten, daß die Dicke der umgebenden Flüssigkeit f_m , wenn der Korndurchmesser gegen Null geht, dem folgenden Grenzwert zustrebt:

$$\lim_{r_K \rightarrow 0} (f_m) = \frac{\sigma_A We_G}{2 \rho_G v_L^2} \quad (4.9)$$

der gemäß Gl. 4.5 dem halben maximalen Durchmesser d_{Tm} des Tröpfchens entspricht, das nur aus Flüssigkeit besteht:

$$f_m (r_K \rightarrow 0) = d_{Tm} / 2 \quad (4.10)$$

Aus Gl. 4.8 kann man weiterhin ablesen, daß bei einem Anstieg der Gasgeschwindigkeit v_G die maximale Dicke der Flüssigkeitsschicht f_m fällt (f_m gegen 0, wenn v_G gegen unendlich läuft). Ein Anstieg der Flüssigkeitsoberflächenspannung oder eine geringere Gasdichte bewirken hingegen eine Verkleinerung der maximalen Flüssigkeitsdicke.

Das von Petela vorgestellte Modell ist nicht für eine theoretische Bestimmung der Suspensionstropfengrößen geeignet. Hierzu wären Angaben über die We_G -Kennzahl notwendig. Diese Angaben wären jedoch rein hypothetisch, da die We_G -Zahl selber von dem Suspensionstropfendurchmesser abhängig ist (s. Gl. 4.5).

4.2.2 Dimensionsanalytische Betrachtung

Ein vollständiger, den Zerstäubungsprozeß charakterisierender Kennzahlensatz muß sich an den physikalischen Randbedingungen der gewählten Zerstäubungsform orientieren. Dies erkennt man leicht daran, daß die Einflußgrößen bei der Zerstäubung mittels einer Einstoffdruckdüse nicht identisch mit denen einer Zweistoffdüse mit externer oder interner Mischung sind.

Die bestimmenden Einflußgrößen bei der dimensionsanalytischen Betrachtung des Zerstäubungsprozesses lassen sich in die drei Gruppen Stoff-, Betriebs- und Geometriegrößen aufteilen (s. Abb. 4.8). Dies bedeutet, daß ein den Zerstäubungsvorgang charakterisierender, allgemeingültiger Kennzahlensatz nicht existiert. In den nachfolgenden Kapiteln werden daher zuerst die maßgebenden Kennzahlen bei der Zerstäubung reiner

Flüssigkeiten mittels Einstoff-Druckdüsen sowie Zweistoffdüsen mit interner und externer Mischung aufgestellt und anschließend der Einfluß der Feststoffkomponente auf den Zerstäubungsprozeß erörtert.

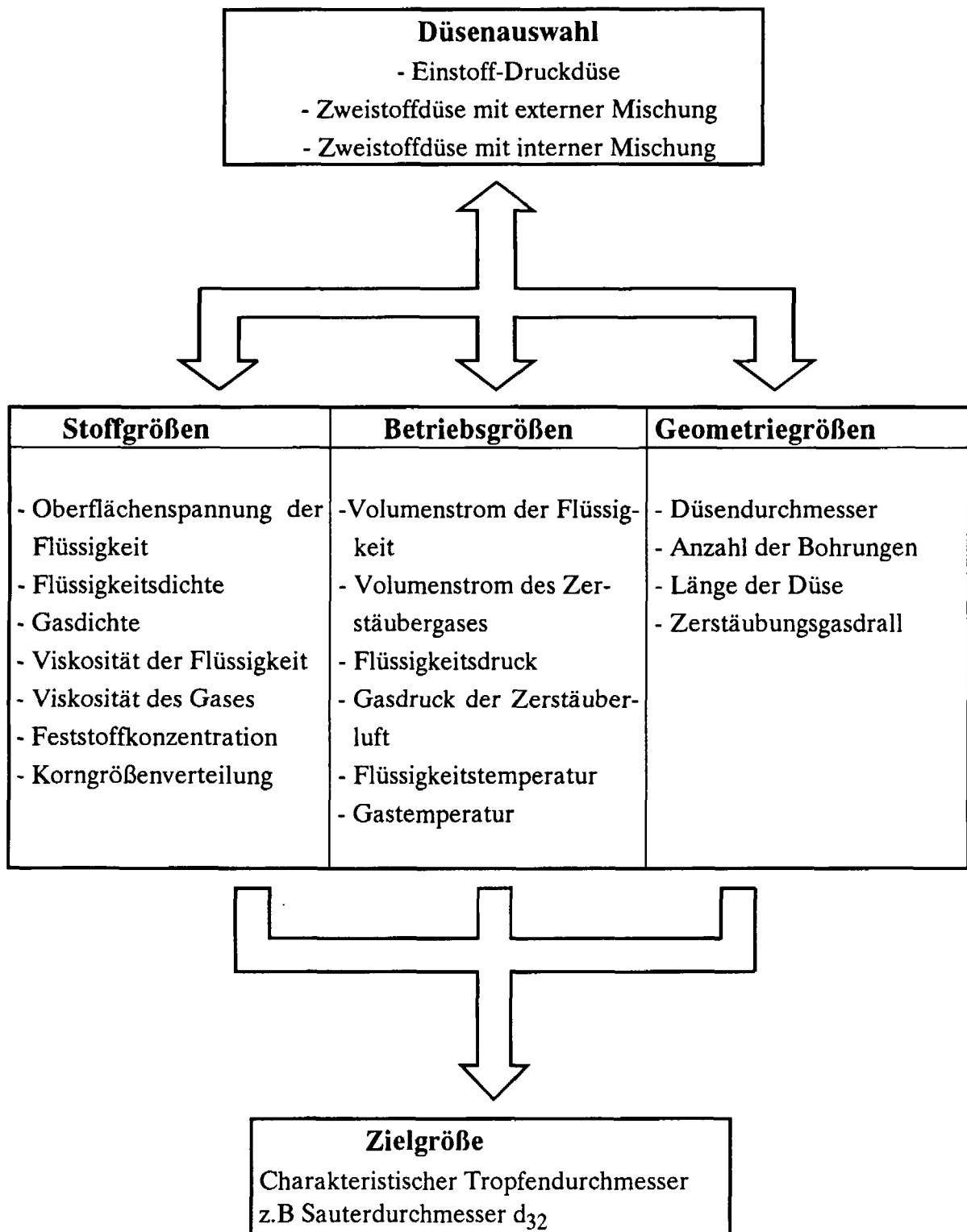


Abb.4.8

Einflußgrößen bei der Suspensionszerstäubung

4.2.2.1 Kennzahlen von EDD bei der Zerstäubung reiner Flüssigkeiten

Der durch eine Düse durchgesetzte Volumenstrom ist neben den Stoffgrößen Viskosität η_L und Dichte ρ_L des zu zerstäubenden Fluids von dem anstehenden Betriebsdrucks Δp und der Düsengeometrie abhängig. Da die den Volumendurchsatz bestimmenden Geometrie Größen bei der Vielfalt der existierenden Düsenformen nicht einheitlich sind, sollen sie im weiteren Verlauf pauschal durch die Bezeichnung D ersetzt werden. Die Oberflächenspannung des Fluids hat nach Richter et. al. /30/ keinen Einfluß auf den Volumenstrom, weil die pro Zeiteinheit verbrauchte Oberflächenbildungsenergie (s. Gl. 4.1) am Düsenaustritt wesentlich kleiner ist als die kinetische Energie der im gleichen Zeitintervall ausströmenden Flüssigkeitsmasse. Für den Volumenstrom gilt somit nach einer ersten Abschätzung folgende Relevanzliste:

$$F(\dot{V}_L, \Delta p, \eta_L, \rho_L, D) = 0 \quad (4.11)$$

Für den Volumenstrom gilt aber auch $\dot{V}_L = F(v_L, D)$, wobei die Fluidgeschwindigkeit v_L wiederum durch die Beziehung

$$\Delta p \sim \xi \rho_L v_L^2 \quad (4.12)$$

gegeben ist. ξ ist der Druckverlustbeiwert, der aus der Carnotschen Gleichung hervorgeht und ausschließlich von der Geometrie der Düse abhängig ist. Aus dem Gesagten resultiert $\dot{V}_L = F(\Delta p, \rho_L, D)$. Die in Gl. 4.11 aufgestellte Relevanzliste für den Volumenstrom in Einstoff-Druckdüsen reduziert sich somit auf:

$$F(\Delta p, \eta_L, \rho_L, D) = 0 \quad (4.13)$$

Da die Tropfengrößenverteilung unmittelbar vom Volumendurchsatz abhängt, gehören die in Gl. 4.13 stehenden Größen auch zu einem vollständigen Satz von Kennzahlen, der die Tropfenbildung reiner Flüssigkeiten an Einstoffdruckdüsen beschreibt. Für diesen Kennzahlensatz muß eine zusätzliche Größe eingeführt werden, mit der die Tropfengrößenverteilung im Sprühnebel beschrieben wird. In der Zerstäubungstechnik ist dies im allgemeinen der Sauterdurchmesser d_{32} (s. Gl. 4.2). Der Sauterdurchmesser ist besonders dann zur Charakterisierung eines Sprühnebels geeignet, wenn die Tropfengrößen in einem engen Spektrum liegen. Ist dies nicht der Fall, ist für eine genaue Tropfengrößenbestimmung sowohl die Tropfengrößenverteilung als auch die Kenntnis der Geschwindigkeit der einzelnen Tropfenklassen erforderlich.

Unter Berücksichtigung des den Sprühnebel umgebenden Gases, gekennzeichnet durch die Gasdichte ρ_G und die Gaszähigkeit η_G sowie der Flüssigkeitsoberflächenspannung σ_A , erhält man die vollständige Relevanzliste für die Tropfenbildung reiner Flüssigkeiten mit Einstoff-Druckdüsen.

$$F(d_{32}, \Delta p, \eta_L, \rho_L, \sigma_A, D, \eta_G, \rho_G) = 0 \quad (4.14)$$

Nach dem Buckingham'schen Π -Theorem läßt sich die in Gl. 4.14 aufgestellte dimensionsmäßig homogene Gleichung bei drei vorliegenden Grundeinheiten und acht Einflußgrößen auf fünf Kennzahlen reduzieren. Walzel /31/ schlägt als zweckmäßige Kombination folgende Kennzahlen vor:

$$\pi_1 = \frac{d_{32}}{D} \quad \text{bezogener Tropfendurchmesser} \quad (4.15)$$

$$\pi_2 = \frac{\Delta p D}{\sigma_A} = \Delta p^* \quad \text{Düsendruckzahl} \quad (4.16)$$

$$\pi_3 = \frac{\eta_L}{\sqrt{D \rho_L \sigma_A}} = \text{Oh} \quad \text{Ohnesorge Zahl} \quad (4.17)$$

$$\pi_4 = \frac{\rho_G}{\rho_L} = \rho^* \quad \text{Dichtezahl} \quad (4.18)$$

$$\pi_5 = \frac{\eta_G}{\eta_L} = \eta^* \quad \text{Viskositätszahl} \quad (4.19)$$

Je nach Beschaffenheit der Düse können weitere Kennzahlen hinzukommen, die dann jedoch ausschließlich durch Geometriegrößen gebildet werden. Ferner sei darauf hingewiesen, daß die bei jedem physikalisch-technischen Vorgang beteiligte Erdbeschleunigung g für die turbulent ablaufenden Zerteilvorgänge an HKD oder Zweistoffdüsen keine Bedeutung hat /28/. Nach Walzel /32/ muß die Erdbeschleunigung als systemfremde Einflußgröße angesehen werden, die zwar mit wachsendem Abstand der Tropfen zunehmend Einfluß auf die Gestalt der Tropfenflugbahn nimmt, an rasch ablaufenden Zerteilvorgängen vor allem im Bereich der Zweistoffdüsen jedoch kaum beteiligt ist.

4.2.2.2 Kennzahlen von Zweistoffdüsen bei der Zerstäubung reiner Flüssigkeiten

Die in Gl. 4.14 aufgestellte Relevanzliste für die Tropfenbildung reiner Flüssigkeiten an Einstoff-Druckdüsen muß für Zweistoffdüsen um die Dichte und Austrittsgeschwindigkeit des Zerstäubergases erweitert werden.

Eine Abschätzung zeigt, daß an üblichen pneumatischen Zerstäuberdüsen mit $v_G > 300 \text{ m/s}$ bereits für Flüssigkeitsgebilde mit $d_T > 50 \mu\text{m}$ am Startpunkt Gas-Reynolds-Zahlen

$$\text{Re}_G = \frac{d_T \rho_G v_G}{\eta_G} > 1000 \quad (4.20)$$

vorliegen, so daß der Widerstandsbeiwert der Tropfen zu Beginn der Beschleunigungs- und Zerfallsphase von der Gasviskosität η_G unabhängig ist. Sie spielt daher bei Zweistoffdüsen eine untergeordnete Rolle und erscheint nicht in der Relevanzliste.

Es ist sinnvoll den Flüssigkeitsvolumenstrom nicht mehr über den Druckverlust, sondern über die Austrittsgeschwindigkeit des Fluids zu beschreiben. Da die Versuche ausschließlich unter Atmosphärenbedingungen durchgeführt werden, haben die Stoffdaten der Umgebung einen vernachlässigbaren Einfluß auf die Tropfengrößenverteilung. Würden die Tropfengrößmessungen unter Verbrennungsbedingungen durchgeführt werden, müßten diese Einflußgrößen selbstverständlich berücksichtigt werden.

Die vollständige Relevanzliste für die Tropfenbildung reiner Flüssigkeiten an pneumatischen Düsen lautet:

$$F(d_{32}, v_L, \eta_L, \rho_L, \sigma_A, D, v_G, \eta_G) = 0 \quad (4.21)$$

Unter Anwendung des Buckingham'schen Π -Theorems erhält man als zweckmäßige Kombination folgende Kennzahlen:

$$\pi_1 = \frac{d_{32}}{D} \quad \text{bezogener Tropfendurchmesser} \quad (4.22)$$

$$\pi_2 = \frac{\rho_L v_L D}{\eta_L} = \text{Re} \quad \text{Reynoldszahl} \quad (4.23)$$

$$\pi_3 = \frac{v_L^2 \rho_L D}{\sigma_A} = \text{We} \quad \text{Weberzahl} \quad (4.24)$$

$$\pi_4 = \frac{v_G}{v_L} = v^* \quad \text{Geschwindigkeitszahl} \quad (4.25)$$

$$\pi_5 = \frac{\rho_G}{\rho_L} = \rho^* \quad \text{Dichtezahl} \quad (4.26)$$

Nukiyama et. al. /33/ ermittelten z.B. für einen Düsentyp mit innerer Mischung folgende empirische Beziehung:

$$d_{32} = 0,585 \left(\frac{\sigma_A}{\rho_L \Delta v^2} \right)^{0.5} + 53,2 \left(\frac{\eta_L^2}{\sigma_A \rho_L} \right)^{0.225} \left(\frac{V_L}{V_G} \right)^{1.5} \quad (4.27)$$

Dabei ist Δv die Differenzgeschwindigkeit zwischen Gas und Fluid. Bei normalen Zerstäubungsprozessen wird man die Differenzgeschwindigkeit Δv durch die Gasgeschwindigkeit v_G ersetzen können, weil $v_G \gg v_L$. Da Gl. 4.27 nicht dimensionsmäßig homogen ist, schlägt Brauckhage /34/ eine Berücksichtigung des Düsendurchmessers D_L mit einem Exponenten von 0.5 bis 0.775 vor. Die Gl. 4.27 bekommt dann folgendes Aussehen:

$$d_{32} = 0,585 (We v^*)^{-0.5} D_L + 53,2 \left(\frac{Re^2}{We} \right)^{0.225} D_L (v^* A^*)^{-1.5} \quad (4.28)$$

Die zusätzlich auftretende Kennzahl A^* wird aus dem Verhältnis Flüssigkeitsaustrittsquerschnitt zu Gasaustrittsquerschnitt gebildet und ist somit eine reine Geometrie Kennzahl. Aus Gl. 4.28 kann man schließen, daß die Wahl des Zerstäubergases bei Düsen mit äußerer Mischung keinen Einfluß auf die Tropfengrößenverteilung hat, weil die Dichtezahl nicht hierin vorkommt.

Für Düsen mit äußerer Mischung geben Elko et. al./35/ folgende Gleichung an:

$$d_{32} = 51 (Re v^*)^{-0.39} (We v^*)^{-0.18} (v^* \rho^*)^{-0.29} D_A \quad (4.29)$$

wobei D_A der Düsenaustrittsdurchmesser ist. Auch in Gl. 4.29 müßte der Zähler der Geschwindigkeitszahl exakterweise mit der Differenzgeschwindigkeit Δv gebildet werden. Wie schon in Gl. 4.27 und 4.28 gilt aber auch hier $\Delta v \sim v_G$, da $v_G \gg v_L$. Im Gegensatz zu Gl. 4.28 wird in Gl. 4.29 die Dichtezahl zur Berechnung des Sauterdurchmessers

herangezogen. Dies läßt darauf schließen, daß die Wahl des Zerstäubergases einen Einfluß auf die Tropfenbildung hat.

Die beiden geschilderten Ansätze zur Berechnung des Sauterdurchmessers besitzen selbstverständlich nur für die jeweils getesteten Düsen Gültigkeit. Sie lassen aber gut erkennen, welchen Einfluß die hergeleiteten Kennzahlen auf die Tropfenbildung haben.

4.2.2.3 Einfluß der Feststoffkomponente

Das Auftreten einer Feststoffkomponente bei der Flüssigkeitszerstäubung hat einen erheblichen Einfluß auf die Tropfenbildung. Insbesondere Dichte und Viskosität der zu zerstäubenden Substanz sind hiervon betroffen.

Die Änderung der Suspensionsdichte ist leicht über einen Wägeprozeß der beteiligten Komponenten zu erfassen. Es gilt die Beziehung:

$$\rho_s = (1 - \sum_{i=1}^n c_i) \rho_L + \sum_{i=1}^n c_i \rho_i \quad (4.30)$$

Hierbei steht ρ_s für die Gesamtdichte der Suspension, c_i für den Massenanteil der i-ten Feststoffkomponente und ρ_i für die Dichte der i-ten Feststoffkomponente.

Die Angabe der Gesamtdichte ρ_s genügt also nicht, um eine vollständige Relevanzliste der Tropfenbildung zu bekommen. Nach Gl. 4.30 müssen neben ρ_s noch weitere Einflußgrößen aufgenommen werden. Da die Suspensionsdichte für den Grenzfall unendlich kleiner Feststoffkonzentration mit

$$\rho_s (\sum c_i \rightarrow 0) = \rho_L \quad (4.31)$$

festgelegt ist, erscheint es sinnvoll, die die Feststoffkomponenten charakterisierenden Einflußgrößen Feststoffkonzentrationen c_i und Feststoffdichten ρ_i , zusätzlich in die Relevanzliste aufzunehmen.

Wesentlich problematischer ist die Bestimmung der feststoffspezifischen Einflußgrößen auf die dynamische Viskosität der Suspension. Glaser /28/ weist darauf hin, daß die zahlreich publizierten rheologischen Untersuchungen der letzten Jahre gezeigt haben, daß es bis heute nicht gelungen ist, die dynamische Viskosität einer Feststoff / Flüssigkeitsmischung durch eine allgemeingültige mathematische Beziehung der Form

$$\eta_s = F(c_1, \dots, c_n; \rho_1, \dots, \rho_n; d_{K1}, \dots, d_{Kn}; \gamma; \xi_1, \dots, \xi_n; \psi_1, \dots, \psi_n; \eta_L) \quad (4.32)$$

anzugeben. Becker et. al./31/ machen darauf aufmerksam, daß die Suspensionsviskosität nicht nur in Abhängigkeit von den physikalischen Einflußgrößen, wie der Feststoffkonzentrationen, den kennzeichnenden Größen der Feststoffpartikeln Formfaktor ξ , Polydispersitätsmaß ψ , charakteristischer Teilchendurchmesser d_K und der durch die Düsengeometrie erzeugten Schergeschwindigkeit γ zu betrachten ist, sondern ebenso von den physikochemischen Eigenschaften der Phasengrenzflächen fest / flüssig.

Der Einfluß von Polydispersitätsmaß, Formfaktor und Schergeschwindigkeit auf die Tropfenbildung soll nur vom Standpunkt der Veränderung der Suspensionsviskosität aus betrachtet werden. Hieraus folgt, daß die genannten drei Einflußgrößen nicht in die Relevanzliste aufgenommen werden.

Im Gegensatz hierzu müssen die charakteristischen Teilchendurchmesser auf jeden Fall aufgenommen werden, weil sie gemäß dem in Kapitel 4.2.1 vorgestellten Modell als nicht mehr zerteilbares Objekt im produzierten Sprühnebel vorzufinden sind. Insbesondere die für die Sprühnebelzusammensetzung wichtige Anzahl der Feststoffpartikeln ist dann bei Kenntnis der Feststoffmassenkonzentrationen, der Feststoffdichten sowie unter der Annahme, daß die Teilchen kugelförmig sind, eindeutig bestimmt.

Es bleibt festzuhalten, daß die aufgestellten Relevanzlisten (Gl. 4.15 und 4.21) für die Tropfenbildung reiner Flüssigkeiten beim Vorhandensein von i Feststoffkomponenten, um die Einflußgrößen $c_1, \dots, c_n, \rho_1, \dots, \rho_n, d_{K1}, \dots, d_{Kn}$ und η_s erweitert werden.

5. Experimentelle Untersuchungen für die Zerstäubung von Ionenaustauscherharz / Flüssigkeitsgemischen

5.1 Vorversuche zur Zerstäubung von wässrigen Harzsuspensionen mit EDD

Zur Festlegung, inwieweit Einstoff-Druckdüsen (EDD) zur Zerstäubung von Ionenaustauscherharz-Suspensionen geeignet sind, wurden am Institut für Apparatechnik der GHS-Essen Sprühversuche mit wässrigen Harzsuspensionen durchgeführt. Wie schon in Kap. 4.1.1 erwähnt, findet unter den EDD insbesondere die Hohlkegel-Dralldüse (HKD) im Bereich der Suspensionszerstäubung eine breite Anwendung. Von der Vielzahl der angebotenen EDD ist deshalb ausschließlich dieser Düsentyp untersucht worden.

In Abb. 5.1 ist das Verfahrensfließbild der eigens für Sprühversuche mit Einstoff-Druckdüsen konzipierten Versuchsanlage dargestellt. Die Suspension wird mittels Druckluft ($\Delta p_{\max} = 25 \text{ bar}$) aus zwei Vorlagebehältern zur Düse gefördert. Da die Vorlagebehälter nur ein Fassungsvermögen von insgesamt 40 l besitzen, mußten sie nach jeder Messung erneut befüllt werden. Besonders nachteilig wirkte sich aus, daß man die Suspension innerhalb der Vorlagebehälter nicht rühren konnte. Dies führte dazu, daß die einzelnen Sprühversuche sehr schnell durchgeführt werden mußten, weil bei längeren Wartezeiten die Feststoffkomponente sedimentierte und das Leitungssystem verstopfte. Wahrscheinlich ist dies auch der Grund dafür, daß trotz Zugabe von Naphtalintrisulfonsäure die maximale Harzbeladung bei der gerade eben keine Verstopfung eintrat nur bei etwa 21 Gew.% lag.

Die in den Abb. 5.3 und 5.4 dargestellten Ergebnisse sind bei einer Pulverharzbeladung von 19.9 Gew.% und einem Mischungsverhältnis Kationenaustauscher zu Anionenaustauscher von 3:1 durchgeführt worden. Zur Auflösung der Flocken wurden 0.5 Gew.% NTS zugegeben.

Um die Abhängigkeit der entstehenden Tropfengrößen von der Düsengeometrie aufzuzeigen, wurden zwei unterschiedlich große HKD-Düsen untersucht. Die in Abb. 5.3 dargestellten Tropfengrößenverteilungen sind mit einer Düse ermittelt worden, die einen Austrittsdurchmesser $D_A = 2,95 \text{ mm}$ besitzt. Die Massendurchsätze waren bei Düsen vordrücken von $\Delta p = 19 \text{ bar}$ bzw. $\Delta p = 16 \text{ bar}$ mit 536 kg/h bzw. 424 kg/h sehr hoch.

Voraussetzung für eine verbrennungsgerechte Zerstäubung ist eine Tropfengrößenverteilung im Sprühnebel, die im Bereich der Korngrößenverteilung der Pulverharze liegt. Die Messungen bei einem Düsen vordruck von $\Delta p = 19 \text{ bar}$ ergaben, daß 90 % der

Tropfen Durchmesser von $D_T < 400 \mu\text{m}$ haben (z. Vgl. 90 % der Pulverharzpartikeln sind kleiner als $120 \mu\text{m}$), und der größte Durchmesser bei ca. $800 \mu\text{m}$ (alle Pulverharzpartikeln sind kleiner als $250 \mu\text{m}$) liegt, d. h., daß das Ziel mit dieser Düse nicht erreicht wird.

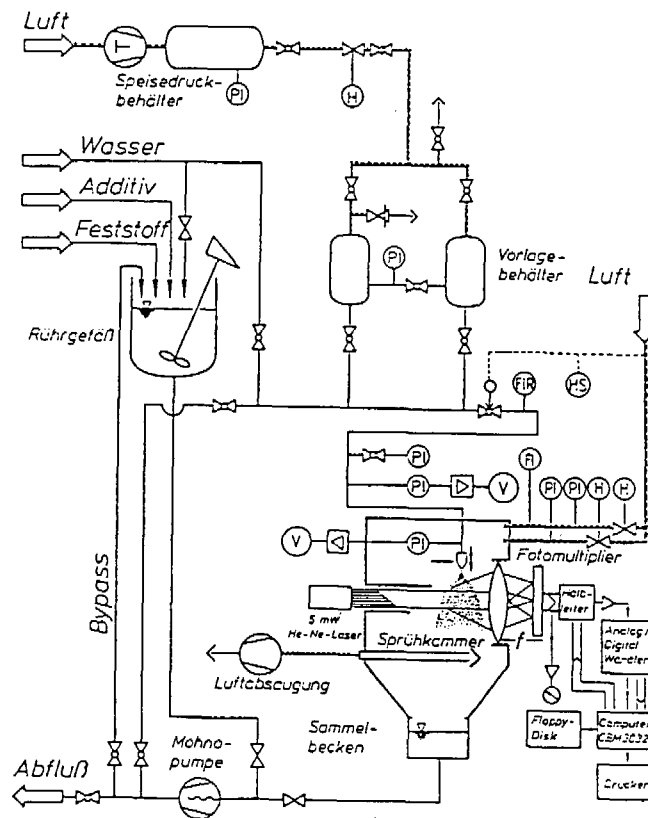


Abb. 5.1

Laborerstäubungsanlage an der GHS-Essen /28/

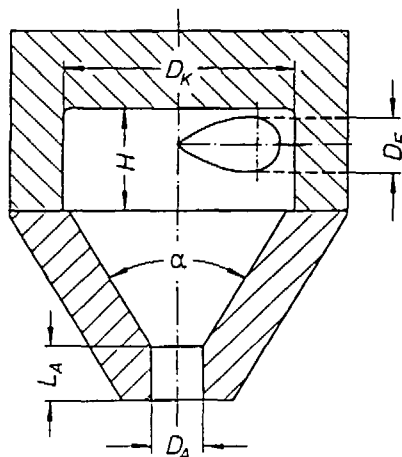


Abb. 5.2

Geometrie der HKD-Düsen (Spraying-Systems, 3/8" BBSSTC) /28/

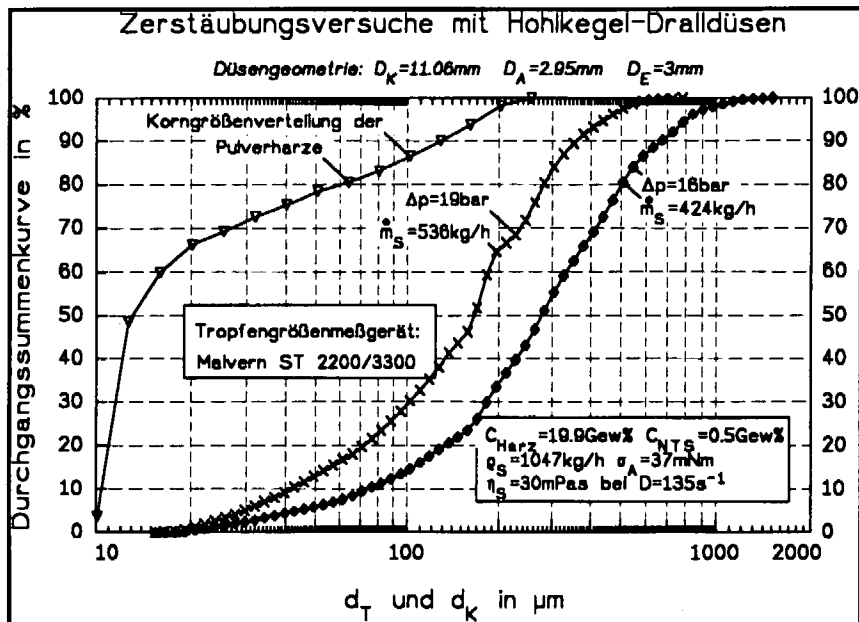


Abb. 5.3 Tropfengrößenverteilungen beim Zerstäuben einer wässrigen Pulverharzsuspension ($C_{\text{Wasser}} = 79.5 \text{ Gew.}\%$) in Sprühversuchen mit einer HKD-Düse ($D_A = 2.95 \text{ mm}$) bei zwei unterschiedlichen Düsenvordrücken

Günstigere Werte erhält man zwar bei kleineren Düsendurchmessern, doch wächst hierbei auch gleichzeitig die Gefahr eines Blockierens der Düse. Die Versuche haben gezeigt, daß unterhalb eines Düsenaustrittsdurchmessers $D_A = 2.1 \text{ mm}$ die kritischen Abmessungen beginnen. Je kleiner der Düsenaustrittsquerschnitt ist, desto geringer sind auch die durchgesetzten Mengenströme. Die Verringerung des Austrittsdurchmessers von 3 mm auf 2.1 mm ergab bei Düsenvordrücken $\Delta p = 19 \text{ bar}$ und $\Delta p = 16 \text{ bar}$ eine Reduzierung des durchgesetzten Suspensionsmengenstroms um etwa den Faktor 3.

Obleich die Tropfengrößenverteilungen mit kleineren Düsendurchmessern feiner werden, ist keine wesentliche Annäherung an die Korngrößenverteilung der Pulverharze erkennbar (s. Abb. 5.4). Ein Vergleich des für die Sprühinjktionsverbrennung besonders interessanten Bereichs kleiner Korn- und Tropfengrößen verdeutlicht dies. Obwohl 70% der Pulverharzpartikeln kleiner als $30 \mu\text{m}$ sind, liegen, bei einem Düsenvordruck von $\Delta p = 19 \text{ bar}$, nur 12% der erzeugten Tropfen in diesem Bereich.

Die Sprühversuche haben deutlich gemacht, daß Einstoff-Druckdüsen nicht für den Einsatz in einem Sprühinjktionsbrenner geeignet sind. Feinere Tropfengrößen sind nur über erheblich größere Drücke zu erzielen, die dann jedoch neben einem erheblich höheren Düsenverschleiß vor allem nicht mehr akzeptable Durchsatzerhöhungen zur Folge hätten.

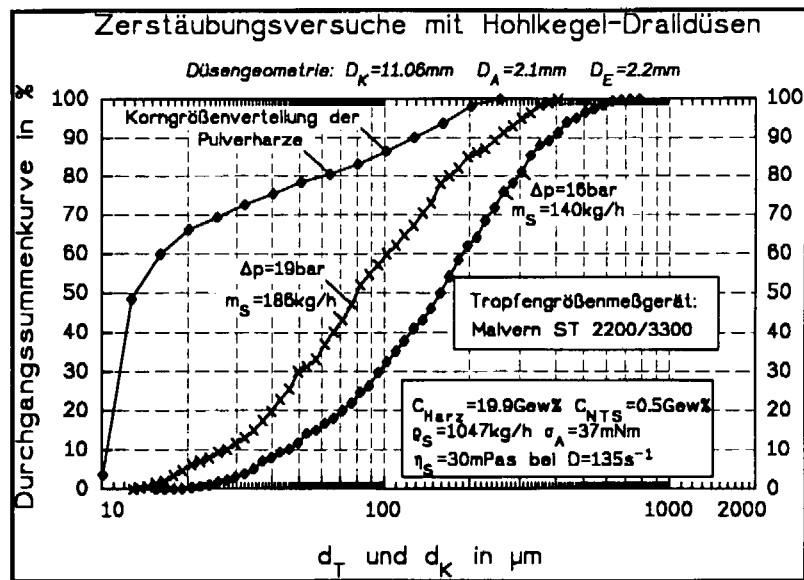


Abb. 5.4 Tropfengrößenverteilungen beim Zerstäuben einer wässrigen Pulverharzsuspension ($C_{\text{Wasser}} = 79.5 \text{ Gew.}\%$) in Sprühversuchen mit einer HKD-Düse ($D_A=2.1\text{mm}$) bei zwei unterschiedlichen Düsenvordrücken

5.2 Aufbau und Wirkungsweise der Laborzerstäubungsanlage

Zur Weiterführung der Untersuchungen mit Zweistoffdüsen wurde in der KFA ein Zerstäubungs-Versuchsstand ausgelegt und aufgebaut. Dabei war die Gewährleistung einer flexiblen Versuchsdurchführung bei gleichzeitiger Reproduzierbarkeit der Meßergebnisse ein wesentliches Auslegungskriterium. Neben einem Vergleich der mit verschiedenen Düsen bei unterschiedlichen Betriebsparametern produzierten Tropfengrößenverteilungen sollte auch der Einsatz verschiedener Trägerflüssigkeiten möglich sein.

5.2.1 Apparative Ausrüstung und Instrumentierung sowie meß- und regeltechnische Einrichtungen

In Abb. 5.5 ist das Verfahrensfließbild der Laboranlage dargestellt. Die Herstellung der Suspensionen erfolgt in einem Kugelgefäß ($V = 50 \text{ l}$), das gleichzeitig auch als Vorlagebehälter dient. Zum Ausgleich von Konzentrations- und Temperaturunterschieden ist der Vorlagebehälter mit einem stufenlos regelbaren Blattrührer ausgestattet. Durch einen Heizpilz, der mit einem Temperaturregler versehen ist, kann die Suspension erwärmt werden.

Aus dem Vorlagebehälter wird die Suspension über eine Pumpe zur Düse gefördert. Bei der Pumpe handelt es sich um eine rotierende Exzenter-Verdrängerpumpe, mit einem aus Edelstahl bestehenden Rotor und dem aus einem Elastomer bestehenden Stator.

Der zwischen Rotor und Stator entstehende Hohlraum ist durch eine dichtende Linie begrenzt. Der Saugraum ist durch diese dichtende Linie vom Druckraum sowohl im Stillstand als auch während der Drehbewegung abgeschlossen. Daher kann die Pumpe auch Flüssigkeiten mit hoher Viskosität oder Suspensionen mit Fasereinschlüssen ansaugen. Während der eingängige Rotor im zweigängigen Stator umläuft, wandert der zwischen beiden gebildete Hohlraum von der Saug- zur Druckseite. Die Pumpe erzeugt auf diese Weise einen kontinuierlichen, zur Drehzahl proportionalen Förderstrom mit hoher Dosiergenauigkeit ($< 0.5\%$). Die Fördergenauigkeit wird dabei auch durch Druckänderungen nur unwesentlich beeinflusst. Dies bedeutet, daß unabhängig von der Wahl der Düse bei konstanter Drehzahl ein gleichbleibender Suspensionsstrom gefördert wird.

Die verwendete Dosierexzentrerschneckenpumpe (s. auch Kap. 5.2.1) wurde so ausgelegt, daß maximal 100 l Fördermedium / h durchgesetzt werden kann. Unter der Annahme, daß man eine Verbrennungsanlage mit diesem Durchsatz an 300 Tagen im Jahr betreibt, könnten rund 720 m³ Suspension / a verbrannt werden. Dies entspricht, bei einer mittleren Suspensionsdichte $\rho_s = 1100 \text{ kg / m}^3$, einem Durchsatz von etwa 790 t/a. Selbst bei einem niedrig angesetzten Feststoffgehalt von 20 Gew.% könnte man ca. 158 t/a mit einer Anlage entsorgen. Da pro Jahr in den deutschen Siedewasserreaktoren etwa 110 t Pulverharzabfälle anfallen, wäre eine einzige Anlage imstande, die Pulverharze zuzüglich der eventuell noch hinzukommenden Kugelharzabfälle (etwa 30 t/a) zu verbrennen. Der aktuelle Mengenstrom wurde vor jedem Versuch am Düsenaustritt ausgelitert.

Damit die Tropfengrößenmessung in möglichst allen Abschnitten des Sprühkegels durchgeführt werden kann, wurde die Düsenhalterung so ausgelegt, daß die Düse horizontal und vertikal innerhalb der Sprühkammer verschoben werden kann. Über ein Schnellkupplungssystem können alle untersuchten Düsen problemlos an der Düsenhalterung befestigt werden.

Die Sprühkammer besteht aus einem 1600 mm langen Glasrohr mit einem Durchmesser von $d_{\text{Rohr}} = 600 \text{ mm}$. Kopf- und Bodenteil des Glasrohrs sind durch zwei Deckel verschlossen. Durch eine Öffnung in der gewölbten Bodenplatte fließt die versprühte Suspension unmittelbar in den Vorlagebehälter zurück.

Um eine Anreicherung von Feinsttropfen und damit eine Verfälschung der Meßergebnisse zu verhindern, ist die Sprühkammer an ein Gebläse ($\dot{V} = 200 \text{ Nm}^3/\text{h}$) angeschlossen. Der abgesaugte Luftstrom wird nach einer Tropfenabscheidung dem Abluftsystem zugeführt.

Die zur Zerstäubung notwendige Luft wird aus einem Druckluftnetz bezogen, wobei ein statischer Druck im Bereich von 8 bar bis 10 bar zur Verfügung steht. Über eine Heizstrecke zu der Versuchsanlage kann die Luft nach Bedarf bis auf 80°C aufgeheizt werden.

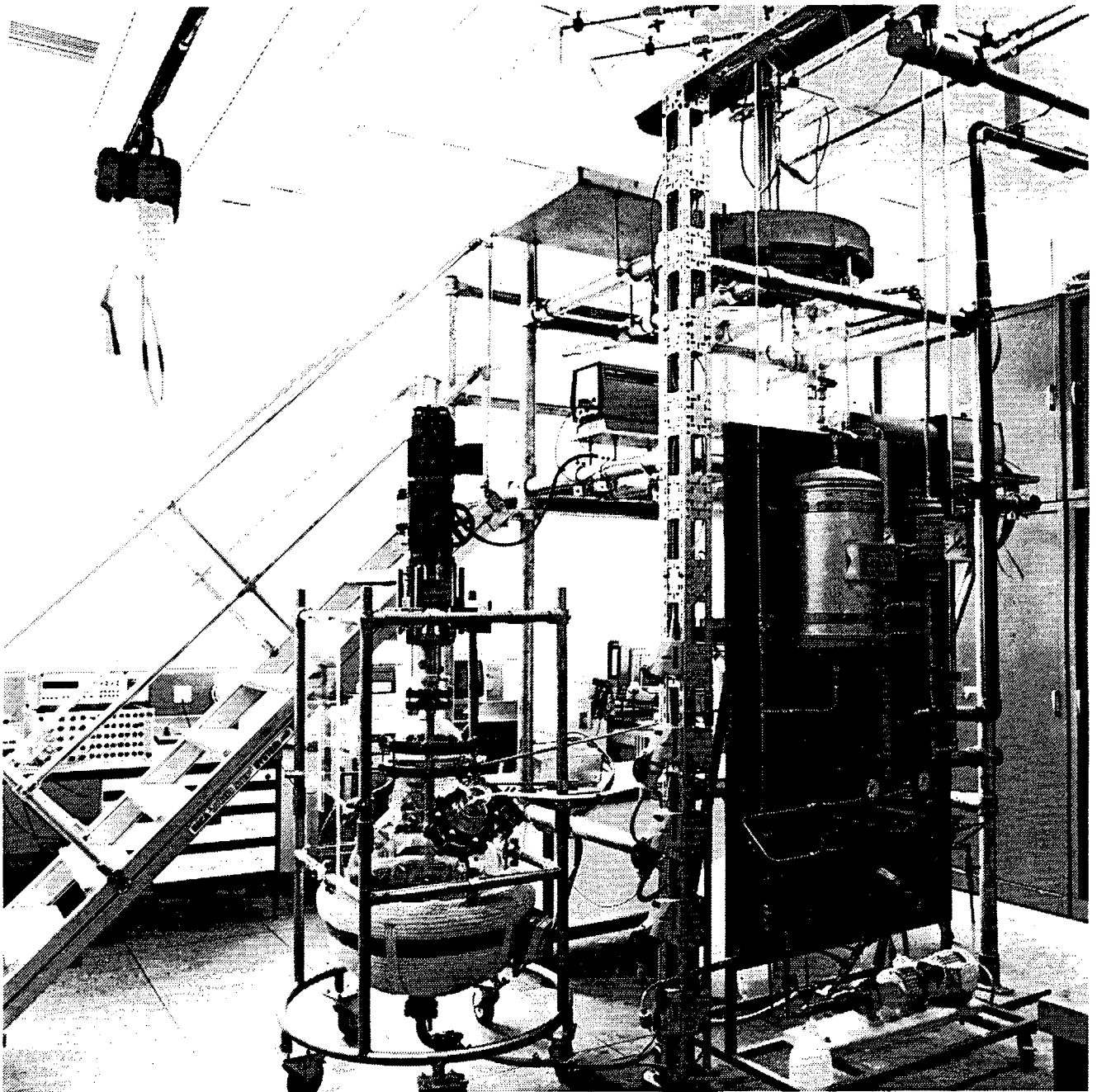


Bild 1

Gesamtansicht der Laborzerstäubungsanlage

Die Luftdurchsätze werden über ein Rotameter (Typ: MC-E.62) erfaßt und die zur Umrechnung der Rotametermeßsignale erforderlichen Werte der Lufttemperatur und des -druckes werden über ein Pt-100 bzw. einen Druckaufnehmer gemessen. Beide Betriebskenngrößen werden nochmals kurz vor dem Düsenaustritt gemessen.

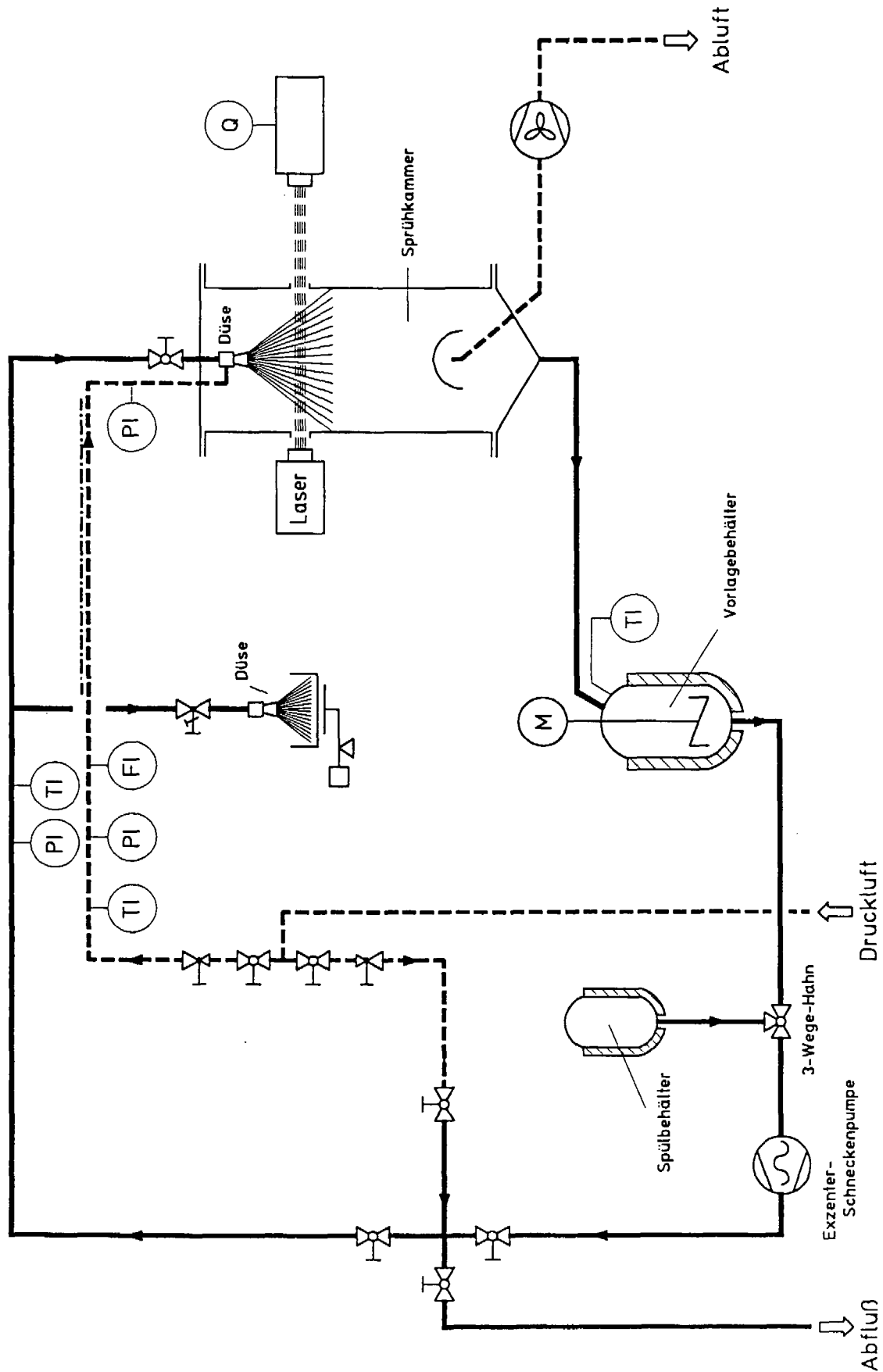


Abb 5.5

Verfahrensfließbild der Laboranlage

5.2.2 Partikelgrößenmeßgerät

5.2.2.1 Gerätetechnische Anordnung

Zur Erfassung der von den Düsen erzeugten Tropfengrößenverteilungen wurde ein Partikelgrößenmeßgerät (Malvern Particle Sizer) eingesetzt, dessen Meßprinzip auf der Theorie der Laserlicht-Beugung basiert. Das Gerät besteht aus einer Sende- und Empfangseinheit, die auf einer der Versuchsanordnung angepaßten optischen Bank angeordnet sind (s. Bild 3). Um optisch einwandfreie Verhältnisse zu schaffen, sind in der Wandung des Glaszylinders zwei gegenüberliegende Bohrungen vorhanden, durch die der Laserstrahl ein- und austreten kann.

Der Laser erzeugt ein monochromatisches, paralleles Bündel sichtbaren Lichts geringer Leistung, welches auf die Teilchen im Sprühnebel trifft. Das einfallende Licht wird von den getroffenen Teilchen gebeugt und ergibt ein stationäres, also nicht von der Teilchenbewegung beeinflusstes, Beugungsmuster. Wenn Partikeln in den beleuchteten Bereich eintreten oder ihn verlassen, entsteht, verschwindet oder ändert sich das Beugungsmuster. Auf diese Art und Weise wird immer die aktuelle Partikelgrößenverteilung im Meßbereich erfaßt. Bei kontinuierlichem Durchfluß der Partikel durch das Meßvolumen und Integration über eine genügend lange Zeit erhält man ein Summen-Beugungsmuster, das die zu untersuchende Probe repräsentiert.

Eine Fourierlinse fokussiert das Beugungsmuster auf einen im Empfängergerät sitzenden Multielement-Fotodetektor, der ein der auffallenden Lichtintensität proportionales Analogsignal erzeugt. Dieser Detektor ist direkt an einen Computer angeschlossen, der das momentane Beugungsmuster erfaßt und die notwendige Integration durchführt. Nach der Erfassung des Beugungsmusters berechnet der Computer nach der " Methode der kleinsten Quadrate " die Größenverteilung, die eine optimale Anpassung an das gemessene Beugungsmuster ergibt. Das Ergebnis der Analyse ist grundsätzlich eine Volumenverteilung.

Problematisch ist bei hoher Tropfenkonzentration die Mehrfachbeugung des Lichtes. Die Signale der Meßwertaufnahme werden in sehr dichten Sprühnebeln derart beeinträchtigt, daß bereits gestreutes Licht erneut auf Tropfen trifft und in seiner Intensität geschwächt wird. Durch die Mehrfachbeugung fällt das Licht unter einem größeren Winkel in die Fourierlinse, wodurch der Anteil kleiner Tropfen überrepräsentiert wird. Mit diesem Effekt geht gleichzeitig eine Verringerung des Obscuration-Werts einher, weil von der Mehrfachbeugung alle Raumrichtungen gleichermaßen betroffen sind und Licht somit den Wirkungsbereich der Empfängeroptik verläßt. Entsprechend empfiehlt

es sich die Messungen bei Obscuration - Werten zwischen 0.05 und 0.5 durchzuführen, also in einem Bereich, in dem 5% bis 50% des emittierten Laserlichts als Streulicht verloren gehen. Diese Grenzen stellen nur Richtwerte dar und hängen stark von den Versuchsbedingungen und der Art der untersuchten Probe ab. Im Referenz-Handbuch des Meßgeräts /46/ wird von Anwendern berichtet, die noch bei Obscuration-Werten von 0.9 gemessen haben. Die ermittelten Partikelgrößen wichen nicht mehr als 10% von den bei niedriger Partikelkonzentration gemessenen Werten ab. Wenn man bei höheren Obscuration-Werten messen will, ist es notwendig, die bei verschiedenen Obscuration-Werten erhaltenen Meßergebnisse zu vergleichen, um den Bereich in dem man akzeptable Resultate bekommt, zu ermitteln.

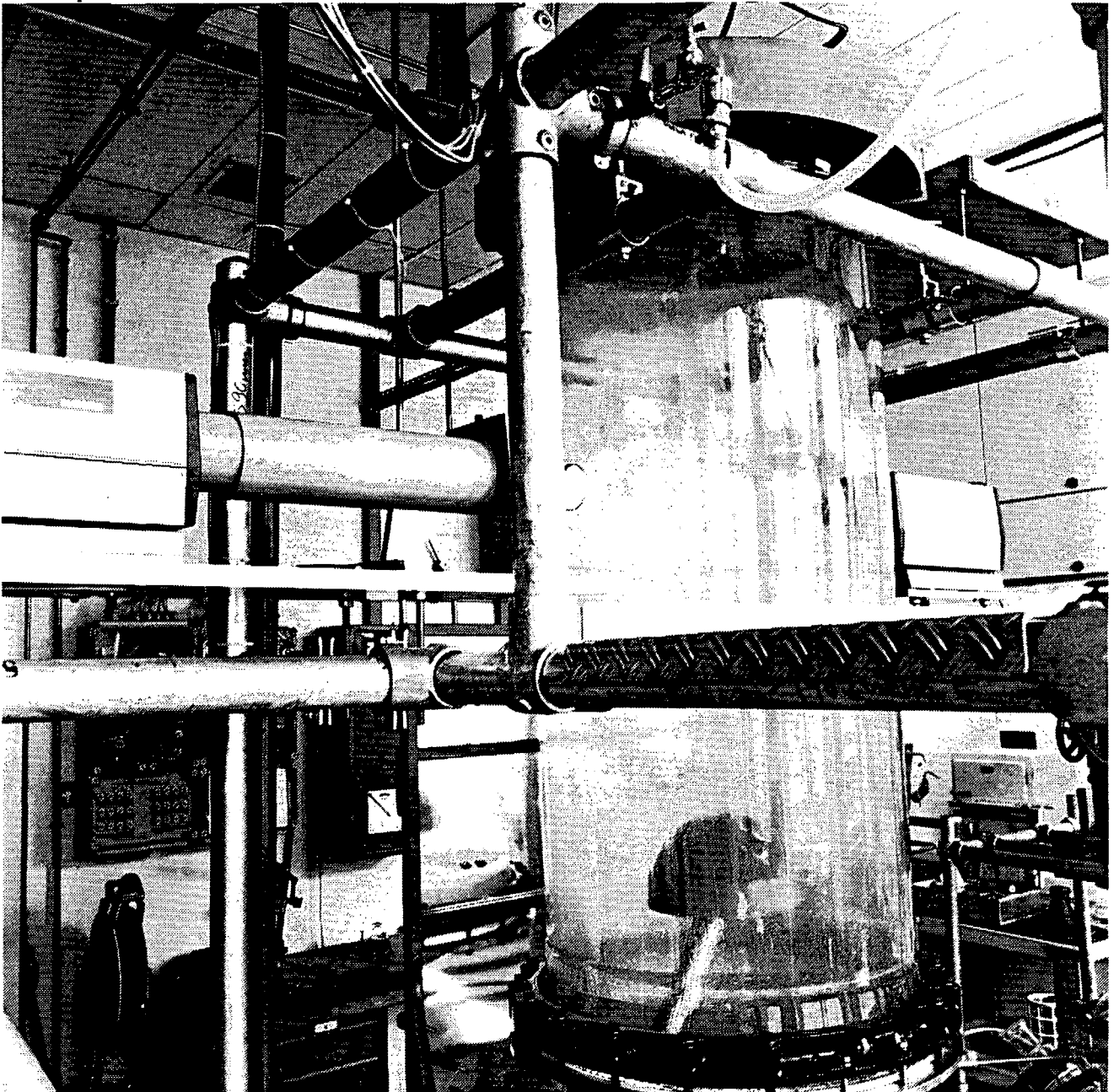


Bild 3

Sprühkammer mit Tropfengrößenmeßgerät

Es existieren auch rechnerische Verfahren, um bei hohen Obscuration-Werten eine Korrektur der Meßergebnisse vorzunehmen. Dodge /36/ hat eine empirische Gleichung zur Herleitung von Korrekturfaktoren entwickelt, die für Sauterdurchmesser $20\text{ }\mu\text{m} \leq d_{32} \leq 60\text{ }\mu\text{m}$ sowie für einen Streuparameter $N = 2.0$ begrenzt ist. Neben Dodge haben auch Felton et.al. /37/ nachgewiesen, daß eine Korrektur der Meßergebnisse im wesentlichen durch eine Funktion der Obscurationwerte und des Streuparameters erfolgen muß, um eine Messung bei starkem Streulicht noch als zuverlässiges Ergebnis ansehen zu können.

Ein Nachteil bei der Tropfengrößenmessung mit Beugungsspektrometern ist die fehlende Information über die Tropfengeschwindigkeiten. Nur aus der Kenntnis dieser Größe ist über eine Korrelation mit der Tropfengröße eine Bestimmung aller interessierenden Transportgrößen im Sprühnebel möglich /38/. Das Haupteinsatzgebiet der Beugungsspektrometrie liegt vor allem in der integralen Tropfengrößenbestimmung. Dodge et. al /39/ weisen darauf hin, daß sich das Meßverfahren hervorragend zur schnellen Erfassung des Betriebszustands bei systematischen Veränderungen der Zerstäuber-geometrie und der Prozeßparameter eignet. Außerdem ist ein unkomplizierter Vergleich von Düse zu Düse möglich.

5.3 Abmessungen der ausgewählten Düsen

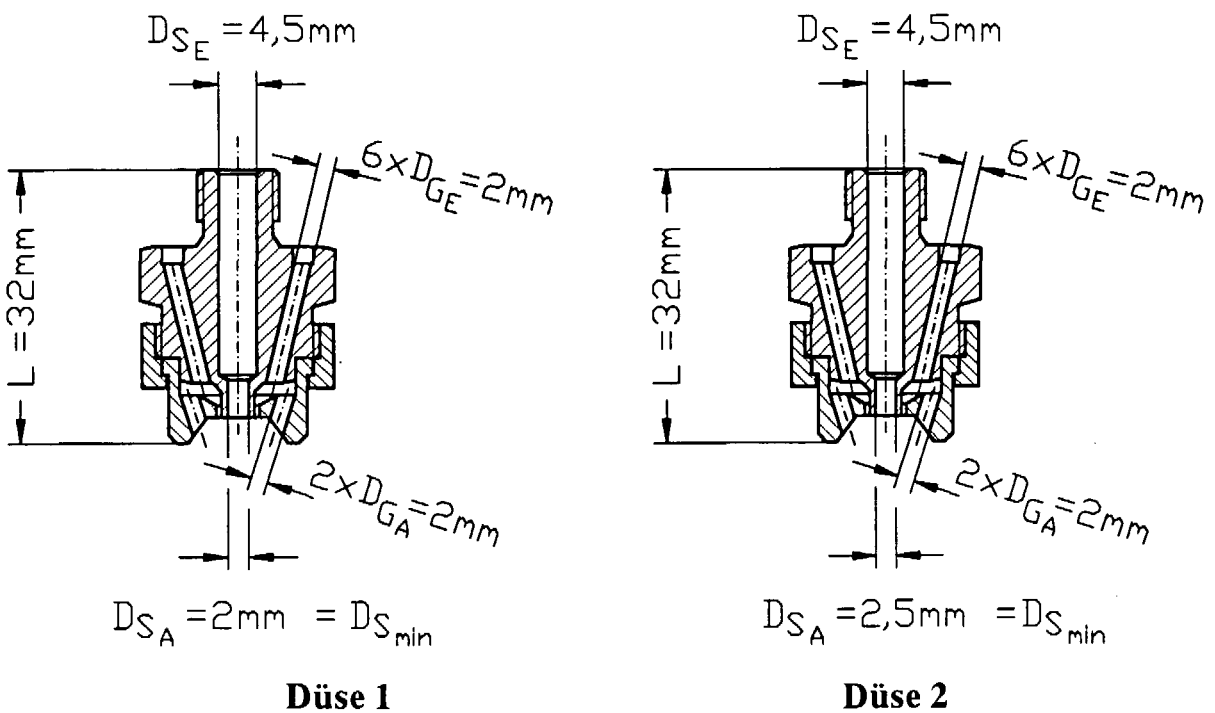


Abb. 5.6 Düse 1 und Düse 2 (Modell: External-Mix Flachstrahldüse der Firma Spraying System)

In den Abb.5.6 - 5.9 sind die in den Zerstäubungsversuchen verwendeten Düsentypen mit ihren maßgebenden geometrischen Abmessungen dargestellt. Für die Versuchsdurchführung wurden vier verschiedene Düsentypen ausgewählt, wobei bei drei der vier Düsentypen jeweils zwei unterschiedlich große Modelle untersucht wurden. Der übersichtlicheren Darstellung wegen werden die Düsen in der Versuchsauswertung mit "Düse 1" bis "Düse 7" bezeichnet.

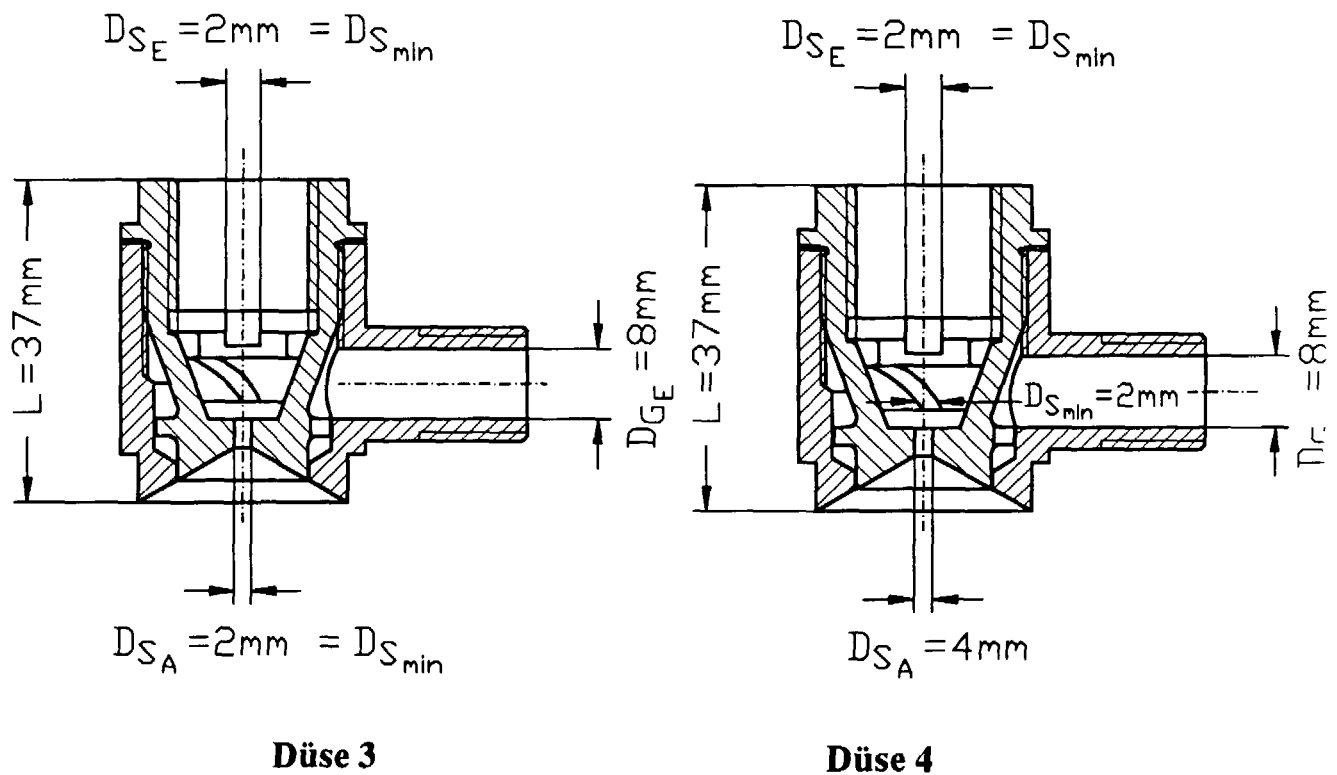
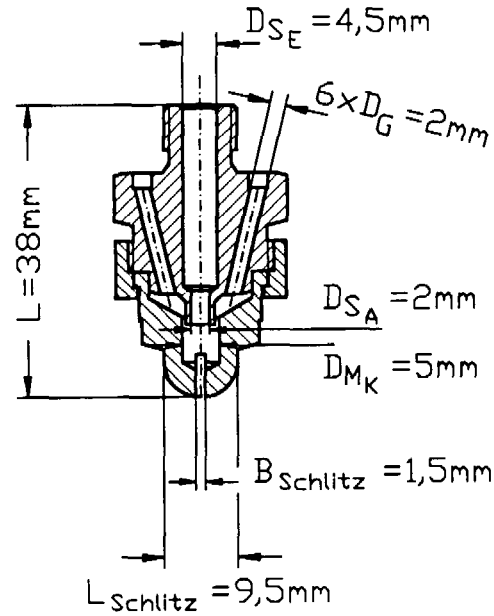
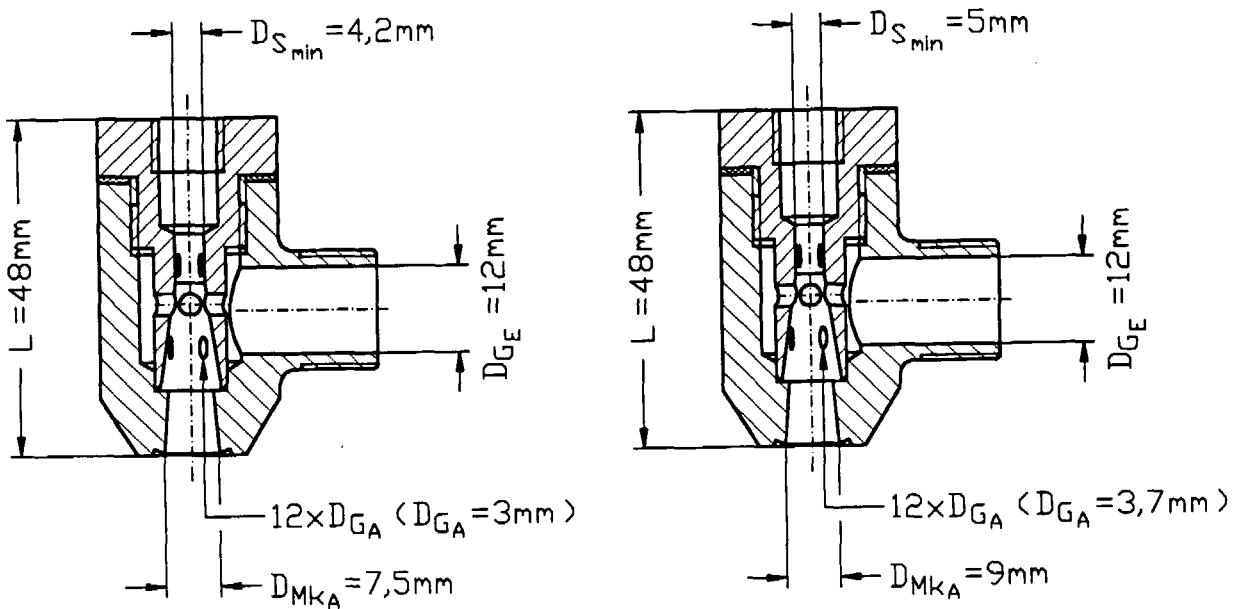


Abb. 5.7 Düse 3 und Düse 4 (Modell: KSD-Düse der Firma Lechler)

**Düse 5****Abb. 5.8** Düse 5 (Modell: Internal-Mix Flachstrahldüse der Firma Spraying System)**Düse 6****Düse 7****Abb. 5.9** Düsen 6 und 7 (Modell: Überschall-Pneumatikdüse der Firma Lechler)

6. Darstellung der Versuchsergebnisse

6.1 Festlegungen bei der Versuchsauswertung

Vor der Darstellung der Zerstäubungsergebnisse ist es notwendig, auf einige anlagentechnische und meßspezifische Sachverhalte näher einzugehen. Hierzu zählen vor allem die maximal möglichen Suspensions- und Zerstäubergasdurchsätze, die Wahl des Düsenabstands von der Meßebene, die Anzahl der Messungen pro Versuch, die Wahl der Schergeschwindigkeit bei der Viskositätsmessung und Erläuterungen zur Messung der Flüssigkeitsoberflächenspannung.

Die Zerstäubergasmenge wird durch den auf den Normzustand bezogenen Volumendurchfluß $\dot{V}_G$ dargestellt. Genau genommen handelt es sich beim "auf den Normzustand bezogenen Volumendurchfluß" um einen Massendurchfluß, der in der Maßeinheit Nm^3/h angegeben wird. In den Abb. 6.1 bis 6.4 wird für die untersuchten Düsen die Abhängigkeit der Zerstäubergasmenge (bei $T_G=22^\circ\text{C}$) vom aufzubringenden Betriebsdruck Δp_G , der immer unmittelbar vor dem Düsen Eintritt gemessen wurde, dargestellt. Im Gegensatz zu den Düsen mit äußerer Mischung lassen sich bei den Düsen mit innerer Mischung Suspensions- und Gasdurchsatz nicht unabhängig voneinander einstellen, weil der Druck in der Mischkammer und somit der Differenzdruck für beide Teilströme vom Gesamtdurchsatz abhängt. Als Folge hieraus tritt als zusätzliche Einflußgröße der Suspensionsvolumenstrom $\dot{V}_S$ auf.

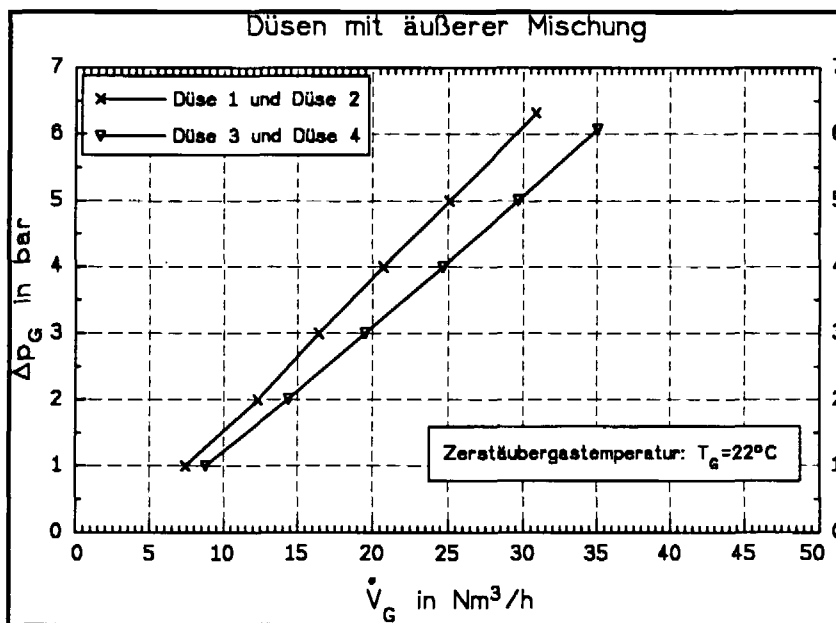


Abb. 6.1 Ermittlung des Zerstäubergasdrucks Δp_G (bei $T_G=22^\circ\text{C}$) für die Düsen mit äußerer Mischung.

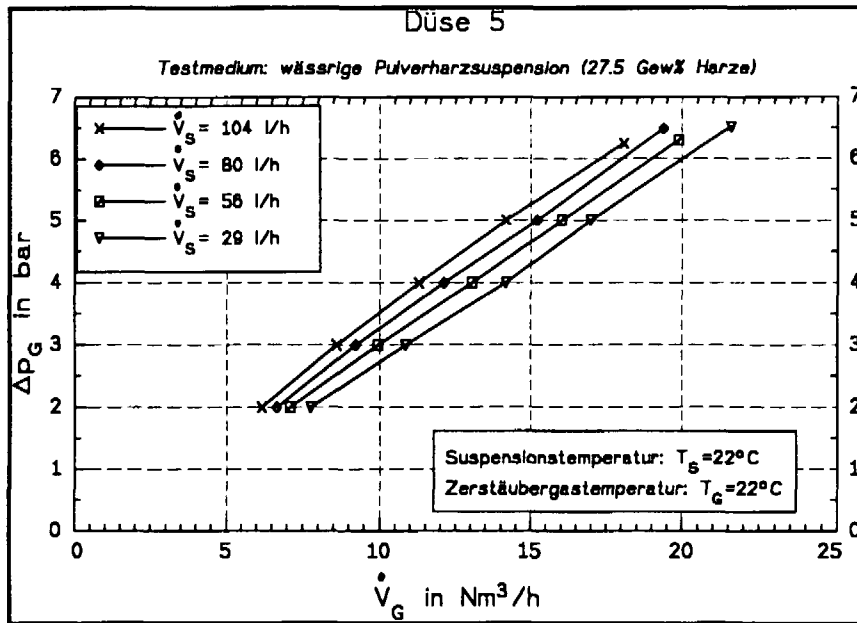


Abb. 6.2 Ermittlung des Zerstäubergasdrucks Δp_G (bei $T_G = 22^\circ\text{C}$) für die Düse 5

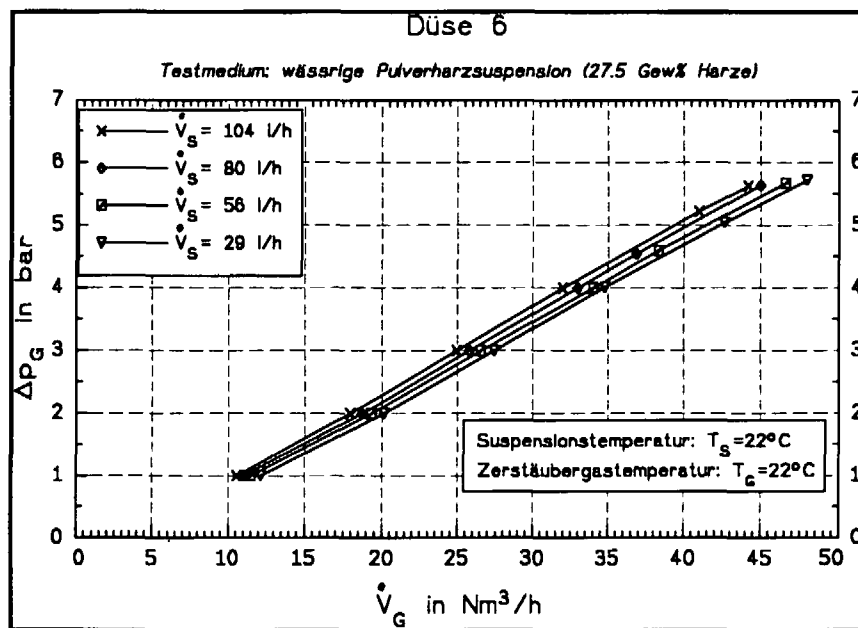


Abb. 6.3 Ermittlung des Zerstäubergasdrucks Δp_G (bei $T_G = 22^\circ\text{C}$) für die Düse 6

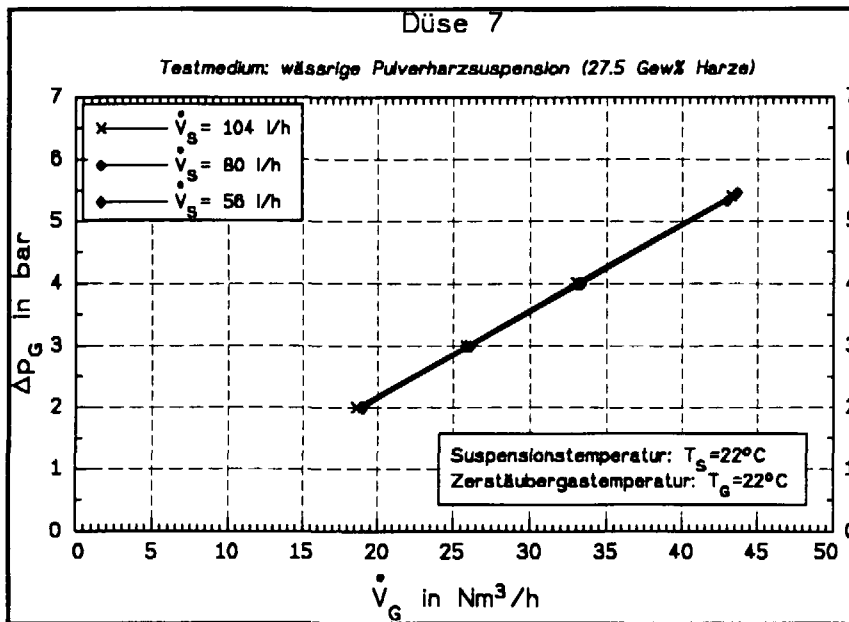


Abb. 6.4 Ermittlung des Zerstäubergasdrucks Δp_G (bei $T_G = 22^\circ\text{C}$) für die Düse 7

Die in den Abb. 6.1 bis 6.4 aufgestellten Beziehungen sind grundsätzlich für alle Zerstäubungsversuche mit wässrigen Suspensionen gültig. In den Sprühversuchen mit dem Trägermedium Öl wurde das Zerstäubergas zur Verbesserung der Zerstäubungseigenschaften von 22°C auf 80°C erwärmt. Die sich bei dieser Temperatur einstellenden Abhängigkeiten zwischen Δp_G und $\dot{V}_G$ werden gesondert in Kap. 6.5.1 dargestellt. Für alle Versuche ohne Drucklufterwärmung erhält man nach Umrechnung des Suspensionsmassenstroms $\dot{m}_s$ auf den Suspensionsvolumenstrom $\dot{V}_s$, durch Ablesen in der entsprechenden Abbildung, den interessierenden Betriebsdruck Δp_G .

Die scheinbare Unabhängigkeit des Gasdrucks vom Suspensionsvolumenstrom bei Düse 7 (s. Abb. 6.4) hängt mit den großen Querschnitten dieser Düse zusammen. Bei einer weiteren Steigerung des Suspensionsvolumenstroms würde eine deutlichere Abhängigkeit erkennbar werden.

Damit die Düsen untereinander verglichen werden können, ist es notwendig, genau definierte Meßbedingungen einzuhalten. In jedem Sprühversuch wurde die Düse deswegen so positioniert, daß der Laserstrahl durch den Mittelpunkt des Sprühkegelquerschnitts verläuft. Da der Abstand zwischen Düse und Laserstrahl einen Einfluß auf die Meßgröße hat, wurde durch Vorversuche geklärt, ab welchem Abstand bei der jeweiligen Düse kaum noch Änderungen im Meßergebnis zu verzeichnen waren. Dies war bei allen Düsen bei Abständen $A \geq 300\text{mm}$ der Fall. Deshalb wurde bei allen Sprühversuchen ein Abstand $A = 300\text{mm}$ gewählt.

Glaser und Cao /40/ bzw. Meyer und Chigier /41/ haben sich in Versuchen mit dieser Problematik näher beschäftigt. In beiden Quellen wird bestätigt, daß die Abweichungen zwischen den gemessenen Tropfengrößen ab einer bestimmten Entfernung zwischen Düse und Meßebebene nur noch sehr gering sind.

Jede einzelne Messung ist im Abstand von einer Minute zweimal wiederholt worden. Die Abweichungen innerhalb der drei Messungen waren unter regulären Versuchsbedingungen sehr gering. Wenn keine Verschmutzung der Linsen durch versprühte Suspensionspartikeln eintrat, lag die Standardabweichung der ermittelten Sauterdurchmesser immer unter 1%. Für die Versuchsauswertung wurde jeweils die Messung mit dem mittleren Sauterdurchmesser herangezogen.

Die Viskositätswerte wurden mit einem Rotationsviskosimeter der Firma Haake (Typ: RV 2), unter Verwendung des profilierten Zylinder-Meßsystems "MV IIP", ermit-

telt. Sie sind, nachdem der Drehzylinder von $D^*=0 \text{ s}^{-1}$ mit $\frac{\Delta n}{\Delta t} = 100 \text{ min}^{-2}$ beschleunigt wurde, bei einer Schergeschwindigkeit von $D^*=132 \text{ s}^{-1}$ gemessen worden.

Die Messungen der Flüssigkeitsoberflächenspannungen σ_A wurden mit einem KRÜSS-Digital-Tensiometer K10 (Plattenmethode) durchgeführt. Die Werte, die in der Versuchsreihe unter Zugabe von Naphtalintrisulfonsäure (NTS) ermittelt wurden, liegen unterhalb der Oberflächenspannung von reinem Wasser, weil nicht das gesamte NTS von der Oberfläche der Feststoffpartikeln absorbiert wird. Teile des zugegebenen Tensids liegen gelöst im Wasser vor und bewirken eine Reduzierung der Oberflächenspannung σ_A .

6.2 Notwendigkeit der Vorbehandlung von Ionenaustauscherharz-Suspensionen

Die rheologischen Untersuchungen an wässrigen Pulverharzsuspensionen haben gezeigt, daß eine Steigerung der Feststoffkonzentration unter Beibehaltung guter Fließeigenschaften möglich ist. Positiv wirken sich insbesondere die Zugabe von Naphtalintrisulfonsäure (NTS) sowie die Trocknung der Pulverharze aus. Dies ist auch der Grund dafür, daß in allen Zerstäubungsversuchen, mit Wasser als Trägerflüssigkeit, eine Vorbehandlung der Suspension mit einem der beiden Verfahren durchgeführt wurde.

Eine Trocknung der Pulverharze für die Herstellung von Ölsuspensionen ist in jedem Fall notwendig, weil die feuchten Harze in Verbindung mit Öl größere Agglomerate bilden. Die Pulverharze wurden deshalb vor dem Anrühren der Suspension über einen Zeitraum von 24 Stunden im Trockenschrank ($T = 120^\circ\text{C}$) getrocknet.

6.3 Zerstäubung wässriger Pulverharzsuspensionen mit Zweistoffdüsen

Systematische Untersuchungen zur Suspensionszerstäubung mit Zweistoffdüsen, wie etwa die Auswahl einer geeigneten Düse, der Einfluß des Korngrößenspektrums, der Feststoffkonzentration und der PAN-Fasern, wurden weitgehend mit wässrigen Suspensionen durchgeführt. Diese Vorgehensweise hat sich als sinnvoll erwiesen, weil die Durchführung von Zerstäubungsversuchen mit wässrigen Suspensionen erheblich weniger Aufwand erfordert als vergleichbare Versuche mit Rückstandsöl als Trägerflüssigkeit.

6.3.1 Zerstäubungsversuche zum Vergleich und zur Beurteilung der ausgewählten Düsentypen

Um die ausgewählten Düsen von ihrer Leistungscharakteristik her zu vergleichen (mit Ausnahme von Düse 7), wurde mit allen eine Pulverharzsuspension mit 27 Gew.% Feststoffanteil zerstäubt. Aufgrund des sehr hohen Feststoffgehalts war die Zugabe von 4.5 Gew.% NTS zur Aufrechterhaltung der Fließeigenschaften notwendig. Die Leistungscharakteristik der untersuchten Düsen ist in Abb. 6.5 dargestellt.

Es ist zu erkennen, daß die Zweistoff-Düsen mit innerer Mischung die kleinsten Tropfen liefern. Der Grund für die bessere Zerstäubung liegt in der intensiveren Durchmischung von Gas und Suspension. Insbesondere Düse 5 erzeugt schon bei geringen Gasdurchsätzen kleine Sauterdurchmesser. Die Überschall-Pneumatikzerstäuberdüse der Firma Lechler (Düse 6) liefert ähnlich kleine Tropfen. Allerdings sind wegen des größeren Düsenaustrittsquerschnitts um mehr als zweifach höhere Gasdurchsätze notwendig.

Interessant ist ein Vergleich der baugleichen, aber unterschiedlich großen, Düsen 1 und 2 (s. Abb. 6.6 und 6.7). Düse 2 hat mit $D_{s_A} = 2.5$ mm suspensionsseitig einen Austrittsdurchmesser, der etwas größer ist als der von Düse 1. Größere Düsendurchmesser erzeugen einen breiteren Suspensionsstrahl und damit auch eine geringere Angriffsfläche für das Zerstäubergas. Dem Vorteil einer geringeren Verstopfungsgefahr steht also der Nachteil größerer Tropfen entgegen. Die Unterschiede im Sauterdurchmesser sind bis zu einem Gasstrom von etwa $15 \text{ Nm}^3/\text{h}$ allerdings gering. Mit steigenden Gasdurchsätzen reduzieren sich bei Düse 1 die Sauterdurchmesser erwartungsgemäß stärker als bei Düse 2. Bei maximalem Gasdurchsatz von $30 \text{ Nm}^3/\text{h}$ wurde ein im Vergleich zur Düse 2 um etwa $8 \mu\text{m}$ kleinerer Sauterdurchmesser ermittelt. Die Unterschiede zwischen den baugleichen Düsen 3 ($D_{s_A} = 2$ mm) und 4 ($D_{s_A} = 4$ mm) sind

ebenfalls gering. Beim maximalen Gasdurchsatz von 35 Nm³/h unterscheidet sich der Sauterdurchmesser nur um etwa 2 µm (vgl. Abb. 6.8 und 6.9).

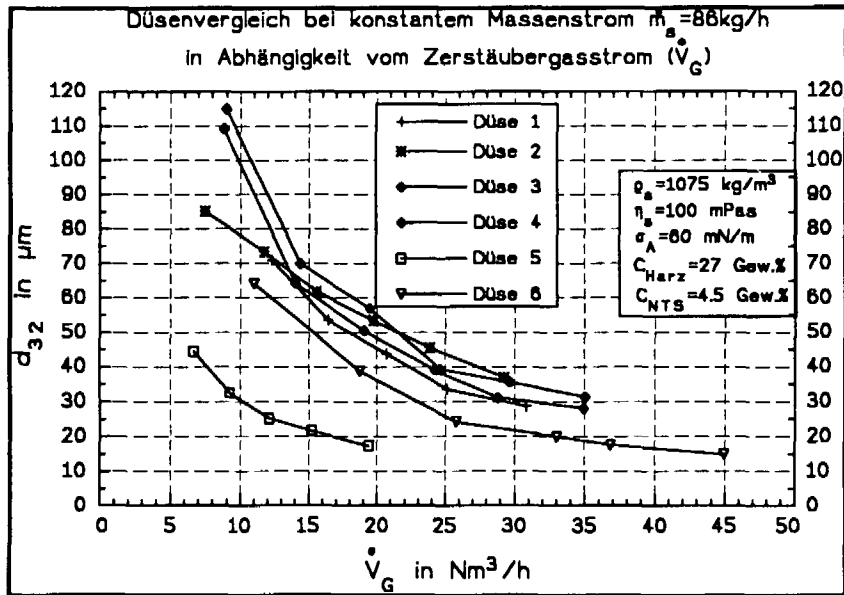


Abb. 6.5 Leistungcharakteristik der Düsen 1 bis 6 in Sprühversuchen mit einer hoch konzentrierten Pulverharzsuspension (Mischungsverhältnis: Kationenaustauscher- / Anionenaustauscher = 3:1)

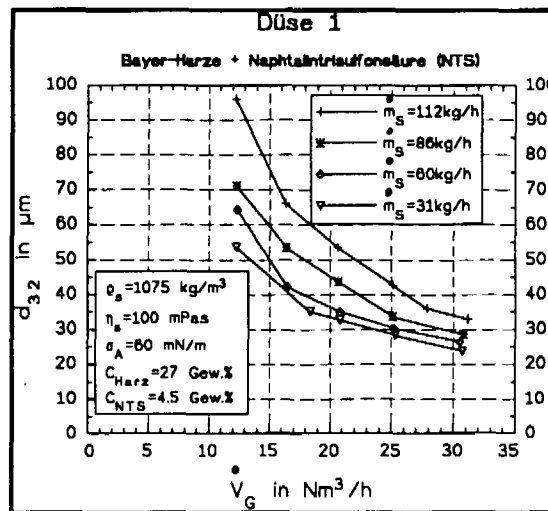


Abb. 6.6 Düse 1: Sauterdurchmesser in Abhängigkeit vom Suspensionsmassenstrom und der Zerstäubergasmenge

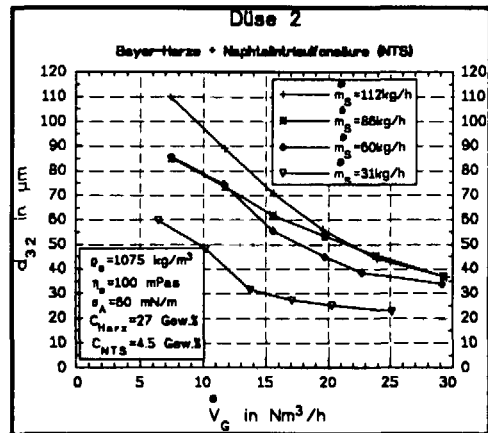


Abb. 6.7 Düse 2: Sauterdurchmesser in Abhängigkeit vom Suspensionsmassenstrom und der Zerstäubergasmenge

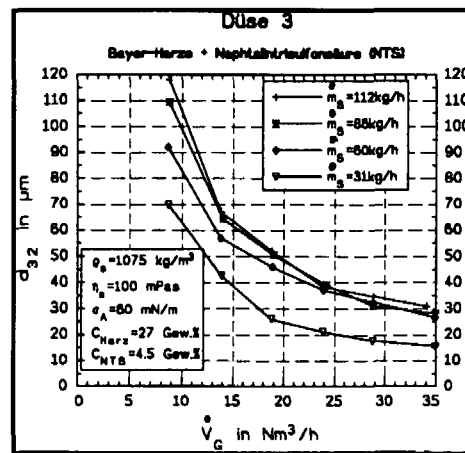


Abb. 6.8 Düse 3: Sauterdurchmesser in Abhängigkeit vom Suspensionsmassenstrom und der Zerstäubergasmenge

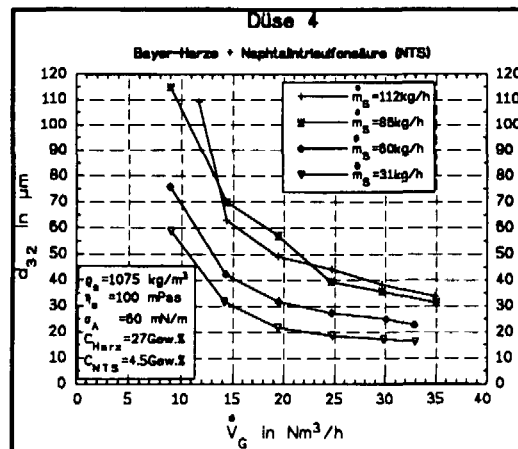


Abb. 6.9 Düse 4: Sauterdurchmesser in Abhängigkeit vom Suspensionsmassenstrom und der Zerstäubergasmenge

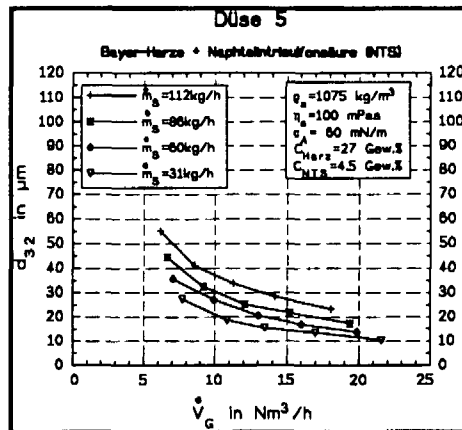


Abb. 6.10 Düse 5: Sauterdurchmesser in Abhängigkeit vom Suspensionsmassenstrom und der Zerstäubergasmenge

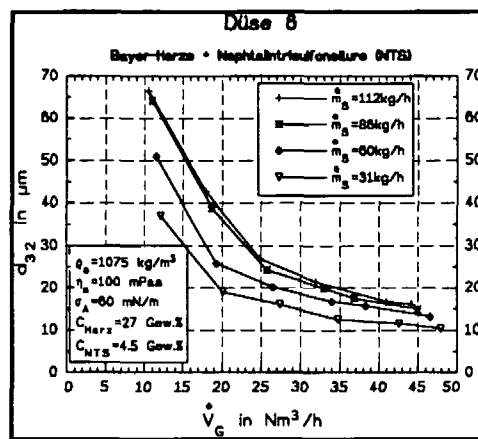


Abb. 6.11 Düse 6: Sauterdurchmesser in Abhängigkeit vom Suspensionsmassenstrom und der Zerstäubergasmenge

Umgekehrt bewirkt eine Reduzierung des Suspensionsdurchsatzes eine Verringerung des Sauterdurchmessers (s. Abb. 6.6 - 6.11). Dabei fällt die Abnahme im Bereich größerer Zerstäubergasströme wesentlich geringer aus als im unteren Bereich. Eine Reduzierung des Suspensionsmassenstroms von 112 kg/h auf 31 kg/h brachte bei den sechs untersuchten Düsen im unteren Zerstäubergasstrombereich eine Reduzierung des Sauterdurchmessers zwischen 30 µm und 60 µm, im oberen Bereich hingegen nur eine zwischen 5 µm und 20 µm. Erklärt werden kann dieser Effekt damit, daß die Tropfengrößenverteilung und somit auch der sie charakterisierende Sauterdurchmesser mit wachsenden kinetischen Gasenergien einem theoretischen Grenzwert zustrebt. Dies bedeutet, daß trotz steigender Zerstäubergasmenge, ab einer bestimmten Grenze, keine nennenswert kleineren Tropfen mehr erzeugt werden. Besonders gut läßt sich dies am Beispiel hoher Verhältnisse $\dot{m}_G / \dot{m}_S$ aufzeigen. Vergleicht man die Kurvenverläufe der verschiedenen Düsen beim Suspensionsmassenstrom $\dot{m}_S = 31$ kg/h, so erkennt man, daß

die Sauterdurchmesser der Düsen 1 und 2 mit wachsenden Gasströmen gegen einen Wert von $20\text{ }\mu\text{m}$ zustreben, Düse 3 und 4 haben einen Grenzwert von $15\text{ }\mu\text{m}$ und die Düsen 5 und 6 einen von $10\text{ }\mu\text{m}$.

Betrachtet man die Kurvenverläufe bei einem Suspensionsmassenstrom von $\dot{m}_s = 112\text{ kg/h}$, also in einem Bereich geringerer $\dot{m}_g / \dot{m}_s$ -Verhältnisse, so sieht man, daß mit höheren Gasdrücken noch etwas kleinere Tropfen zu erzeugen sind. Die Sauterdurchmesser streben mit wachsendem Zerstäubergasstrom Grenzwerten zu, die je nach Düse zwischen $5\text{ }\mu\text{m}$ und $10\text{ }\mu\text{m}$ unterhalb der eingezeichneten Minimalwerte liegen.

Die beiden KSD-Düsen (1 und 2), die speziell für die Zerstäubung höher viskoser Medien entwickelt wurden, unterscheiden sich in ihrer Leistungscharakteristik kaum von der External Mix-Flachstrahldüse (Düse 3 und 4), obwohl diese suspensionsseitig nur einfache Rohrdüsen sind. Die Besonderheit der KSD-Düse liegt darin, daß die Suspension innerhalb der Düse stark rotiert. Die Suspension tritt aus der Düse als hyperbolisch ausgebildeter Lamellenfilm aus, der dem Zerstäubergasstrom eine besonders große Angriffsfläche bietet. Eine Entartung des Lamellenfilms zu einem Vollstrahl, infolge zu hoher Suspensionsviskositäten, kann ausgeschlossen werden, weil beim Abschalten des Zerstäubergasstroms der ausgebildete Lamellenfilm deutlich erkennbar war.

Eine Beurteilung der Zerstäubungsgüte nur mit Hilfe des Sauterdurchmessers wäre unvollständig, weil es sich hierbei nur um eine integrale Betrachtung des Zerstäubungsvorgangs handelt. Im Hinblick auf den Verbrennungsschritt muß das gesamte produzierte Tropfenspektrum berücksichtigt werden.

Orientiert man sich an den von Hoshino et. al. /6/ durchgeführten Verbrennungsversuchen, so erzielt man bei Sauterdurchmessern d_{32} mit Werten zwischen $80\text{ }\mu\text{m}$ und $100\text{ }\mu\text{m}$ noch eine einwandfreie Verbrennung. In den erwähnten Versuchen wurde eine wässrige Pulverharzsuspension (25 Gew.% Harzgehalt ohne PAN-Faseranteile) in einem Suspensionsbrenner verbrannt. Die Zerstäubung erfolgte mit einer Düse, die von der Konstruktion her mit der External-Mix Flachstrahldüse (Düse 3 und 4) verglichen werden kann. Der Austrittsdurchmesser wird mit $D_{sA} = 3\text{ mm}$ angegeben und ist so etwas größer als die der untersuchten Düsen 3 und 4.

In den Abb. 6.12 - 6.13 wird am Beispiel von Düse 6 dargestellt, wie sich das Tropfenspektrum bei Variation des Suspensionsmassenstroms und des Zerstäubergasstroms ändert. Düse 6 ist insofern von besonderem Interesse, weil sie zusammen mit Düse 5

(Internal-Mix Flachstrahldüse) die kleinsten Tropfen produziert und nebenbei noch aufgrund ihrer großen Querschnitte besonders störungsfrei arbeitet.

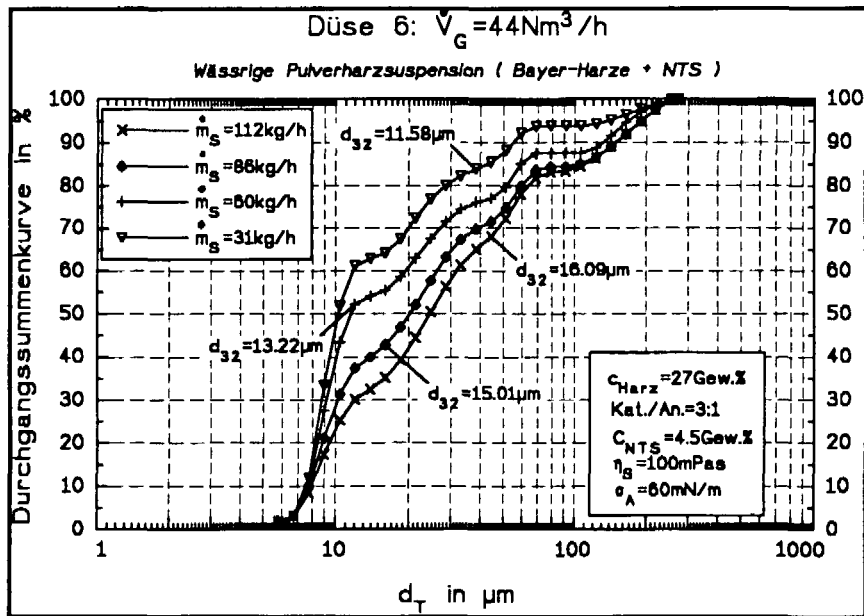


Abb. 6.12 Düse 6: Tropfengrößenverteilung in Abhängigkeit vom Suspensionsmassenstrom $\dot{m}_s$ bei konstantem Zerstäubergasstrom $\dot{V}_G$

In Abb. 6.12 ist dargestellt, wie sich das Tropfenspektrum in Abhängigkeit vom Suspensionsmassenstrom bei konstantem Zerstäubergasstrom $\dot{V}_G = 44 \text{ Nm}^3/\text{h}$ ändert. Obwohl die Tendenz zu kleineren Tropfen bei verringerten Suspensionsdurchsätzen erkennbar ist, weist der Tropfengrößenbereich kaum Unterschiede auf. Ein Großteil der Tropfen (etwa 90 %) liegt in einem relativ engen Bereich zwischen $7 \mu\text{m}$ und $200 \mu\text{m}$.

Eine Reduzierung der Zerstäubergasmenge $\dot{V}_G$ (s. Abb. 6.13) führt zu einer geringen Aufweitung des Tropfengrößenspektrums. Die kleinsten Tropfen liegen dann zwischen $6 \mu\text{m}$ und $8 \mu\text{m}$. Nach oben hin erweitert sich das Spektrum bis zu einem Durchmesser von etwa $450 \mu\text{m}$. Bei einer Zerstäubergasmenge von $17.94 \text{ Nm}^3/\text{h}$ sind aber immer noch 90 % der Tropfen kleiner als $200 \mu\text{m}$. Mit Düse 6 können daher über dem im Versuch gefahrenen Regelbereich nicht nur kleine Sauterdurchmesser sondern auch Tropfenverteilungen, die sehr eng beieinander liegen, erzielt werden. Für einen Verbrennungsprozeß ist dieses Ergebnis deshalb wichtig, weil nicht abzuschätzen ist, welche Betriebsbedingungen später die besten Verbrennungsergebnisse liefern. Die Verfahrensparameter, bei denen die kleinsten Tropfen entstehen, müssen zwangsläufig nicht auch die günstigsten sein. So liefern hohe Verhältnisse $\dot{m}_G / \dot{m}_s$ zwar kleinere Tropfen, führen aber auch dazu, daß die Suspension die Düse stoßartig verläßt, was sich möglicherweise ungünstig auf eine gleichmäßige Verbrennung auswirkt. Dies tritt bei höheren Gasdrücken und

Massenströmen $\dot{m}_S < 45 \text{ kg/h}$ auf und konnte bei den Versuchen akustisch und optisch wahrgenommen werden.

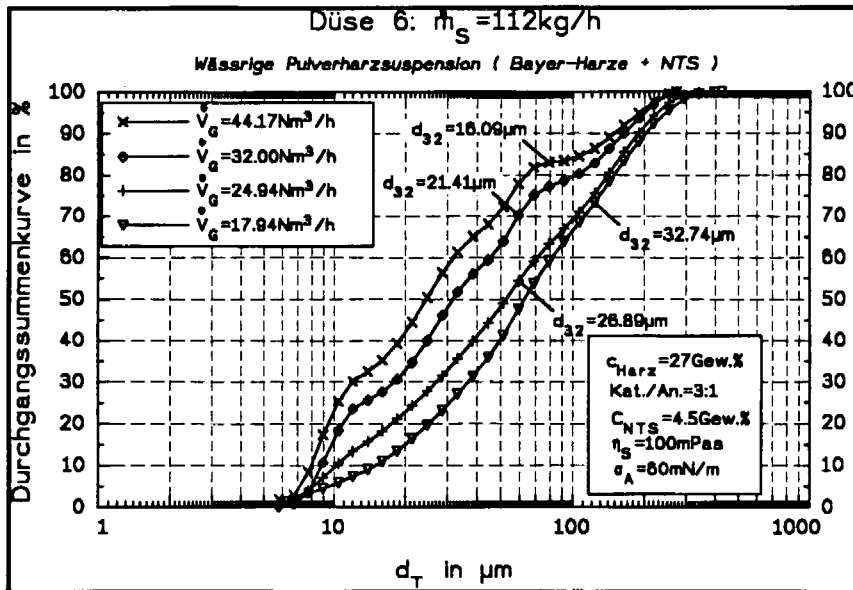


Abb. 6.13 Düse 6: Tropfengrößenverteilung in Abhängigkeit vom Zerstäubergasstrom $\dot{V}_G$ bei konstantem Suspensionsmassenstrom $\dot{m}_S$

6.3.2 Einfluß des Korngrößenspektrums bzw. der verwendeten Pulverharzsorte

Die Feststoffteilchengröße d_K stellt eine wichtige Einflußgröße dar, weil die Feststoffe als nicht mehr zerteilbare Teilchen im Sprühnebel vorzufinden sind. Aus diesem Grund wurden zwei Pulverharzsorten mit unterschiedlicher Kornverteilung eingesetzt. Dabei zeichneten sich die Harze der Firma Graver gegenüber denen der Firma Bayer durch eine deutlich feinere Verteilung aus. Abb. 6.14 - 6.17 veranschaulichen den Einfluß der Korngrößenspektren auf die Tropfengrößenverteilungen im Sprühnebel.

Zur Verdeutlichung der Ergebnisse sind neben den Tropfengrößenverteilungen (TGV) auch die Korngrößenverteilungen (KGV) beider Harztypen (Mischungsverhältnis: Kationen- / Anionenaustauscher = 3:1) aufgetragen. Die Tropfengrößenverteilungen wurden bei einem konstanten Suspensionsdurchsatz von $\dot{m}_S = 87 \text{ kg/h}$ ermittelt.

Obwohl beide Harztypen chemisch vergleichbar sind, nehmen die Graver-Harze etwas weniger Quellwasser auf als die Bayer-Harze. Eine Erklärung hierfür ist wahrscheinlich in der Herstellungsweise (Vernetzer-Anteil) zu suchen.

Das unterschiedliche Wasseraufnahmevermögen ist auch der Grund dafür, daß eine Harzsuspension mit 28.5 Gew.% Graver-Harzen und 5 Gew.% NTS die gleiche Viskosität ($\eta_s = 100 \text{ mPa s}$) hat wie eine Suspension mit 27 Gew.% Bayer-Harzen und 4.5 Gew.% NTS. Bei konstantem Feststoffgehalt bewirken kleinere Korngrößen einen Anstieg der Suspensionsviskosität (vgl. Abb. 3.8, Kap. 3.2.1.2).

Da die Suspensionsviskositäten ebenfalls einen Einfluß auf die Tropfenbildung haben, wurde für diese Versuchsreihe eine einheitliche Viskosität von $\eta_s = 100 \text{ mPa s}$ eingestellt. Die Ergebnisse der Abb. 6.14 - 6.17 sind bei einem konstanten Suspensionsdurchsatz von $\dot{m}_s = 87 \text{ kg/h}$ und dem höchst möglichen Gasdruck ermittelt worden.

Aus den Abbildungen kann man ersehen, daß für alle vier Düsenmodelle kein nennenswerter Einfluß der Korngrößenverteilung auf die Tropfengrößenverteilung feststellbar ist. Auch in weiteren Versuchen, in denen eine Variation des Suspensionsmassenstroms bzw. der Zerstäubergasmenge durchgeführt wurde, war nicht zu erkennen, daß kleinere Korngrößen auch zu kleineren Tropfengrößen führen. Grundsätzlich läßt sich feststellen, daß unter der Voraussetzung ähnlicher Suspensionsviskositäten der Tropfengrößenverlauf beim Zerstäuben einer Suspension mit Bayer-Harzen annähernd den Verlauf wiedergibt, den man auch beim Zerstäuben einer Suspension mit den kleineren Graver-Harzen erhält. Da aber die Größe der Feststoffpartikeln und nicht die der Suspensionstropfen die Verbrennungszeit maßgeblich beeinflussen, ist es natürlich in jedem Fall günstiger, wenn ein möglichst kleines Korngrößenspektrum vorliegt.

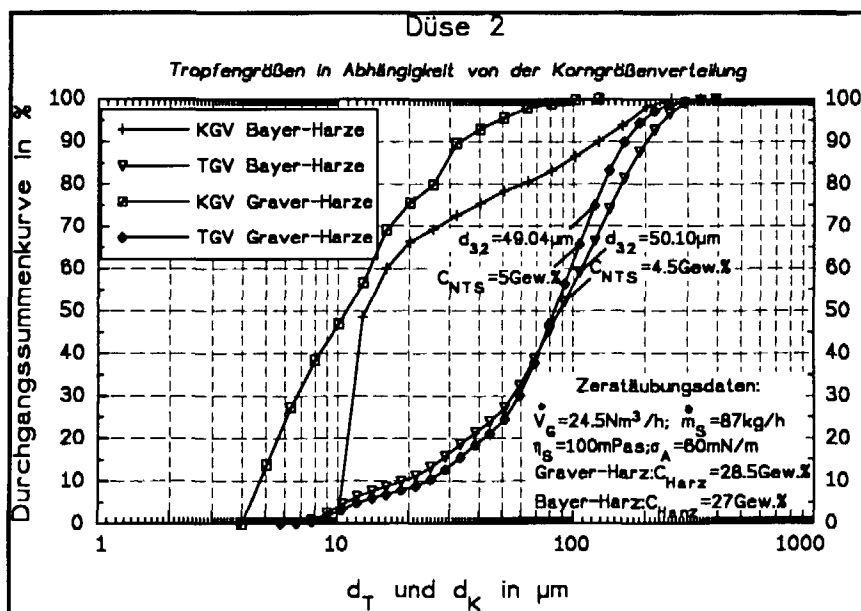


Abb. 6.14 Düse 2: Vergleich der Zerstäubungsergebnisse wässriger Pulverharzsuspensionen (+ NTS) mit Pulverharzen der Firma Bayer und Graver

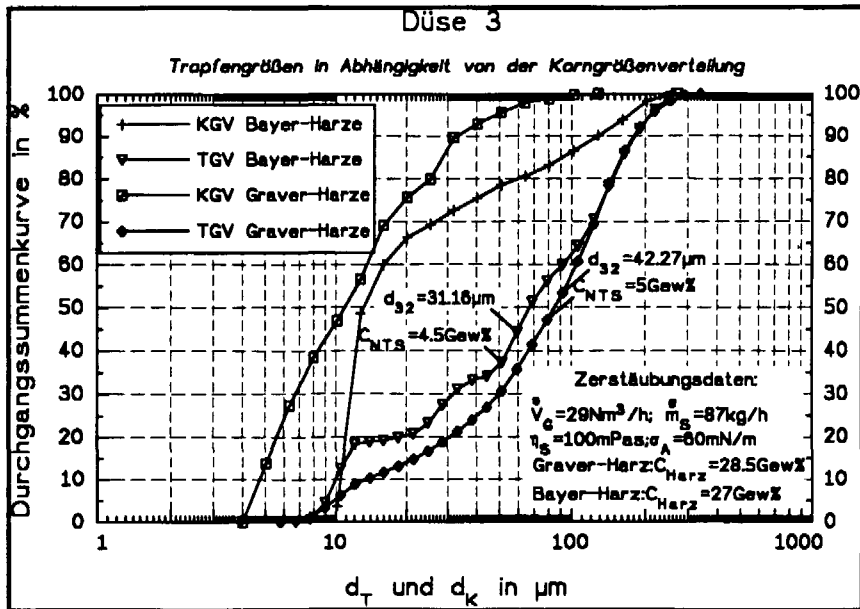


Abb. 6.15 Düse 3: Vergleich der Zerstäubungsergebnisse wässriger Pulverharz-suspensionen (+ NTS) mit Pulverharzen der Firma Bayer und Graver

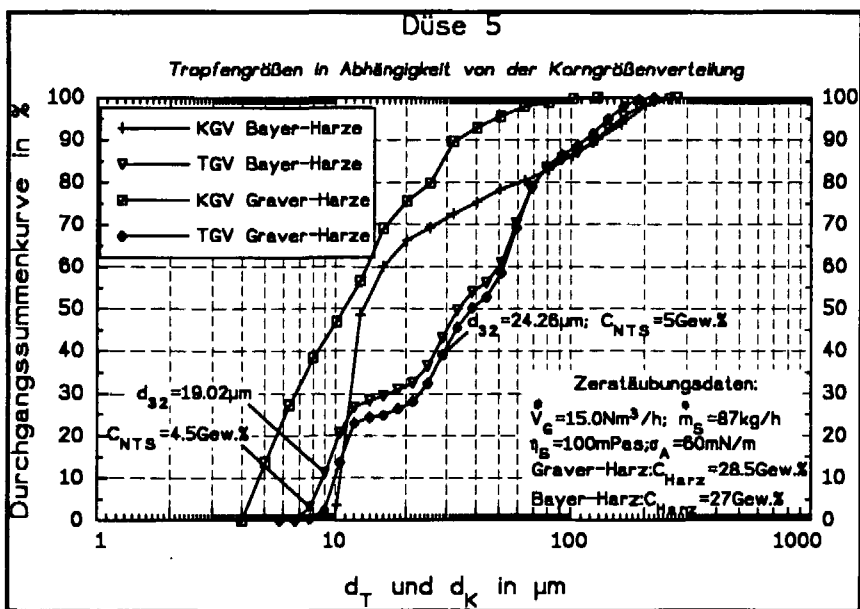


Abb. 6.16 Düse 5: Vergleich der Zerstäubungsergebnisse wässriger Pulverharz-suspensionen (+ NTS) mit Pulverharzen der Firma Bayer und Graver.

Aus den vier Abbildungen kann man deutlich die Überlegenheit der intern mischenden gegenüber den extern mischenden Düsen ablesen. Insbesondere Düse 6 weist eine Tropfengrößenverteilung auf, die der Idealvorstellung, einer der Korngrößenverteilung angepaßten Tropfengrößenverteilung (s. auch Abb. 6.15), sehr nahe kommt. Wichtig für einen gleichmäßigen und möglichst vollständigen Abbrand ist vor allem ein geringer Grobtropfenanteil und damit verbunden eine enge Tropfengrößenverteilung. Während

bei den Düsen 5 und 6 weniger als 15% der Tropfen größer als $100\text{ }\mu\text{m}$ sind, beträgt dieser Anteil bei den Düsen 2 und 3 immerhin an die 40%.

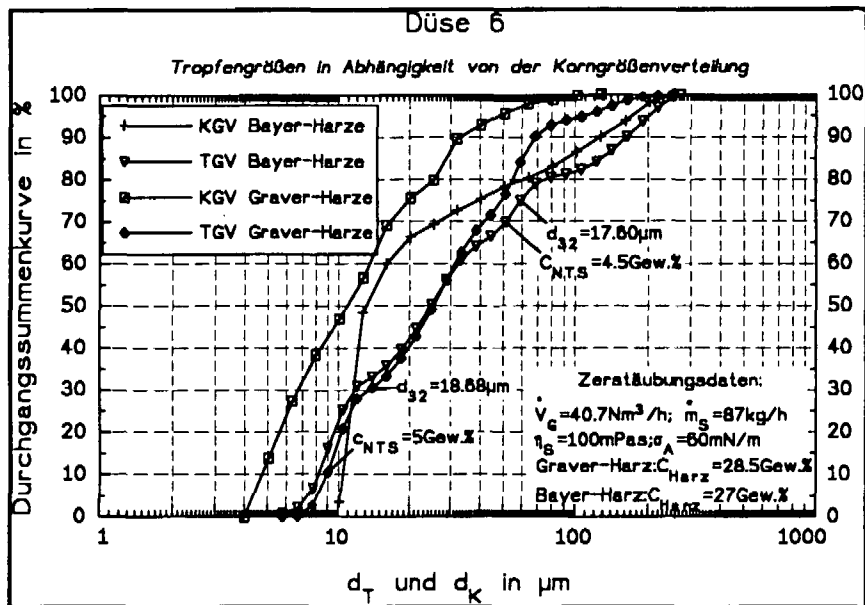


Abb. 6.17 Düse 6: Vergleich der Zerstäubungsergebnisse wässriger Pulverharzsuspensionen (+ NTS) mit Pulverharzen der Firma Bayer und Graver.

Zu den Ergebnissen mit Düse 5 bleibt anzumerken, daß bei allen Versuchen mit wässrigen Pulverharzsuspensionen im Tropfengrößenbereich zwischen $10\text{ }\mu\text{m}$ und $20\text{ }\mu\text{m}$, eine Tropfenverarmung festzustellen ist. Diese Tropfenverarmung macht sich insbesondere im Bereich hoher Zerstäubergasdrücke bemerkbar, ist aber auch bei geringeren Drücken noch deutlich erkennbar. Im Sinne einer guten Verbrennung ist eine über einem größeren Bereich auftretende Tropfenverarmung unbedingt zu vermeiden, weil neben einer engen Tropfengrößenverteilung auch eine möglichst homogene Verteilung anzustreben ist.

6.3.3 Einfluß der Feststoffkonzentration bzw. der Suspensionsviskosität

Bereits bei der dimensionsanalytischen Betrachtung des Zerstäubungsvorgangs ist auf die besondere Bedeutung der Suspensionsviskosität für den Prozeß der Tropfenbildung hingewiesen worden (s. Kap. 4.2.2.3). Viskositätssteigernd wirkt sich vor allem eine Erhöhung der Feststoffkonzentration aus.

Vergleichende Zerstäubungsversuche mit einer niedrig konzentrierten (23 Gew.% Graver-Harze) und einer sehr hoch konzentrierten Pulverharzsuspension

(30 Gew.% Graver-Harze) sollten Aufschluß darüber geben, welche Folgen eine Zunahme der Feststoffkonzentration bzw. der Suspensionsviskosität auf die Tropfenbildung der vier untersuchten Düsenmodelle hat.

In der Versuchsauswertung (s. Abb. 6.18-6.21) sind die Werte für die Sauterdurchmesser in Abhängigkeit vom Zerstäubergasstrom aufgetragen. Der Suspensionsvolumenstrom betrug in allen Versuchen konstant $\dot{V}_S = 80 \text{ l/h}$.

Bei den Düsen mit äußerer Mischung (Düse 2 und 3) ist klar erkennbar, daß höhere Feststoffkonzentrationen auch zur Bildung größerer Tropfen führen. Im Bereich hoher Gasdurchsätze wurden beim Zerstäuben der hoch konzentrierten Suspension Sauterdurchmesser ermittelt, die bei beiden Düsen mit Werten von ca. $40 \mu\text{m}$ um rund 30% größer sind, als die Werte beim Zerstäuben der niedrig konzentrierten Suspension. Erstaunlicherweise gilt diese Beobachtung jedoch nicht für die beiden Düsen 5 und 6. Aus Abb. 6.20 und 6.21 ist deutlich zu erkennen, daß die Feststoffkonzentration über dem gesamten Untersuchungsbereich praktisch keinen Einfluß auf den Verlauf der Sauterdurchmesser hat. Aus den Ergebnissen läßt sich folgern, daß auch im Falle hoher Feststoffkonzentrationen eine intensive Durchmischung von Gas und Suspension innerhalb der Düse stattfindet und sich so eine optimale Zerstäubung vollzieht.

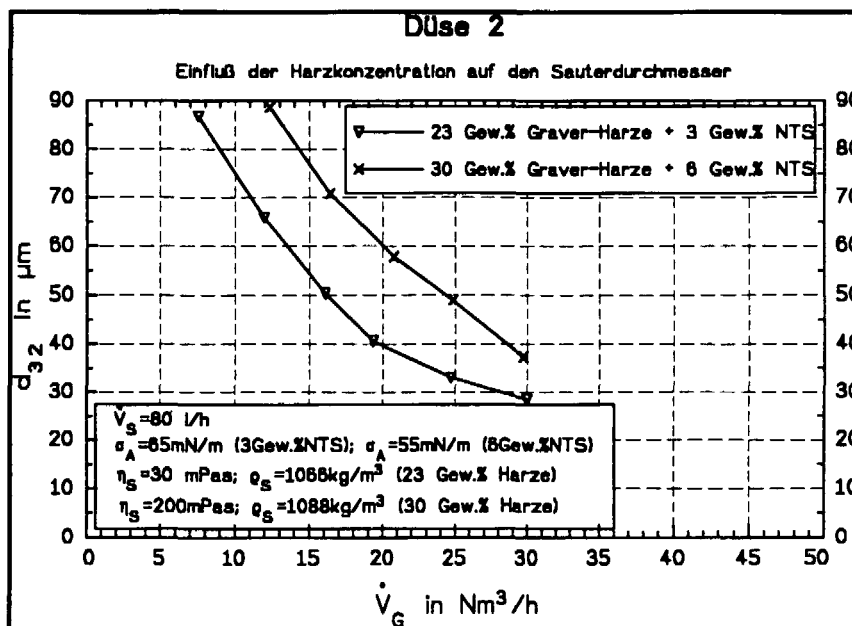


Abb. 6.18 Düse 2: Einfluß des Feststoffgehalts auf die Zerstäubung wässriger Pulverharzsuspensionen (Graver - Harze)

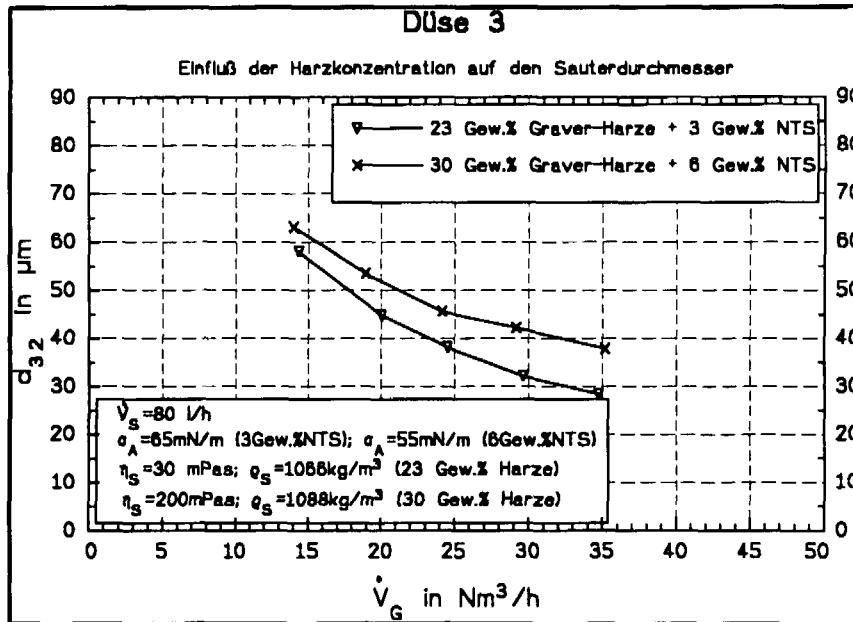


Abb. 6.19 Düse 3: Einfluß des Feststoffgehalts auf die Zerstäubung wässriger Pulverharzsuspensionen (Graver-Harze)

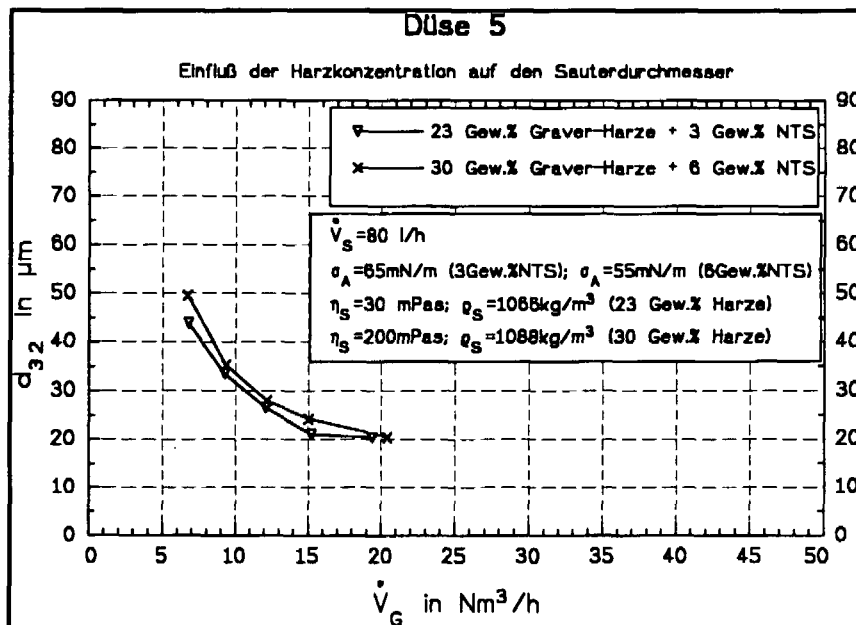


Abb. 6.20 Düse 5: Einfluß des Feststoffgehalts auf die Zerstäubung wässriger Pulverharzsuspensionen (Graver-Harze)

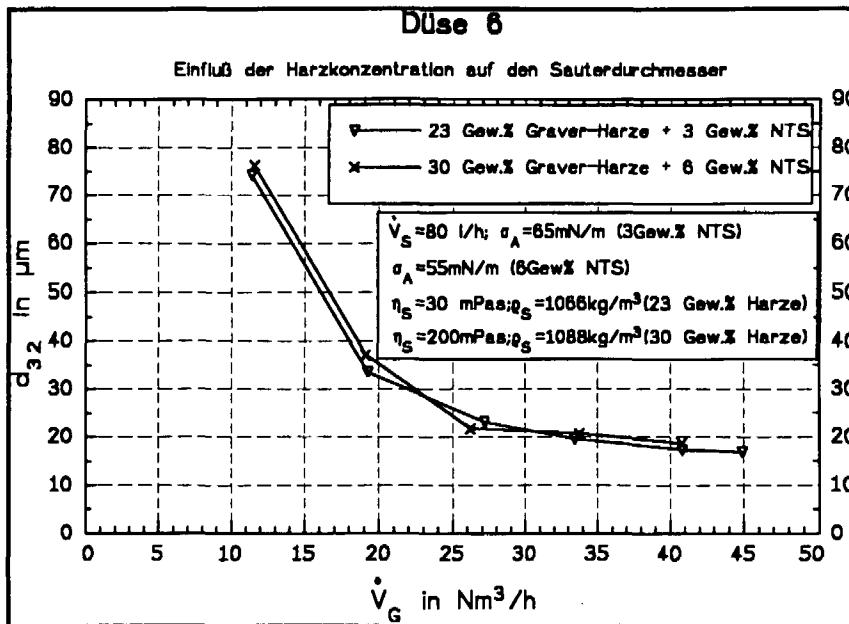


Abb. 6.21 Düse 6: Einfluß des Feststoffgehalts auf die Zerstäubung wässriger Pulverharzsuspensionen (Graver-Harze)

6.3.4 Einfluß der Vorbehandlungsmethode

Die rheologischen Untersuchungen in Kap. 3.2.1.3 haben gezeigt, daß durch eine thermische Vorbehandlung der Harze auf eine Additivzugabe zur Herstellung fließfähiger Suspensionen verzichtet werden kann. Durch eine vorgeschaltete Harztrocknung ist sogar eine erhebliche Steigerung der Harzkonzentration unter Beibehaltung günstiger Fließeigenschaften möglich.

Die Auswirkungen einer thermischen Vorbehandlung auf den Zerstäubungsprozeß werden in den Abb. 6.22 - 6.25 dargestellt. Im Extremfall konnte eine Suspension, die eine Harzkonzentration (Graver-Harze) von 36 Gew.% und eine Suspensionsviskosität von $\eta_S = 200 \text{ mPa s}$ hatte, zerstäubt werden. Gegenüber den Zerstäubungsversuchen mit einer Suspensionsvorbehandlung durch NTS-Zugabe bedeutet dies eine Steigerung der maximal möglichen Pulverharzmenge, pro kg Suspension, um immerhin 20%. Versuche bei dieser sehr hohen Konzentration waren allerdings nur mit Düse 6 problemlos durchführbar. Bei den anderen Düsenmodellen traten, nach mehr oder weniger langen Versuchszeiten, Blockierungen auf. Dies ist auch der Grund dafür, daß in den Abb. 6.22-6.24 die Ergebnisse einer Suspensionszerstäubung mit einer Harzkonzentration von nur 33 Gew.% ($\eta_S = 100 \text{ mPa s}$) dargestellt werden. Vergleichend gegenübergestellt sind die Tropfengrößenverteilungen, die sich beim Zerstäuben von Pulverharz-Suspensionen mit einer NTS-Beimengung ergeben. Zur Verdeutlichung inwieweit sich die

Tropfengrößenverteilung (TGV) an das Korngrößenspektrum der Pulverharze nähert, ist auch die Korngrößenverteilung (KGV) der Harze mit in die Diagramme aufgenommen worden. Die Tropfengrößenverteilungen wurden bei einem konstanten Suspensionsmassenstrom von $\dot{m}_s = 87 \text{ kg/h}$ und den höchst möglichen Zerstäubergasdrücken ermittelt.

Die Tropfengrößenverteilungen der extern mischenden Düsen 2 und 3 zeigen im Bereich oberhalb $150 \mu\text{m}$ einen nahezu identischen Verlauf. Im darunter liegenden Tropfengrößenbereich werden bei der Suspension, deren Harze vorher getrocknet wurden, merklich kleinere Tropfen gebildet. Dieses Ergebnis ist auf den ersten Blick sehr überraschend, besitzt doch diese Suspension einen erheblich höheren Harzanteil. Eine wahrscheinliche Erklärung hierfür ist, daß trotz der Zudosierung von NTS weiterhin noch kleinere Harzagglomerate existieren, die auch durch die Zerstäubung nicht vollständig aufgetrennt werden und so zur Bildung größerer Tropfen beitragen. Wie schon in Kap. 7.2.1 erläutert wurde, führt das Auftreten von Harzflocken zu einer Erhöhung der Suspensionsviskosität durch Einlagerungen des Trägermediums Wasser innerhalb der Harzflocken.

Im Gegensatz zu den extern mischenden scheint sich bei den intern mischenden Düsen die Art der Vorbehandlung nicht auf die Zerstäubungsergebnisse auszuwirken. Aus den Abb. 6.24 und 6.25 ist zu entnehmen, daß die ermittelten Tropfengrößenverläufe beim Zerstäuben der unterschiedlich vorbehandelten Suspensionen nahezu identisch sind. Die Ursache hierfür ist wiederum im hohen Durchmischungsgrad der intern mischenden Düsen zu sehen. Das sich innerhalb der Düsen bildende homogene Suspensions- / Gasgemisch wird infolge der hohen Geschwindigkeit in so starke Turbulenz versetzt, daß es zu einem Auftrennen der Harzagglomerate kommt. Die Folge hieraus ist eine sehr feine Zerstäubung, bei der die Tropfengrößenverteilung der Korngrößenverteilung der Pulverharze sehr nahe kommt. Aus den Abb. 6.22-6.25 ist klar zu ersehen, daß diese Annäherung bei den Düsen mit innerer Mischung erheblich weiter vorangeschritten ist als bei den Düsen mit äußerer Mischung. Gut zu erkennen ist auch die schon in Kap. 6.3.2 angesprochene unerwünschte Tropfenverarmung bei der Zerstäubung mit Düse 5 im Bereich zwischen $10 \mu\text{m}$ und $20 \mu\text{m}$ (s. Abb. 6.24).

Bei den Zerstäubungsergebnissen der Düse 6 ist nochmals hervorzuheben, daß die Suspension mit thermisch vorbehandelten Harzen nicht nur einen höheren Feststoffgehalt sondern auch eine erheblich höhere Suspensionsviskosität aufweist als die mit NTS vorbehandelte Suspension. Um so bemerkenswerter ist es, daß die beim Zerstäuben produzierten Tropfengrößen beider Suspensionen nahezu identisch sind.

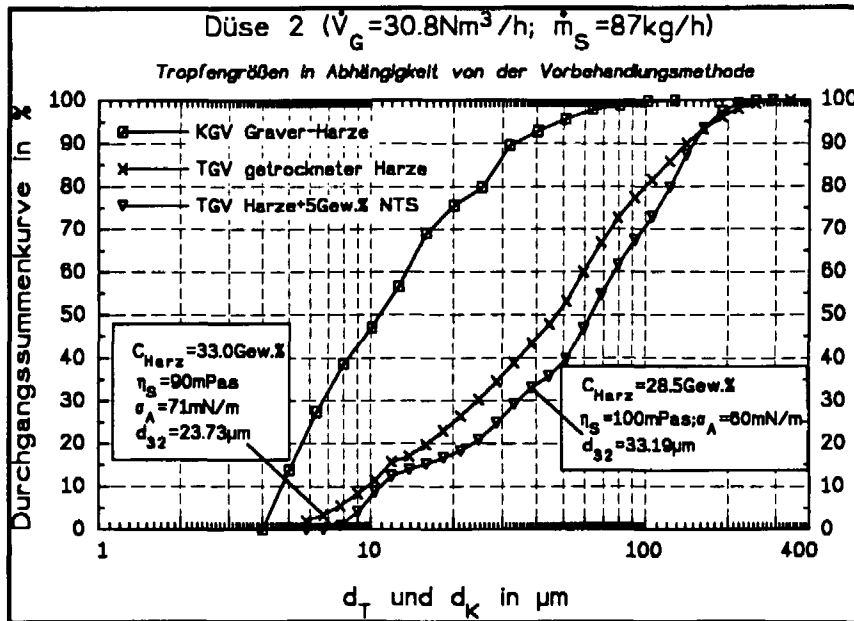


Abb. 6.22 Düse 2: Tropfengrößenvergleich bei unterschiedlicher Vorbehandlung der Pulverharze (Graver-Harze)

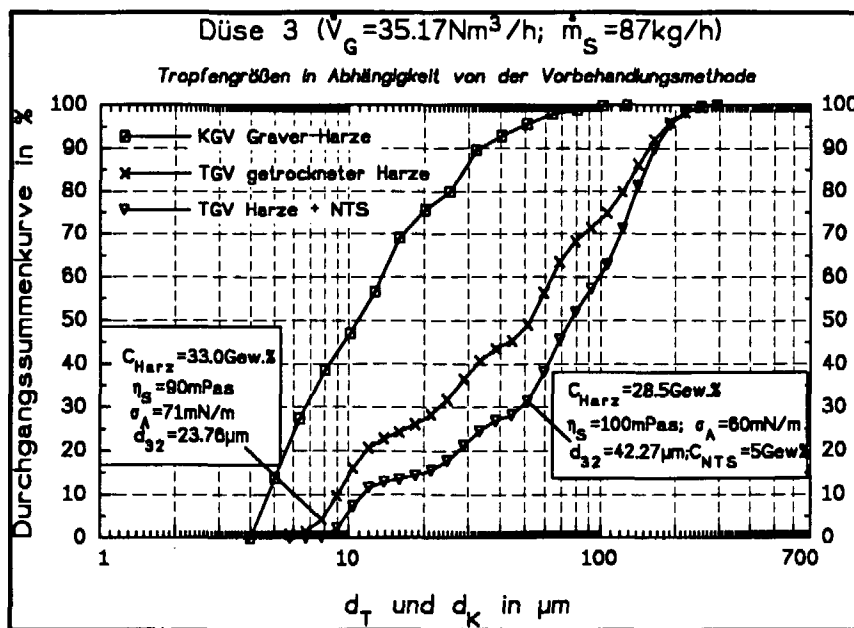


Abb. 6.23 Düse 3: Tropfengrößenvergleich bei unterschiedlicher Vorbehandlung der Pulverharze (Graver-Harze)

Durch die Art der Ergebnisdarstellung kann nur ein bestimmter Betriebszustand berücksichtigt werden. Dieser ist so gewählt worden, daß er mit einem konstanten Suspensionsdurchsatz von $\dot{m}_S = 86 \text{ kg/h}$ und Zerstäubergasdrücken von ungefähr $\Delta p = 5 \text{ bar}$ in einem verbrennungstechnisch günstigen Bereich liegt. Zahlreiche weitere Versuche, in denen die Betriebsparameter Suspensionsdurchsatz und Gasdurchsatz variiert wur-

den, belegen, daß die mit den intern mischenden Düsen 5 und 6 erzeugten Tropfengrößen, selbst bei großen Verhältnissen $\dot{m}_S / \dot{m}_G$ (>100), von der Art der Suspensionsvorbehandlung unabhängig sind.

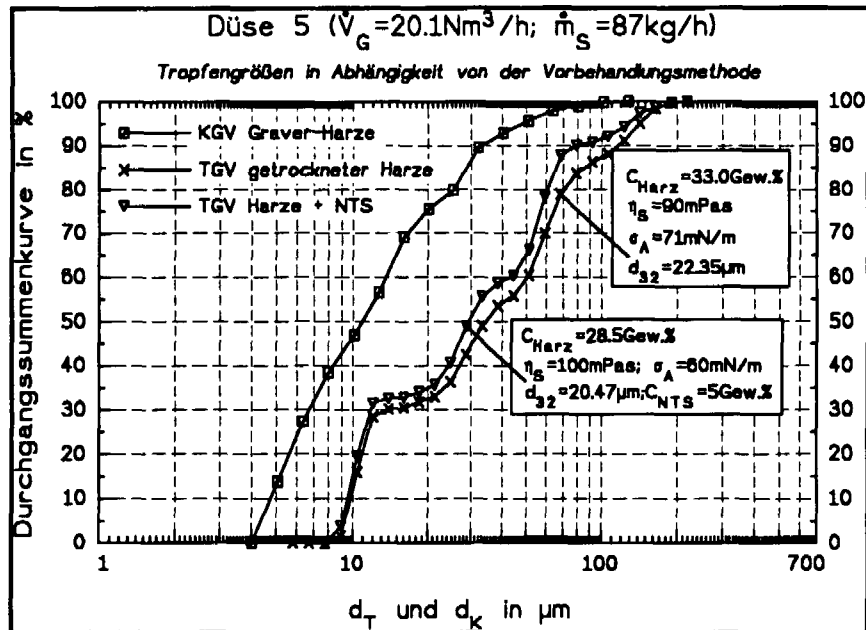


Abb. 6.24 Düse 5: Tropfengrößenvergleich bei unterschiedlicher Vorbehandlung der Pulverharze (Graver-Harze)

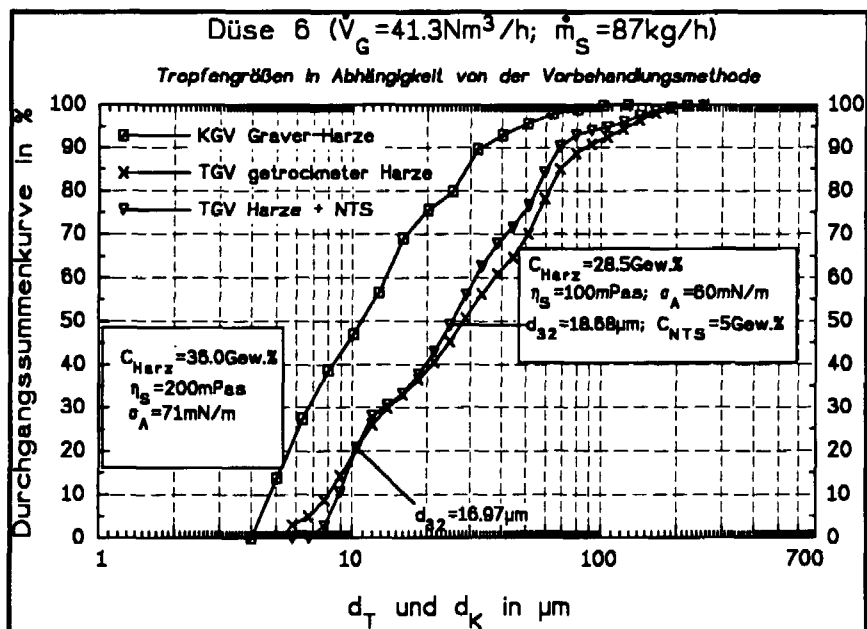


Abb. 6.25 Düse 6: Tropfengrößenvergleich bei unterschiedlicher Vorbehandlung der Pulverharze (Graver-Harze)

Die Ergebnisse in Kap. 6.3.2 haben gezeigt, daß mit den größeren Bayer-Harzen, aufgrund eines höheren Quellwasseranteils, keine so hohen Feststoffkonzentrationen zu erzielen sind, wie mit Graver-Harzen. In einer Versuchsreihe mit thermisch vorbehandelten Bayer-Harzen konnten bis zu einer maximalen Harzkonzentration von ca. 29 Gew.% ($\eta_s = 170 \text{ mPa s}$) mit allen Düsen noch Zerstäubungsversuche durchgeführt werden. Mit Düse 6 war es noch gerade möglich eine Suspension mit einem Pulverharzanteil von 30 Gew.% zu zerstäuben. Da die in diesen Versuchen erzielten Tropfengrößenverteilungen mit den Ergebnissen der Zerstäubungsversuche mit Graver-Harzsuspensionen übereinstimmen, wird auf eine grafische Darstellung der ermittelten Tropfengrößen verzichtet. Die in Kap. 6.3.2 gemachte Feststellung, daß die Wahl der Pulverharzsorte sowohl bei den intern als auch bei den extern mischenden Düsen keinen Einfluß auf die Tropfengrößenverteilung hat, konnte in dieser Versuchsreihe zusätzlich bestätigt werden.

6.4 Zerstäubung wässriger Polyacrylnitrilfaser / Pulverharzsuspensionen

In der Kondensatreinigungsanlage deutscher Siedewasserreaktoren wird auf die Pulverharz-Anschwemmfilterschicht ein inertes faseriges Filterhilfsmittel aus Polyacrylnitril als zusätzliche Deckschicht aufgebracht. Das von der Firma Bayer unter dem Handelsnamen Lewasorb AF 2 KR vertriebene Produkt verstärkt die mechanische Filtrationswirkung und verlängert die Standzeit der Pulverharzanschwemmung.

6.4.1 Suspensionszusammensetzung und Einfluß der PAN-Fasern auf die Zerstäubung

Der Mischungsanteil der PAN-Fasern ist von Kernkraftwerk zu Kernkraftwerk verschieden. Die Firma Bayer empfiehlt für die Deckschichtbildung eine Fasermenge von 200 g/m^2 /42/. Bei einer vorgeschriebenen Mindestbelegung der Filterkerzen von $800\text{--}1000 \text{ g/m}^2$ /43/ entspricht dies einem Faser / Pulverharzverhältnis von 1:4 bis 1:5. Für die Versuche wurde das im KKK übliche Verhältnis von 1:5 gewählt. Das Mischungsverhältnis Kationenaustauscher- / Anionenaustauscherharz beträgt, wie in den vorher geschilderten Versuchen, 3:1.

Der Wert für die spezifische Dichte der Polyacrylnitril-Faser (PAN-Faser) liegt mit 1160 kg/m^3 genau zwischen den Dichtewerten des Kationenaustauscher- (1280 kg/m^3) /44/ und des Anionenaustauscherharzes (1090 kg/m^3) /45/. Das Schüttgewicht der Fasern ist dabei mit 230 kg/m^3 weniger als halb so groß wie das der reinen Pulverharzmischung. Die Fasern haben einen Durchmesser zwischen $10 \mu\text{m}$ und $60 \mu\text{m}$ und sind bis zu 1 Millimeter lang. (s. Bild 4)

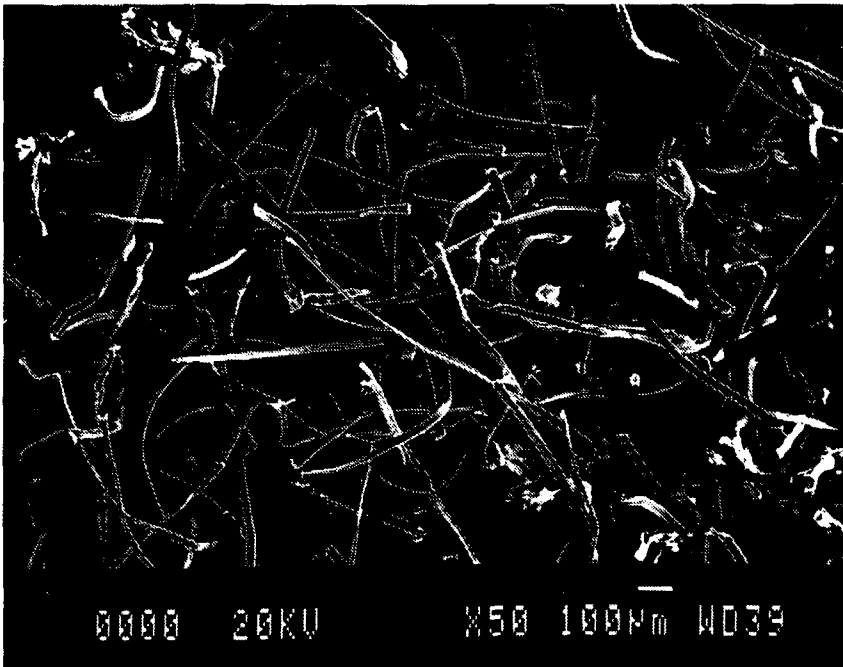


Bild 4 REM-Aufnahme von PAN-Fasern

6.4.2 Notwendige Vorbehandlungsmaßnahmen sowie Festlegung eines geeigneten Düsentyps

In wässriger Lösung verhaken sich PAN-Fasern untereinander und führen zur Bildung kleinerer Klümpchen. Die Klümpchenbildung ist umso intensiver, je geringer der Wasseranteil in der Suspension ist. Eine störungsfreie Zerstäubung der Suspension erscheint zuerst einmal fraglich, weil die gebildeten Agglomerate außerordentlich stabil sind. Weder ein intensives Durchrühren der Suspension, noch eine Vorbehandlung mit einem Dispergator, führten zu einer sichtbaren Verringerung der Klümpchenbildung. Naßmahlversuche mit einer Planetenmühle zeigten zwar erfolgversprechende Ansätze, wurden aber nicht weiter verfolgt, weil ihre Durchführung extrem umständlich und zeitraubend ist. Als geeignetste Vorbehandlungsmethode erwies sich die Vorzerstäubung höher verdünnter Suspensionen ($C_{H_2O} < 15 \text{ Gew.}\%$) mit der Überschall-Pneumatikzerstäuberdüse (Düse 6). Durch das radial zur Strömungsrichtung der Suspension einströmende Zerstäubergas bildet sich ein Gas-Suspensionsgemisch aus, das innerhalb der Düse stark beschleunigt wird. Die Faseragglomerate werden dabei so weit aufgetrennt, daß sie störungsfrei den Düsenaustritt passieren können.

Die größte Verstopfungsgefahr beim Versprühen faserhaltiger Pulverharzsuspensionen besteht während des Anfahrvorgangs. Zu Beginn scheiterten alle Versuche daran, daß die Zuführleitung ($d_i = 10 \text{ mm}$) auf einem Streckenabschnitt zwei bis drei Meter hinter der Förderpumpe verstopfte. Der Grund hierfür war, daß die Suspension beim Erreichen des Verstopfungspunkts keine ausreichende Fließfähigkeit mehr hatte. Während des Anfahrvorgangs wurde der Suspension soviel Wasser durch die noch trockene Rohrleitungswand entzogen, daß eine Förderung bis zur Düse nicht mehr möglich war. Das Verstopfungsproblem konnte dadurch gelöst werden, daß zu Beginn eines Sprühversuchs mit Wasser gespült wurde und dann über einen Drei-Wegehahn von der Wasserförderung auf die Suspensionsförderung umgestellt wurde.

Grundsätzlich hat sich gezeigt, daß nur die Überschall-Pneumatikzerstäuberdüse in der Lage ist Suspensionen mit PAN-Faseranteilen zu zerstäuben. Bei allen anderen Düsen konnte selbst bei Feststoffgehalten unterhalb 10 Gew.% kein regulärer Sprühversuch durchgeführt werden. Da es immer wieder in der Zuführleitung zur Düse zu Verstopfungen kam, wurde die Rohrleitung mit einem Innendurchmesser $d_i = 8 \text{ mm}$ auf $d_i = 10 \text{ mm}$ erweitert. Da der engste Querschnitt, bei dem keine Verstopfung auftritt, größer als 6 mm sein muß und Zerstäubungsversuche mit derartig großen Düsen die Bildung erheblich größerer Tropfen zur Folge hat wurden Versuche mit diesen Düsentypen nicht durchgeführt. Daß mit der Düse 6, trotz eines engsten Querschnitts von nur 4.2 Millimeter, problemlos Zerstäubungsversuche durchgeführt werden konnten liegt an ihrer besonderen Verfahrensweise. Ohne die intensive Durchmischung von Gasstrom und Suspension sowie der hierdurch bedingten Klümpchenauflösung innerhalb der Düse wäre eine Zerstäubung bei einem Innendurchmesser von 4.2 Millimeter nicht vorstellbar. Um festzustellen, welchen Einfluß eine größere Düsenabmessung auf die Tropfengrößenverteilung hat, wurden zusätzlich Sprühversuche mit einer weiteren Überschall-Pneumatikzerstäuberdüse (Düse 7) durchgeführt (s.Abb. 5.9).

6.4.3 Vergleichende Zerstäubungsversuche zur Beurteilung der Überschall-Pneumatikdüsen

6.4.3.1 Einfluß der Pulverharzsorte, der Feststoffkonzentration sowie der Düsenabmessungen auf die Zerstäubung

Sobald in einer wässrigen Suspension PAN-Fasern vorhanden sind, wird der maximal mögliche Feststoffgehalt, bei dem eine Zerstäubung noch störungsfrei durchführbar ist, deutlich reduziert. War es in der Versuchsreihe mit thermisch vorbehandelten Bayer-Harzen noch möglich eine Suspension mit 30 Gew.% Harzen zu zerstäuben, so reduzierte sich der Feststoffanteil bei der Zerstäubung einer wässrigen Suspension, beste-

hend aus thermisch vorbehandelten Pulverharzen und PAN-Fasern, auf 21 Gew.% (s. Abb. 6.26). In Versuchen mit Graver-Harzen mußte der Feststoffgehalt von 36 Gew.% auf 23 Gew.% zurückgenommen werden (s. Abb. 6.27). Die signifikante Verschlechterung der Fließeigenschaften ist im wesentlichen auf die schon beschriebene Agglomeratbildung und die damit verbundenen stärkeren Teilchen-Teilchen Wechselwirkungen innerhalb der Suspension zurückzuführen. Aufgrund ihrer Größe stellen die Agglomerate ein Hindernis für die sich schneller bewegenden kleineren Partikeln dar, wodurch es zu häufigeren Zusammenstößen kommt, die sich schließlich im Freisetzen von Reibungsenergien und damit verbundenen schlechteren Fließeigenschaften äußern.

Die in den Abb. 6.26 - 6.27 dargestellten Ergebnisse wurden alle bei einem Zerstäubergasdurchsatz von $\dot{V}_G = 41 \text{ Nm}^3/\text{h}$ ermittelt. Man erkennt deutlich, daß die größere Düse 7 erwartungsgemäß auch größere Tropfen erzeugt. Etwas überraschend ist jedoch, daß sich diese Tendenz im untersuchten Suspensionsmassenstrombereich ($30 \text{ kg/h} \leq \dot{m}_S \leq 120 \text{ kg/h}$) mit zunehmenden Suspensionsdurchsätzen, also mit fallenden $\dot{m}_G / \dot{m}_S$ Verhältnissen, verstärkt. Vergleicht man z.B. in Abb. 6.26 die bei einem Suspensionsdurchsatz von $\dot{m}_S = 30 \text{ kg/h}$ erzeugten Sauterdurchmesser, so zeigt sich, daß die beiden Werte mit $11 \mu\text{m}$ und $14 \mu\text{m}$ noch sehr nahe beieinander liegen. Eine Steigerung des Suspensionsdurchsatzes auf 110 kg/h bewirkt bei Düse 6 eine Zunahme des Sauterdurchmessers auf $13 \mu\text{m}$ und bei Düse 7 auf $21 \mu\text{m}$, d. h. eine Durchmesserzunahme um über 50 %.

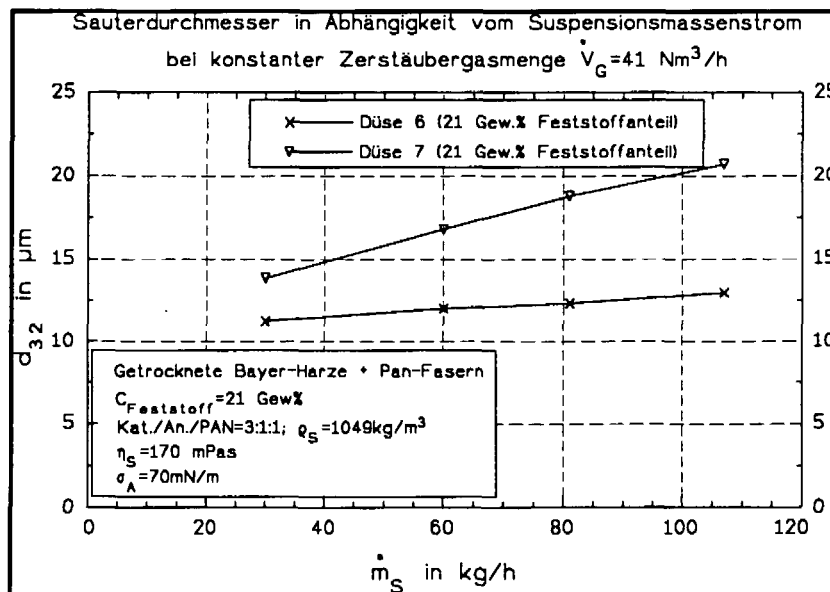


Abb. 6.26 Vergleich der von Düse 6 und 7 produzierten Sauterdurchmesser beim Zerstäuben einer wässrigen Pulverharz (Bayer)-PAN-Fasersuspension

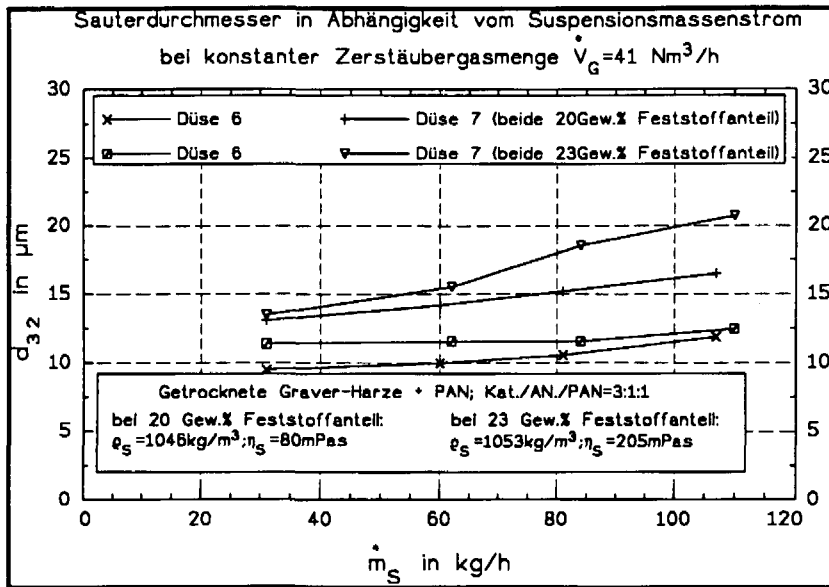


Abb. 6.27 Vergleich der von Düse 6 und 7 produzierten Sauterdurchmesser beim Zerstäuben einer wässrigen Pulverharz (Graver)-PAN-Fasersuspension

Zur Suspensionsherstellung für die in Abb. 6.27 dargestellten Versuche wurden anstelle von Bayer-Harzen die kleineren Graver-Harze verwendet. Vergleicht man die Sauterdurchmesser, die beim Zerstäuben einer PAN-Faser/Bayer-Harzsuspension mit 20 Gew.% Feststoffanteil ($\eta_s = 170 \text{ mPas}$) und einer PAN-Faser/Graver-Harzsuspension mit 23 Gew.% Feststoffanteil ($\eta_s = 205 \text{ mPas}$) ermittelt worden sind, so zeigt sich, daß sowohl für Düse 6 als auch für Düse 7 kein Einfluß der Pulverharzsorte auf den Sauterdurchmesser festzustellen ist. Dieses Ergebnis überrascht nicht, da schon die Versuche mit Pulverharzsuspensionen ohne PAN-Faseranteile deutlich gezeigt haben, daß die Wahl der Pulverharzsorte keinen Einfluß auf die Tropfengrößenverteilung hat.

In Abb. 6.27 ist noch zusätzlich aufgetragen, welchen Einfluß eine Konzentrationsänderung auf den Sauterdurchmesser hat. Es ist wiederum gut zu erkennen, daß mit Düse 6 nur unwesentlich größere Sauterdurchmesserwerte erzeugt werden, wenn der Feststoffgehalt der Suspension von 20 Gew.% auf 23 Gew.% gesteigert wird. Anders sieht dies bei Düse 7 aus, wo sehr wohl ein Einfluß der Feststoffkonzentration und somit der Suspensionsviskosität auf den Sauterdurchmesser erkennbar ist. Dieser Einfluß ist zwar bei kleineren Suspensionsdurchsätzen (bis etwa 60 kg/h) noch sehr gering, wird aber mit zunehmenden Suspensionsdurchsätzen deutlich größer.

6.4.3.2 Tropfengrößverteilung in Abhängigkeit vom Zerstäubergasstrom und Suspensionsdurchsatz

Der Einfluß von PAN-Fasern auf die Tropfengrößenverteilung wird am besten verdeutlicht, wenn man die erzielten Ergebnisse mit denen, die man beim Zerstäuben einer Pulverharzsuspension ohne PAN-Faseranteile erhält, vergleicht. Voraussetzung für einen Vergleichbarkeit sind die Einhaltung ähnlicher Suspensions- und Zerstäubergasdurchsätze.

Da auch durch Vorbehandlungsmaßnahmen keine vollständige Auftrennung der Faseragglomerate möglich war, ist eine unterschiedliche Tropfengrößenverteilung zu erwarten. Vergleicht man nun die mit Düse 6 erzielten Zerstäubungsergebnisse aus Abb. 6.28 mit denen, die in Abb. 6.13 dargestellt sind, so kann man eine auffallende Übereinstimmung feststellen. Da die Tropfengrößenverläufe, bei einem vergleichbaren Suspensionsdurchsatz, über dem betrachteten Zerstäubergasbereich nahezu deckungsgleich sind, wirkt sich offensichtlich die Anwesenheit der PAN-Fasern nicht negativ auf die Tropfengrößenverteilung aus. Dies ist ein Hinweis darauf, daß sich die Faseragglomerate weitgehend aufgelöst haben. Düse 6 zeichnet sich also auch beim Versprühen, der als besonders problematisch einzuordnenden faserhaltigen Pulverharzsuspension, durch ausgezeichnete Zerstäubungseigenschaften aus.

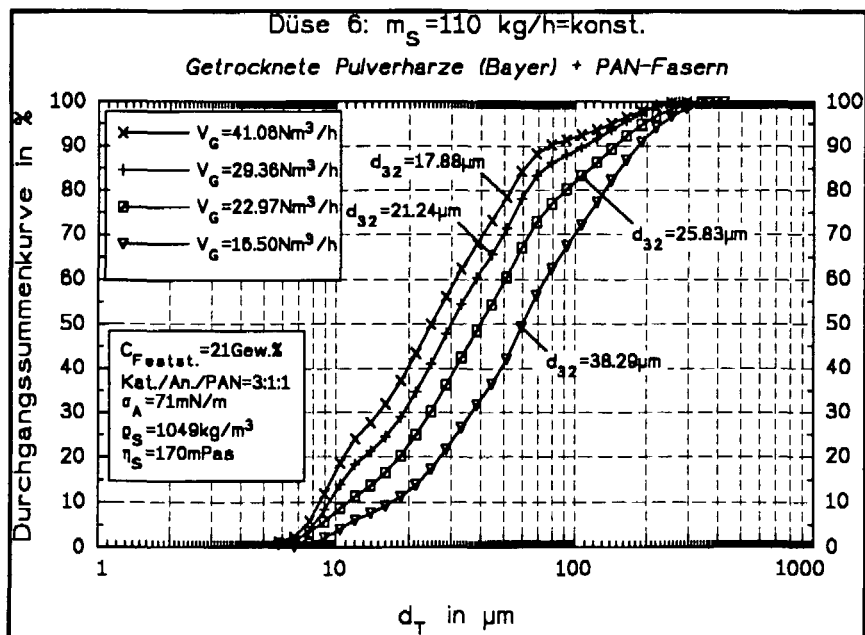


Abb. 6.28 Düse 6: Tropfengrößenverteilung in Abhängigkeit vom Zerstäubergasstrom $\dot{V}_G$ bei konstantem Suspensionsmassenstrom $\dot{m}_s$

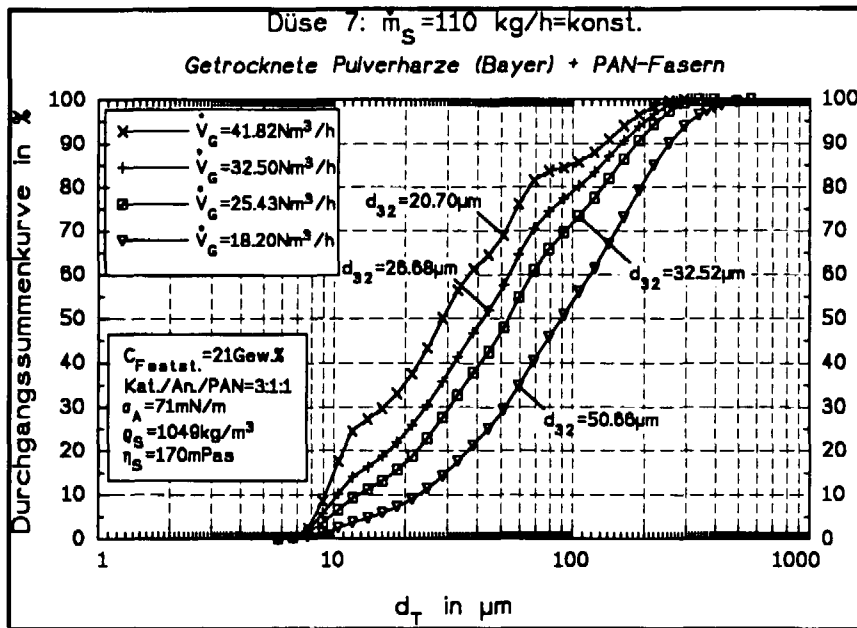


Abb. 6.29 Düse 7: Tropfengrößenverteilung in Abhängigkeit vom Zerstäubergasstrom $\dot{V}_G$ bei konstantem Suspensionsmassenstrom $\dot{m}_S$

Die geringfügig größere und somit gegen Verstopfungen noch weniger anfällige Düse 7 erzeugt ein Tropfenspektrum, das dem der Düse 6 ähnlich ist (s. Abb. 6.29). Die größten Tropfen liegen je nach Zerstäubergasmenge in einem Bereich zwischen $400 \mu\text{m}$ und $600 \mu\text{m}$; z.Vgl. produziert Düse 6 bei entsprechenden Zerstäubergasdurchsätzen Tropfen zwischen $300 \mu\text{m}$ und $450 \mu\text{m}$. Vergleicht man die Kurvenverläufe beider Düsen bei Zerstäubergasströmen, die im Bereich von $41 \text{ Nm}^3/\text{h}$ liegen, so befinden sich 90 % der von Düse 6 produzierten Tropfen in einem Bereich zwischen $7 \mu\text{m}$ und $80 \mu\text{m}$, während der gleiche Anteil bei Düse 7 in einem Bereich zwischen $8 \mu\text{m}$ und $140 \mu\text{m}$ liegt.

In den Abb. 6.30 und 6.31 wird der Einfluß des Suspensionsdurchsatzes auf die Tropfengrößenverteilungen der Düsen 6 und 7 dargestellt. Der Feststoffgehalt der untersuchten Graver-Harz / PAN-Fasersuspension liegt mit $c_{\text{Festst.}} = 23 \text{ Gew.}\%$ im Bereich der höchst möglichen Konzentration. Alle Versuche wurden bei einem konstant hohen Zerstäubergasdurchsatz von $41 \text{ Nm}^3/\text{h}$ durchgeführt.

Abb. 6.30 verdeutlicht, daß beim Zerstäuben mit Düse 6 über dem Suspensionsmassenstrombereich $82 \text{ kg/h} \leq \dot{m}_S \leq 110 \text{ kg/h}$ fast identische Tropfengrößenverteilungen auftraten. Erst mit noch geringeren Durchsätzen ist eine Entwicklung zur Bildung kleinerer Tropfen, in einem Tropfengrößenspektrum $10 \mu\text{m} \leq d_T \leq 40 \mu\text{m}$, erkennbar. Insgesamt ist jedoch für den untersuchten Bereich festzustellen, daß die Abhängigkeit der Tropfengrößenverteilung vom Suspensionsdurchsatz eher als gering einzuordnen ist.

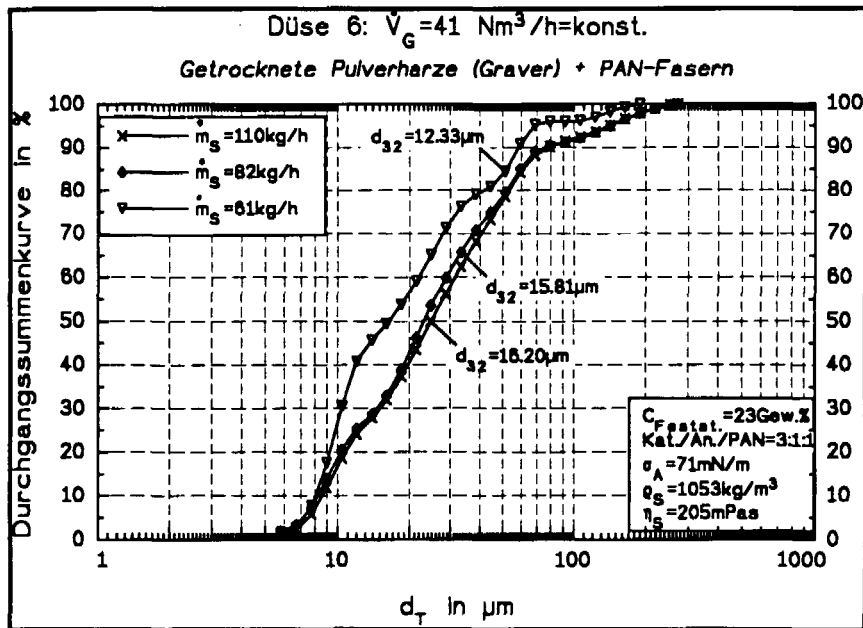


Abb. 6.30 Düse 6: Tropfengrößenverteilung in Abhängigkeit vom Suspensionsmassenstrom $\dot{m}_S$ bei konstantem Zerstäubergasstrom $\dot{V}_G$

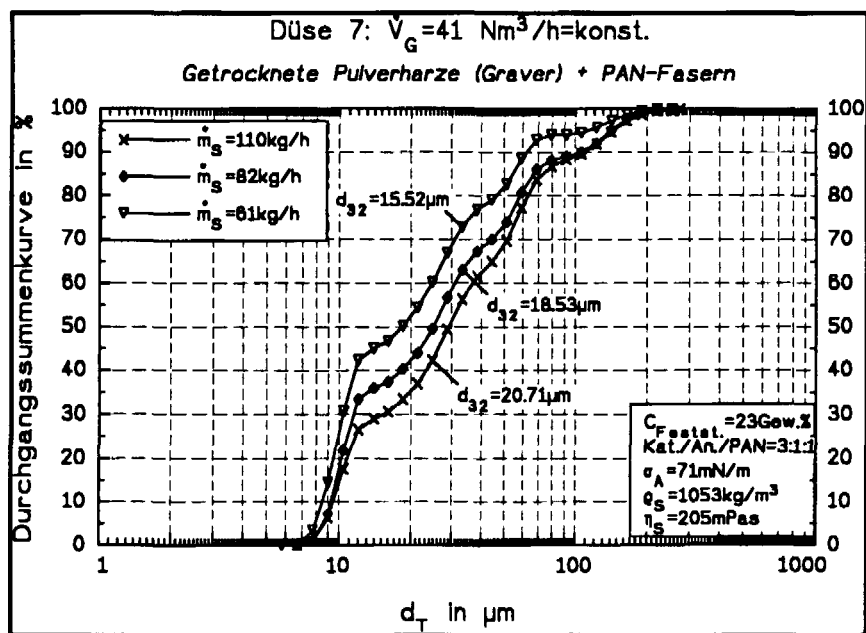


Abb. 6.31 Düse 7: Tropfengrößenverteilung in Abhängigkeit vom Suspensionsmassenstrom $\dot{m}_S$ bei konstantem Zerstäubergasstrom $\dot{V}_G$

Aus Abb. 6.31 geht hervor, daß steigende Suspensionsdurchsätze beim Zerstäuben mit Düse 7 nur einen geringen Einfluß auf die Größe der erzeugten Tropfen haben. Im Gegensatz zu Düse 6 zeichnet sich aber bereits bei einer Verringerung des Suspensionsdurchsatzes von 110 kg/h auf 82 kg/h eine zunehmende Tendenz zur Bildung kleinerer

Tropfen ab, die sich weitgehend im Tropfengrößenspektrum $12\ \mu\text{m} \leq d_T \leq 50\ \mu\text{m}$ vollzieht.

Zusammenfassend ist zu sagen, daß bei einem Zerstäubergasdurchsatz von $\dot{V}_G = 41\ \text{Nm}^3/\text{h}$ die Reduzierung des Suspensionsdurchsatzes sowohl für Düse 6 als auch für Düse 7 keine für die Verbrennung wesentlich günstigere Tropfengrößenverteilung liefert.

6.4.4 Einfluß der Additivzugabe (NTS) auf den maximalen Feststoffgehalt

In den rheologischen Untersuchungen an Pulverharzsuspensionen ohne PAN-Faserteile hat sich herausgestellt, daß durch eine thermische Vorbehandlung der Pulverharze eine erheblich höhere Feststoffbeladung der Suspension erreichbar ist als durch Zugabe von (NTS). In Zerstäubungsversuchen mit Pulverharz / PAN-Fasersuspensionen, denen zur Verbesserung der Fließeigenschaften NTS zugegeben wurde, hat sich der entgegengesetzte Effekt eingestellt. Durch Zugabe von NTS war es möglich, den unter Beibehaltung günstiger Fließeigenschaften maximal möglichen Feststoffgehalt einer Graver-Harz / PAN-Fasersuspension von 23 Gew.% auf 27 Gew.% und den einer Bayer-Harz / PAN-Fasersuspension von 21 Gew.% auf 26 Gew.% zu steigern.

Der Grund hierfür ist in der besonderen Wirkungsweise des anionischen Tensids NTS zu suchen. Ähnlich den Adsorptionsvorgängen anionischer Tenside auf der Oberfläche geladener Ionenaustauscherharzpartikeln verläuft die Adsorption von NTS auf der Oberfläche ungeladener PAN-Fasern. Wiederum befindet sich der hydrophobe Teil des NTS-Moleküls auf der Feststoffoberfläche, während sich der negativ geladene hydrophile Teil in Richtung Wasserphase orientiert. Damit bildet sich in einer Entfernung, die der Länge eines ausgerichteten Tensidmoleküls entspricht, eine negative Ladungshülle. Bedingt durch die einheitliche negative Oberflächenladung aller im System befindlichen Feststoffpartikeln entstehen elektrostatische Abstoßungskräfte, die neben der Auflösung von Ionenaustauscherharzflocken auch für die verminderte Bildung von Faseragglomeraten verantwortlich sind. Durch die Reduzierung der Suspensionsviskosität ist eine Steigerung der Feststoffbeladung möglich.

Die Tropfengrößenverläufe bei der Zerstäubung von Suspensionen, die mit NTS vorbehandelt wurden, unterscheiden sich trotz der höheren Feststoffbeladung kaum von denen, die mit thermisch vorbehandelten Pulverharzen ermittelt wurden (s. Abb. 6.32 und 6.33). Dieses Ergebnis konnte erwartet werden, weil sich in allen vorhergehenden Versuchen gezeigt hat, daß Düse 6 bei gleichen Suspensionsdurchsätzen und Zerstäu-

bergasdrücken von Parametern wie der Feststoffbeladung, Teilchengröße, Teilchenform und Suspensionsviskosität nicht beeinflusst wird.

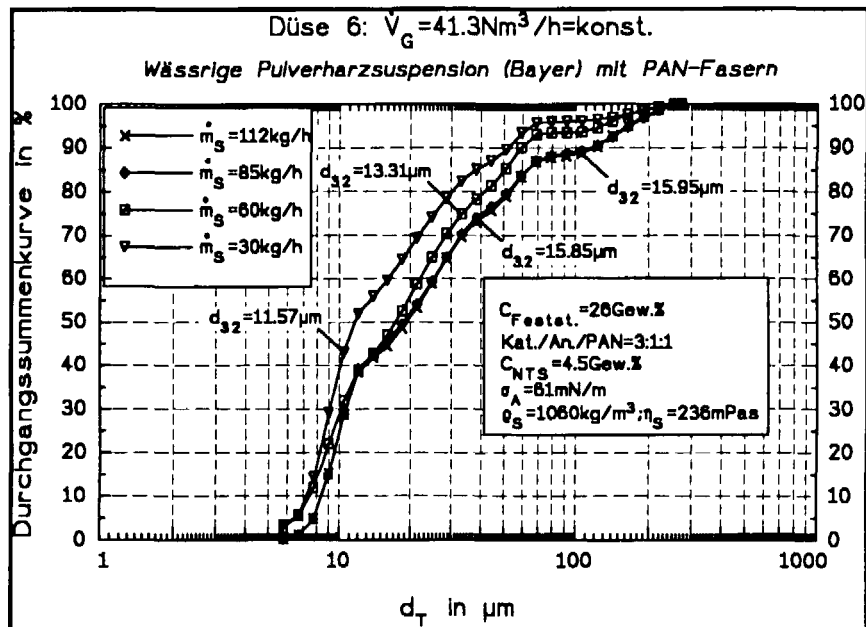


Abb. 6.32 Düse 6: Tropfengrößenverteilung beim Zerstäuben einer wässrigen Bayerharz-PAN-Fasersuspension unter Zugabe von 4.5 Gew.% NTS

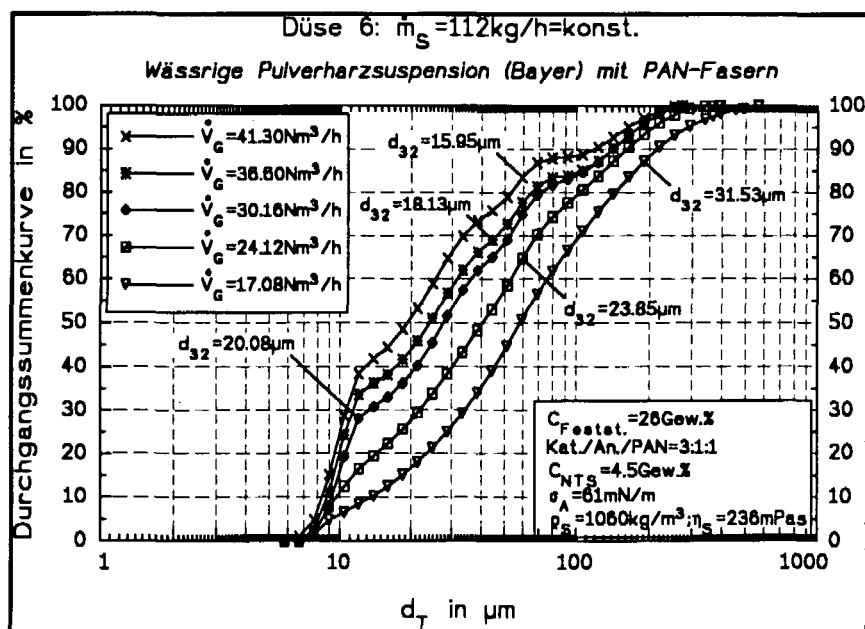


Abb. 6.33 Düse 6: Tropfengrößenverteilung beim Zerstäuben einer wässrigen Bayerharz-PAN-Fasersuspension unter Zugabe von 4.5 Gew.% NTS

6.5 Zerstäubung von Suspensionen mit Rückstandsöl als Trägerflüssigkeit

6.5.1 Versuche zur Festlegung einer zweckmäßigen Zerstäubergas- und Öltemperatur

In den Zerstäubungsversuchen mit Wasser als Trägerflüssigkeit hat sich herausgestellt, daß mit den Überschall-Pneumatikzerstäuberdüsen der Firma Lechler (Düse 6 und 7) die besten Resultate erzielt werden. Da es nur mit ihnen möglich war, auch Suspensionen mit PAN-Faseranteilen zu zerstäuben, wurde in den nachfolgend beschriebenen Versuchen dieser Düsentyp eingesetzt.

Viskosität als auch Oberflächenspannung von Wasser sind nur schwach temperaturabhängig, so daß sich beim Zerstäuben wässriger Suspensionen eine Änderung der Suspensionstemperatur nur unwesentlich auf die Größe der Tropfen auswirkt. Im Gegensatz hierzu sind diese Stoffgrößen beim Rückstandsöl aus einem Gasöl-Hydrocracker stark temperaturabhängig. Ein Erwärmen der Öl / Pulverharzsuspension ist schon alleine deshalb notwendig, weil eine Förderung erst oberhalb des Stockpunktes von $T_P = 36^\circ\text{C}$ möglich ist.

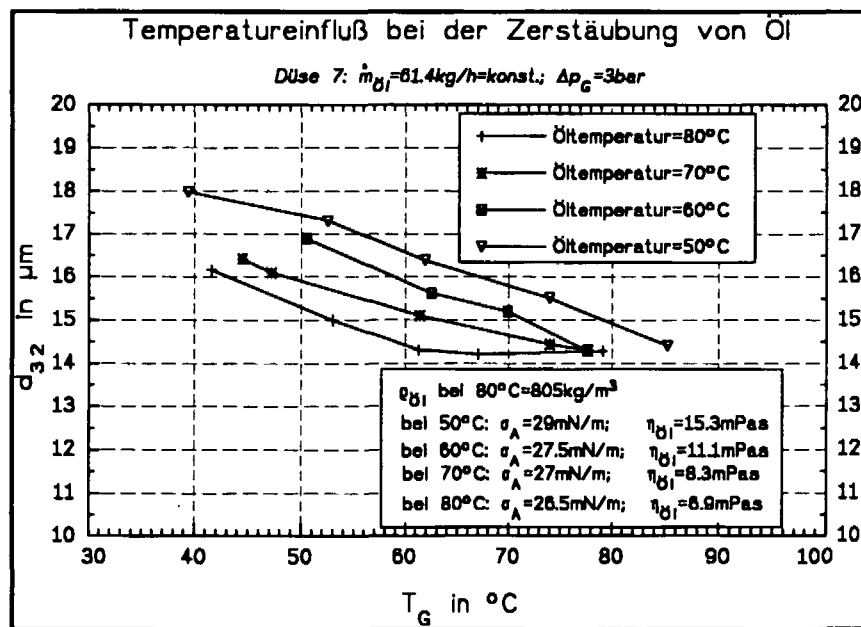


Abb. 6.34 Zerstäubung des Mineralöls bei unterschiedlichen Zerstäubergas- und Öltemperaturen

Hinsichtlich der Zerstäubung wurde im weiteren der Einfluß der Gastemperatur auf die Tropfenbildung untersucht. Dazu wurden bei konstantem Flüssigkeitsdurchsatz und Zerstäubergasdruck Sprühversuche mit der reinen Trägerflüssigkeit durchgeführt, wobei die Zerstäubergastemperaturen und die Öltemperaturen zwischen 50°C und 80°C

variiert wurden (s. Abb. 6.34). Die ermittelten Sauterdurchmesser lassen erkennen, daß sowohl steigende Öltemperaturen als auch steigende Gastemperaturen die Bildung kleinerer Tropfen begünstigen. Wie man aus Abb. 6.34 ersehen kann, verringert sich der Sauterdurchmesser bei einem Anstieg der Öl- und Gastemperatur von 50°C auf 80°C um 4 µm auf 14 µm. Da bei einer Öltemperatur von $T_{OL} = 80^\circ\text{C}$ der Einfluß der Zerstäubergastemperatur auf den Sauterdurchmesser gering ist, wurde bei den Zerstäubungsversuchen eine Suspensionstemperatur von T_S ca. 80°C und eine Zerstäubergastemperatur von T_G ca. 80°C eingestellt.

Da mit einer Erwärmung der Luft auch eine Abnahme der Gasdichte ρ_G verbunden ist, ändern sich die in Abb. 6.3 und 6.4 für $T_G = 22^\circ\text{C}$ dargestellten Abhängigkeiten zwischen Zerstäubergasdruck Δp_G und dem auf den Normzustand bezogenen Gasdurchsatz $\dot{V}_G$. Die sich bei einer Lufttemperatur von $T_G = 80^\circ\text{C}$ einstellenden Relationen werden in den Abb. 6.35 und 6.36 dargestellt. Als Testmedium ist eine Ölsuspension mit einem Pulverharzanteil von 30 Gew.% versprüht worden. Durch die Normierung auf den Suspensionsvolumenstrom $\dot{V}_S$ sind die ermittelten Geraden für alle Sprühversuche, bei denen Öl als Trägermedium verwendet worden ist, gültig. Nach Division des Suspensionsmassenstroms m_S mit der Suspensionsdichte ρ_S erhält man den Volumenstrom $\dot{V}_S$ und kann damit unmittelbar die interessierenden Größen $\dot{V}_G$ oder Δp_G aus den Diagrammen ablesen.

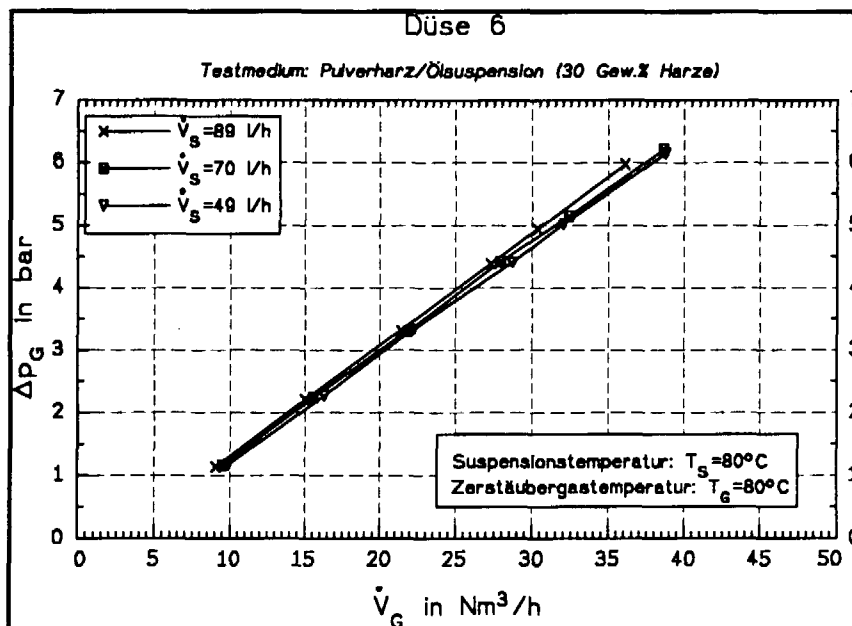


Abb. 6.35 Düse 6: Zerstäubergasdruck Δp_G in Abhängigkeit vom Zerstäubergasstrom $\dot{V}_G$ (bei $T_G = 80^\circ\text{C}$)

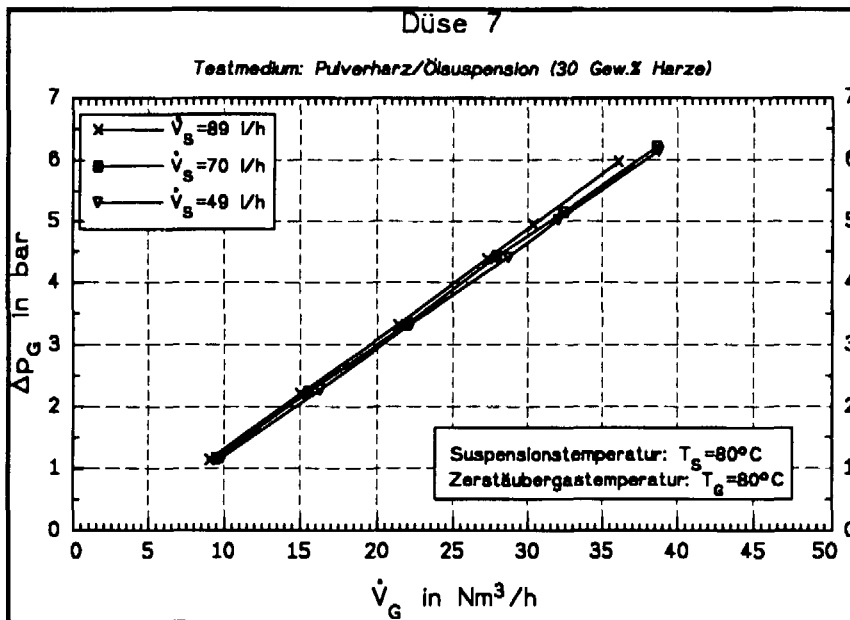


Abb. 6.36 Düse 7: Zerstäubergasdruck Δp_G in Abhängigkeit vom Zerstäubergasstrom $\dot{V}_G$ (bei $T_G = 80^\circ\text{C}$)

6.5.2 Zerstäubung von Pulverharzsuspensionen ohne PAN-Faseranteile

6.5.2.1 Vergleichende Zerstäubungsversuche mit Öl- und Wassersuspensionen zur Bewertung der Trägerflüssigkeiten

Zerstäubungsversuche mit Öl- und Wassersuspensionen sollten Aufschluß darüber geben mit welcher Trägerflüssigkeit, eine für die Verbrennung günstigere Tropfengrößenverteilung zu erzielen ist. Einen Überblick über die in Abhängigkeit vom Suspensionsvolumenstrom ermittelten Sauterdurchmesser gibt die Abb. 6.37. Zur besseren Vergleichbarkeit sind die Versuche bei einem konstant hohen Zerstäubergasdruck von $\Delta p_G = 5 \text{ bar}$ und ähnlichen Suspensionsviskositäten (Ölsuspension: $\eta_s = 150 \text{ mPa s}$; H_2O -Suspension: $\eta_s = 120 \text{ mPa s}$) durchgeführt worden. Die Harzbeladung der Ölsuspension betrug 40 Gew.% und die der H_2O -Suspension 28 Gew.%.

Man erkennt deutlich, daß in den Ölversuchen erheblich kleinere Tropfengrößen erzielt werden. So wurden für Düse 6 beim Zerstäuben der Ölsuspension Sauterdurchmesser ermittelt, die je nach Suspensionsdurchsatz ($46 \text{ l/h} \leq \dot{V}_S \leq 89 \text{ l/h}$) zwischen $7 \mu\text{m}$ und $10 \mu\text{m}$ lagen. Die Tropfengrößenmessungen bei der Zerstäubung der wässrigen Suspension ergaben im gleichen Volumenstrombereich, trotz einer etwas niedrigeren Suspensionsviskosität, um 80 bis 100% größere Sauterdurchmesser. Für Düse 7, die aufgrund

ihrer größeren Abmessungen auch größere Tropfen produziert, gelten die gleichen Beobachtungen.

Beim Zerstäubungsprozeß muß zur Erzeugung der Tröpfchen gegen die Flüssigkeitsoberflächenspannung (σ_A) Arbeit verrichtet werden (vgl. Gl.4.1, S.30). Dies bedeutet, daß bei geringerer Oberflächenspannung auch weniger Zerstäubungsenergie für die Bildung der gleichen Tropfenoberfläche aufgewendet werden muß. Da die Oberflächenspannung des verwendeten Öls mit 26.5 mN/m (bei 80°C) erheblich geringer als die des Wassers ($\sigma_A = 71 \text{ mN/m}$ bei 23°C) ist, erklären sich auch die kleineren Sauterdurchmesser.

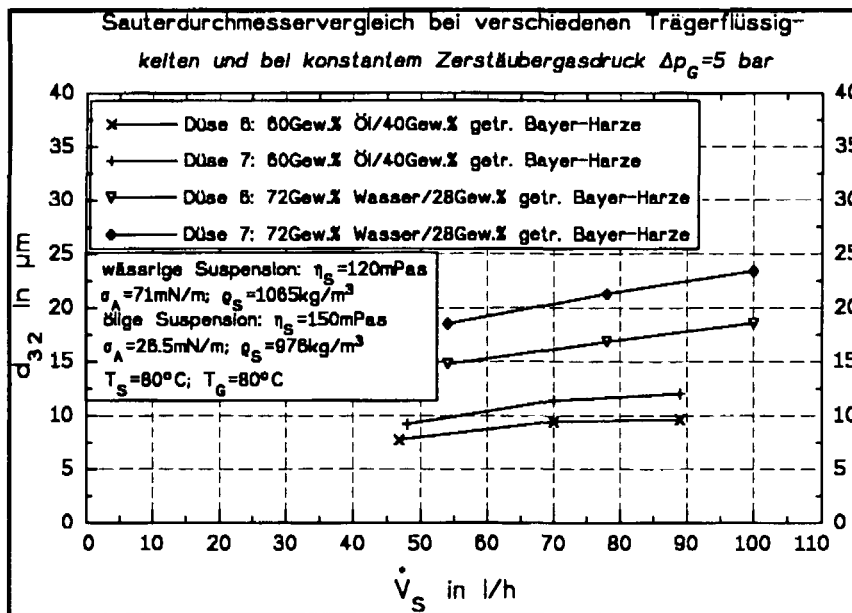


Abb. 6.37 Sauterdurchmesser beim Zerstäuben einer Öl / Harz- bzw. einer H₂O-Harzsuspension in Abhängigkeit vom Suspensionsvolumenstrom

In Abb. 6.38 wurden die Tropfengrößenverteilungen, die beim Zerstäuben einer Öl- und einer H₂O-Suspension mit jeweils maximaler Pulverharzbeladung (Öl: 40 Gew.%; H₂O: 28 Gew.%) ermittelt wurden, gegenübergestellt. Die Sprühversuche wurden mit Düse 6 bei einem Zerstäubergasdruck von $\Delta p_G = 5.4 \text{ bar}$ und einem Suspensionsvolumenstrom von $\dot{V}_S = 90 \text{ l/h}$ durchgeführt. Wie die Sprühversuche mit reinem Öl ergaben, wird bei vergleichbaren Randbedingungen ein Tropfengrößenspektrum bis in den Bereich von $60 \mu\text{m}$ erzeugt. Das bei der Zerstäubung einer Öl-/ Pulverharz-Suspension aufgenommene Spektrum weist einen deutlich weiteren Größenbereich auf. Die Gründe hierfür sind in der Gegenwart von Feststoffpartikeln im entsprechenden Korngrößenbereich zu sehen.

Aus Abb. 6.38 ist weiterhin abzulesen, daß unterhalb eines Bereichs $d_T < 100 \mu\text{m}$ deutliche Unterschiede in den beiden Tropfengrößenverläufen erkennbar werden. Beim Zerstäuben der Ölsuspension liegt sogar ein erheblicher Anteil der Tropfen (ca. 15%) in einem Bereich unterhalb des meßtechnisch erfaßbaren Bereichs von $5.8 \mu\text{m}$.

Bezüglich einer Annäherung der Tropfengrößen- an die Feststoffpartikelverteilung wird dies mit Öl als Trägerflüssigkeit besser erreicht. Im Vergleich zur wässrigen Pulverharz-suspension hat eine deutliche Annäherung der Tropfengrößenverteilung an die Korngrößenverteilung der Pulverharze stattgefunden. Mit dem in Kap. 4.2.1 vorgestellten Tropfengrößenmodell werden die Sprühnebelzusammensetzungen der Öl- und H_2O -Suspensionen durch den Zustand Abb. 4.6 (f) charakterisiert. Da die Ölsuspension eine hohe Feststoffbeladung hat, reduziert sich entsprechend der Anteil an reinen Flüssigkeitströpfchen.

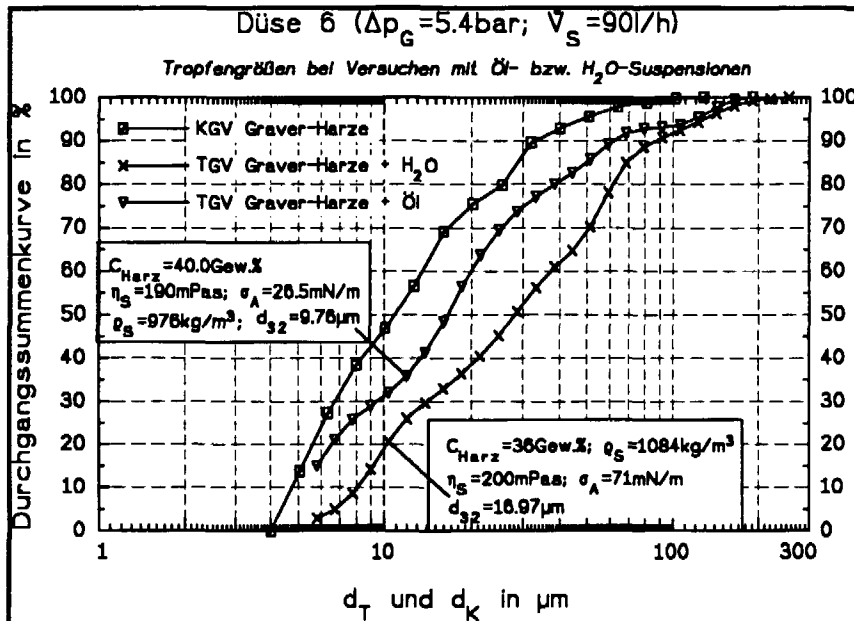


Abb. 6.38 Tropfengrößenvergleich beim Zerstäuben einer Öl / Harz- und einer H_2O -Harzsuspension bei jeweils maximaler Feststoffbeladung und konstanten Zerstäubungsparametern Δp_G und $\dot{V}_S$

6.5.2.2 Einfluß der Pulverharzsorte und der Düsenabmessungen

Aufgrund der unterschiedlichen Wasseraufnahmefähigkeit waren in den Zerstäubungsversuchen mit wässrigen Graverharz-Suspensionen deutlich höhere Feststoffbeladungen möglich als in den Versuchen mit Bayer-Harzen (getrocknete Graver-Harze: $c_{\text{max}} = 36 \text{ Gew.}\%$; getr. Bayer-Harze: $c_{\text{max}} = 29 \text{ Gew.}\%$). Im Gegensatz hierzu betrug in

den Sprühversuchen mit Öl / Graver- bzw. Öl / Bayer-Harzsuspensionen die maximal mögliche Harzbeladung bei beiden Pulverharzsorten $c_{\max} = 40 \text{ Gew.}\%$. Der Grund für die gleich hohe Feststoffbeladung liegt in der oleophoben Struktur der Ionenaustauscherharze, d.h. in ihrer Eigenschaft kein Öl zu absorbieren.

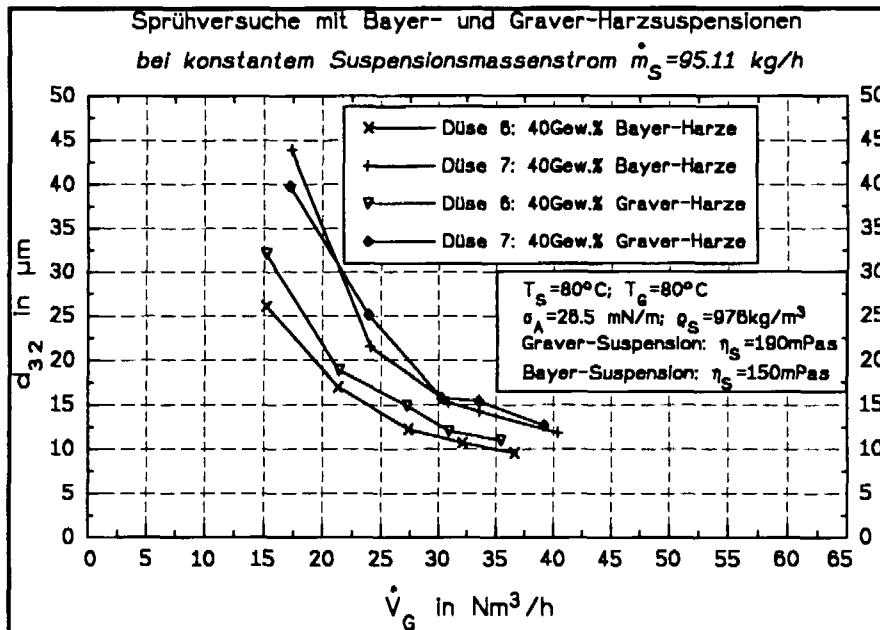


Abb. 6.39 Sauterdurchmesser beim Versprühen einer Öl / Graver- bzw. Öl / Bayerharzsuspension in Abhängigkeit vom Zerstäubergasstrom

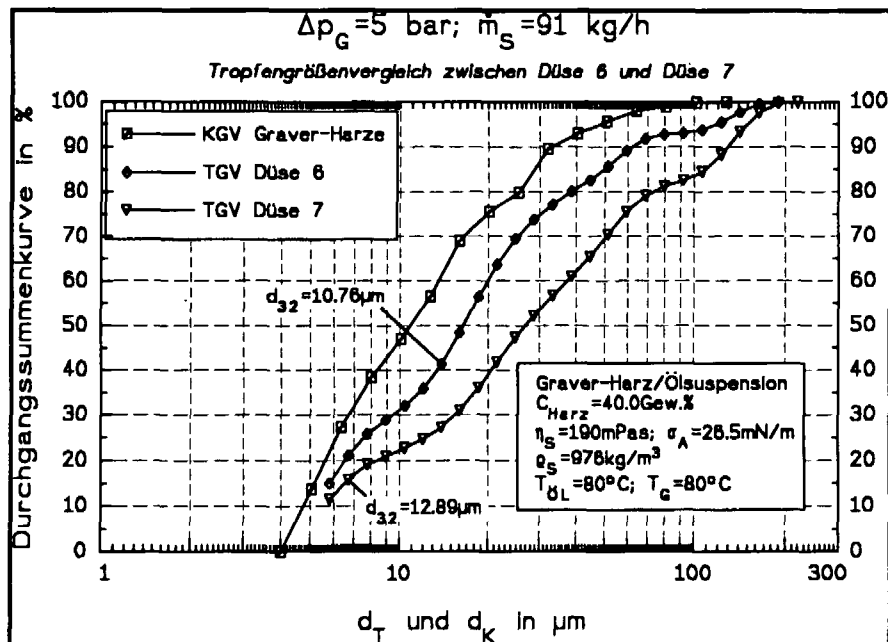


Abb. 6.40 Tropfengrößenverteilungen beim Zerstäuben einer Graver-Harz / Öl-suspension (40 Gew.% Pulverharze) mit den Düsen 6 und 7

In Abb. 6.39 werden die Sauterdurchmesser, die bei der Zerstäubung einer Öl / Bayerharz- bzw. einer Öl / Graverharzsuspension (je 40 Gew.% Harzbeladung) ermittelt wurden, vergleichend gegenübergestellt. Wie man sieht, sind trotz der unterschiedlichen Korngrößenverteilung der beiden Harztypen, keine nennenswerten Unterschiede im Zerstäubungsergebnis erkennbar. Daß Düse 6 beim Versprühen der kleineren Graverharze sogar geringfügig größere Tropfen lieferte, ist auf die etwas höhere Suspensionsviskosität der Öl / Graverharzsuspension zurückzuführen. Wie schon in der Versuchsreihe mit wässrigen Pulverharzsuspensionen, ist also wiederum kein Einfluß der Pulverharzsorte auf die Tropfenbildung zu erkennen.

Abb. 6.40 vergleicht die Tropfengrößenverteilungen, die in Sprühversuchen mit den Düsen 6 und 7 ermittelt wurden. Zum Vergleich ist zusätzlich die Korngrößenverteilung der Graver-Harze aufgetragen. Der Zerstäubergasdruck betrug $\Delta p_G = 5$ bar und der Suspensionsdurchsatz 91 kg/h. Es ist deutlich zu erkennen, daß mit Düse 6 feinere Tropfen gebildet werden. Bei beiden Düsen liegt ein Tropfenanteil von ca. 10% im Bereich unterhalb $5.8 \mu\text{m}$.

6.5.3 Zerstäubung von Pulverharzsuspensionen mit PAN-Faseranteilen

6.5.3.1 Suspensionszusammensetzung und notwendige Vorbehandlungsmaßnahmen

Das Mischungsverhältnis Kationen- / Anionenaustauscher / PAN-Fasern ist in allen Sprühversuchen mit 3:1:1 gewählt worden. Dies entspricht dem Mischungsverhältnis, das auch bei der Zerstäubung wässriger Pulverharzsuspensionen mit PAN-Faseranteilen gewählt worden ist. Wie schon im Fall der wässrigen Suspension, bilden die Fasern auch bei einer Ölsuspension größere Agglomerate.

Durch die Zugabe von PAN-Fasern reduziert sich der maximale Feststoffgehalt, bei dem eine Zerstäubung der Ölsuspension noch gerade störungsfrei möglich ist, von 40 Gew.% (ohne PAN-Fasern) auf nur noch etwa 23 Gew.%. Die Versuche mit PAN-Faser / Ölsuspensionen wurden aus verfahrenstechnischen Gründen nur mit einem maximalen Feststoffgehalt von 20 Gew.% durchgeführt.

6.5.3.2 Vergleichende Zerstäubungsversuche zur Bewertung der Trägerflüssigkeiten Wasser und Öl

Um die beiden Trägerfluide hinsichtlich ihres Zerstäubungsverhaltens unter der Beaufschlagung mit Pulverharz-/ PAN-Fasermischungen bewerten zu können, wurden Zerstäubungsversuche unter vergleichbaren Randbedingungen durchgeführt. Es wurden Suspensionen mit vergleichbarem Feststoffgehalt von ca. 20 Gew.% bei konstantem Volumenstrom von jeweils ca. 97 l/h zerstäubt. Dazu wurden die beiden Baumuster des Überschall-Pneumatikdüsentyps (Düse 6 u. 7) ausgewählt und dabei jeweils bei konstanten Zerstäubergasdruck von $\Delta p_G = 5.2 \text{ bar}$ bzw. $\Delta p_G = 2 \text{ bar}$ betrieben. In Abb. 6.41 und 6.42 sind die Ergebnisse der Versuche für beide Düsen in Form der für die jeweilige Suspensionsart ermittelten Tropfengrößenverteilungen unter Einbeziehung des Parameters "Zerstäubergasdruck" dargestellt. Zu erkennen ist daraus, insbesondere an den für Düse 6 für beide Suspensionsarten dargestellten Tropfengrößenverteilungen, daß Öl als Trägerfluid die kleineren Tropfen liefert. Der Grund hierfür ist in der deutlich geringeren Oberflächenspannung des Öls zu sehen. Bei der größeren Düse 7 ist der Unterschied nur bei dem höheren Zerstäubergasdruck so deutlich ausgeprägt. Insgesamt macht dies aber deutlich, daß mit diesem Parameter die Breite des Tropfenspektrums beeinflussbar und die Erzeugung enger Spektren ,d.h. eine Angleichung an die Partikelspektren der Feststoffe möglich ist.

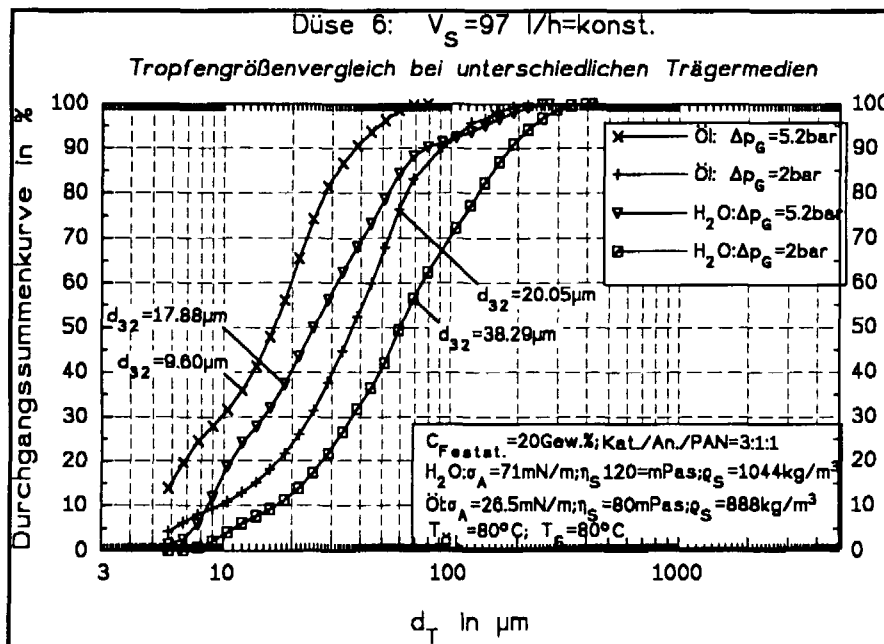


Abb. 6.41 Düse 6: Tropfengrößenverläufe bei der Zerstäubung einer wässrigen und einer ÖL / Bayer - Harz / PAN - Fasersuspension

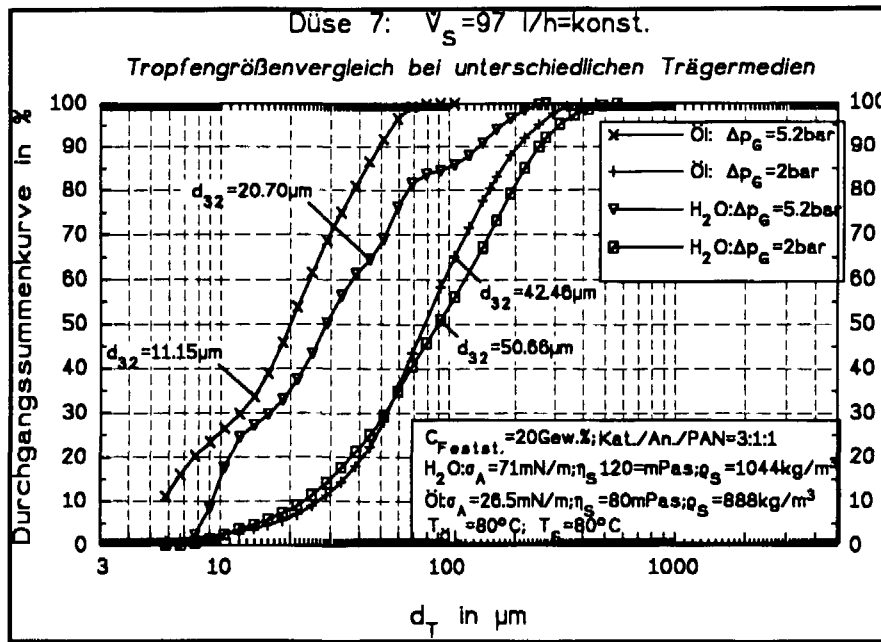


Abb. 6.42 Düse 7: Tropfengrößenverläufe bei der Zerstäubung einer wässrigen und einer ÖL / Bayer-Harz / PAN-Fasersuspension

6.5.3.3 Tropfengrößenanalyse in Hinblick auf den Verbrennungsprozeß

Die Abb. 6.43 und 6.44 geben einen Überblick über die Tropfengrößenverteilungen, die beim Versprühen einer Graver-Harz / PAN-Faser / Ölsuspension ($C_{\text{Festst.}} = 20 \text{ Gew.}\%$) mit Düse 6 ermittelt wurden. Es zeigt sich wiederum, daß im untersuchten Bereich der Einfluß des Suspensionsmassenstroms auf die Tropfengrößenverteilung gering ist (s. Abb. 6.43). Im Suspensionsmassenstrombereich $46 \text{ kg/h} \leq \dot{m}_S \leq 87 \text{ kg/h}$ wurden Sauterdurchmesser ermittelt, die mit Werten zwischen $8.18 \mu\text{m}$ und $9.47 \mu\text{m}$ sehr eng beieinanderliegen.

Das Variieren der Zerstäubergasmenge hat erwartungsgemäß einen deutlich größeren Einfluß auf die Tropfengrößen. So sind bei einem Zerstäubergasstrom von $\dot{V}_G = 14.97 \text{ Nm}^3/\text{h}$ (d.h. $\Delta p_G = 2 \text{ bar}$), 90 % der Tropfen kleiner als $120 \mu\text{m}$, während bei einem Zerstäubergasstrom von $36.30 \text{ Nm}^3/\text{h}$ (d.h. $\Delta p_G = 5.2 \text{ bar}$) immerhin 90 % der Tropfen kleiner als $50 \mu\text{m}$ sind. Da für eine optimale Verbrennung ein enges Tropfengrößenspektrum von großer Bedeutung ist, darf die Zerstäubergasmenge nicht zu gering sein. Aus Abb. 6.44 kann man ersehen, daß sich im Gasstrombereich $14.97 \text{ Nm}^3/\text{h} \leq \dot{V}_G \leq 21.35 \text{ Nm}^3/\text{h}$ eine deutliche Entwicklung zur Bildung größerer Tropfen (bis $d_T = 600 \mu\text{m}$) vollzieht. Zur Erzeugung kleiner Tropfen sollte die Zerstäubergasmenge nach Möglichkeit oberhalb dieses Bereichs liegen.

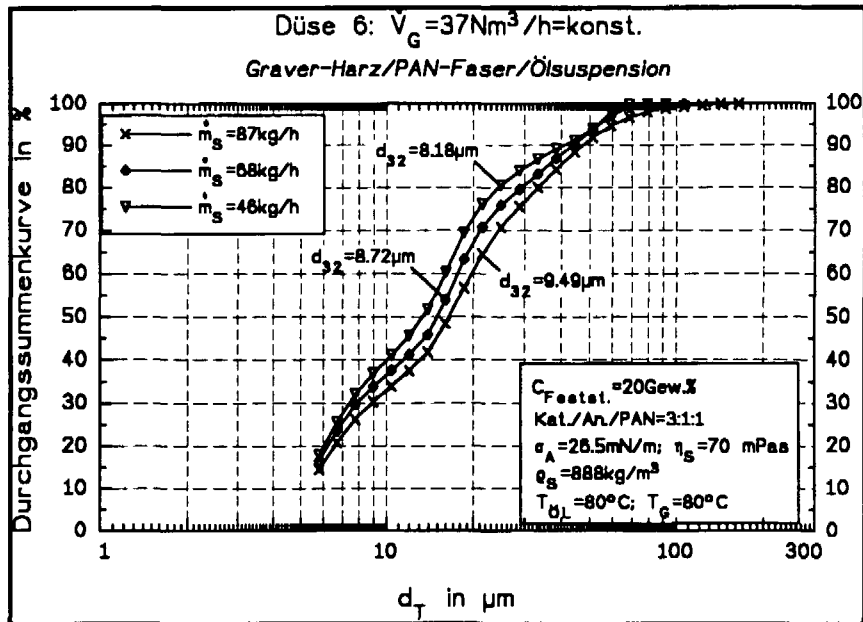


Abb. 6.43 Düse 6: Tropfengrößenverteilung in Abhängigkeit vom Suspensionsmassenstrom $\dot{m}_S$ bei konstantem Zerstäubergasstrom $\dot{V}_G$

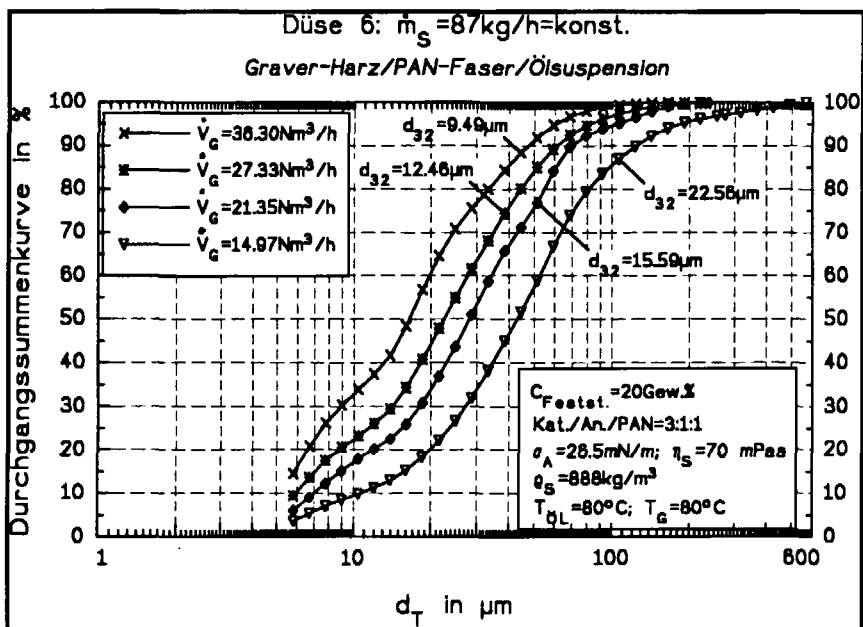


Abb. 6.44 Düse 6: Tropfengrößenverteilung in Abhängigkeit vom Zerstäubergasstrom $\dot{V}_G$ bei konstantem Suspensionsmassenstrom $\dot{m}_S$

Über die genaue Zusammensetzung der Tropfen kann erneut keine definitive Aussage gemacht werden. Man kann jedoch davon ausgehen, daß bei Zerstäubergasströmen über $30 \text{ Nm}^3/\text{h}$ keine größeren Feststoffagglomerate im Sprühnebel existieren, weil die größten gemessenen Tropfen kleiner als $200 \mu\text{m}$ sind.

Überträgt man das in Abb. 4.6 vorgestellte Tropfengrößenmodell auf die Tröpfchen, die beim Zerstäuben einer Pulverharz / PAN-Faser / Ölsuspension mit Düse 6 erzeugt werden, so befindet man sich im Zustand (e). Dieser Zustand, der beim Zerstäuben einer polydispersen Suspension mit geringem Feststoffgehalt entsteht, ist dadurch gekennzeichnet, daß sich sowohl reine Feststoffteilchen als auch Flüssigkeits- und Suspensionstropfen im Sprühnebel befinden. Aufgrund der geringen Oberflächenspannung des Öls ist davon auszugehen, daß die reinen Flüssigkeitstropfen im unteren Tropfengrößenbereich überrepräsentiert vorliegen, während umgekehrt die Suspensionstropfen und Feststoffteilchen vermehrt im oberen Tropfengrößenbereich zu finden sind.

6.6 Zerstäubungsversuche mit einem radioaktiv kontaminierten Betriebsabfall aus dem Kernkraftwerk Krümmel

Zum Abschluß der experimentellen Untersuchungen wurde ein Zerstäubungsversuch mit einem Ionenaustauscherharz-Abfall aus dem SWR-Kernkraftwerk Krümmel (KKK) durchgeführt. Ziel des Versuchs war es, nachzuweisen, daß die Ergebnisse aus den Experimenten mit Abfallsimulaten auf tatsächlich anfallende Abfälle übertragbar sind.

Das vom KKK bezogene Pulverharz / PAN-Fasergemisch stammt aus der Kondensatreinigung des Kraftwerks. Im KKK wird das Filtermaterial nach Erreichen eines festgelegten Filterkerzendifferenzdrucks abgeschwemmt und über einen Zwischenlagerbehälter einem Walzentrockner zugeführt. Das wässrige Konzentrat wird als dünne Schicht auf die beheizten Trockenwalzen (120°C) aufgebracht /1/. Nach Durchlaufen des Trockners wird das Trockengut von den Walzen mittels Schabemessern abgenommen und in ein 200 l Abfallfaß gefüllt.

Im Hinblick auf eine Suspensionszerstäubung ist es vorteilhaft, daß die PAN-Fasern durch dieses Konditionierungsverfahren sehr gleichmäßig mit den Pulverharzpartikeln vermischt werden. Im angelieferten Abfallfaß konnten größere PAN-Faseragglomerate ebenso wenig festgestellt werden wie durch den Trocknungsprozeß hervorgerufene Pulverharzanbackungen. Dies war nicht unbedingt zu erwarten, weil es bei der thermischen Vorbehandlung der Pulverharze im Trockenschrank immer wieder zur Bildung größerer Klumpen gekommen ist.

Für den verfahrenstechnischen Schritt der Zerstäubung ist es von großer Bedeutung inwieweit sich die physikalisch-chemischen Eigenschaften der Harze durch den Einsatz im Kraftwerk verändert haben. In der Praxis hat sich gezeigt (vgl. Kap. 2.1), daß durch die Strahlenbelastung keine negativen Veränderungen hinsichtlich der Stoffeigenschaf-

ten von Ionenaustauscherharzen auftreten. Der wesentliche Unterschied, zwischen den bisher untersuchten Simulaten und dem Betriebsabfall, besteht in der Beladung des realen Abfallprodukts mit kolloidalen Korrosionsprodukten. Hierdurch evtl. hervorgerufene Veränderungen im Zerstäubungsverhalten können nur in Sprühversuchen mit dem tatsächlichen Abfallprodukt festgestellt werden.

Die wichtigsten Analysendaten zur Charakterisierung des KKK-Abfalls sind in Tab. 6.1 zusammengestellt.

Leitnuklidverteilung*	
Co - 60	3.375 kBq/g
Cs - 137	2.9 E-02 kBq/g
Fe - 55	1.16 kBq/g
Cd - 113	2.6 E-01 kBq/g
Sonstige	1.17 kBq/g
Gesamt - α	3.75 E-05 kBq/g
Gesamt - β / γ	6 kBq/g
Analysewerte von Verbrennungsrückständen**	
Element	Menge [g/kg Asche]
Fe	284 - 330
Si	272 - 286
S	45 - 53
P	45 - 48
Ni	0.7 - 0.8
* entnommen aus dem Datenblatt für das Abfallfaß ** 6 Proben zu jeweils 10g Verbrennungstemperatur: 800°C Massenreduktionsfaktoren: zwischen 15:1 und 35:1 Analyseverfahren: ICP Restkohlenstoff: < 10 g/kg Asche	

Tab. 6.1 Kenndaten der Pulverharz / PAN - Fasermischung aus dem KKK

Als Trägerflüssigkeit für den abschließend durchgeführten Zerstäubungsversuch wurde Rückstandsöl verwendet. Für das Öl spricht vor allem, daß es aufgrund seines hohen Heizwertes, nicht als Ballaststoff für den Verbrennungsprozeß zu bewerten ist. Außerdem hat sich in den bisher durchgeführten Versuchen gezeigt, daß im Vergleich zu wässrigen Suspensionen, beim Zerstäuben von Ölsuspensionen, erheblich kleinere Tropfengrößenverteilungen erzielt werden.

In Trocknungsversuchen (Trocknungstemperatur: 120°C; Dauer: 24h) wurden bei verschiedenen Abfallproben Gewichtsverluste zwischen 3 und 3.5 Gew.% ermittelt. Dies weist auf einen geringen Restfeuchtegehalt der Harze hin. Eine Trocknung zur Entfernung des noch in den Harzen enthaltenen Restwassers war allerdings nicht notwendig, weil bei der Suspensionsherstellung keine Agglomeratbildung festzustellen war.

In den vorangegangenen Versuchen mit Simulatsuspensionen wurde mit einem Mischungsverhältnis Kationen- / Anionenaustauscher / PAN-Fasern von 3:1:1 eine Zusammensetzung gewählt, die identisch mit der im Kernkraftwerk Phillipsburg ist. Abweichend hierzu arbeitet das KKK, bei dem gleichen PAN-Faseranteil, mit einem Mischungsverhältnis Kationen- / Anionenaustauscher von 1.3 : 1. Der Einfluß auf die Zerstäubung dürfte aber vernachlässigbar gering sein, weil beide Harztypen annähernd die gleiche Korngrößenverteilung haben. Ein mit dem geänderten Mischungsverhältnis auftretender verstärkter Einfluß von elektrostatischen Anziehungskräften kann ausgeschlossen werden, weil das Rückstandsöl ein unpolares Medium darstellt und durch die thermische Vorbehandlung des Abfalls ein weitgehender Verlust der positiven Oberflächenladung des Anionenaustauschers stattgefunden hat (vgl. Abb. 3.10).

Zur Gewährleistung der Vergleichbarkeit wurde, wie in den Versuchen mit Abfallsimulaten, eine Feststoffbeladung von 20 Gew.% gewählt. Während der Suspensionsherstellung hat sich herausgestellt, daß auch mit einer Feststoffkonzentration von etwa 25 Gew.% ein Zerstäubungsversuch möglich gewesen wäre. Optisch waren bei dieser Konzentration keine Faseragglomerate in der fließfähigen Suspension erkennbar. Dies bestätigt, daß sich die Art und Weise der in Krümmel praktizierten Abfallkonditionierung günstig auf die Fließeigenschaften der Suspension auswirkt. Belegt wird dies auch dadurch, daß bei einer Feststoffbeladung von 20 Gew.% die Suspensionsviskosität der KKK-Suspension mit $\eta_s = 40$ mPas niedriger ist als die der vergleichbaren Simulatsuspension ($\eta_s = 70$ mPas).

In den Abb. 6.45 und 6.46 sind die Ergebnisse, die beim Zerstäuben der radioaktiv kontaminierten Abfallsuspension mit der Düse 6 ermittelt worden sind, dargestellt. Aus Abb. 6.46 kann man ablesen, daß bei einem Suspensionsdurchsatz von $\dot{m}_s = 87$ kg/h

eine nahezu vollständige Übereinstimmung der Tropfengrößenverläufe der KKK-Suspension und der Simulatsuspension vorliegt. Diese Übereinstimmung trifft sowohl für den Fall eines hohen Zerstäubergasdrucks von $\Delta p_G = 5$ bar als auch für den eines niedrigeren von $\Delta p_G = 2$ bar zu.

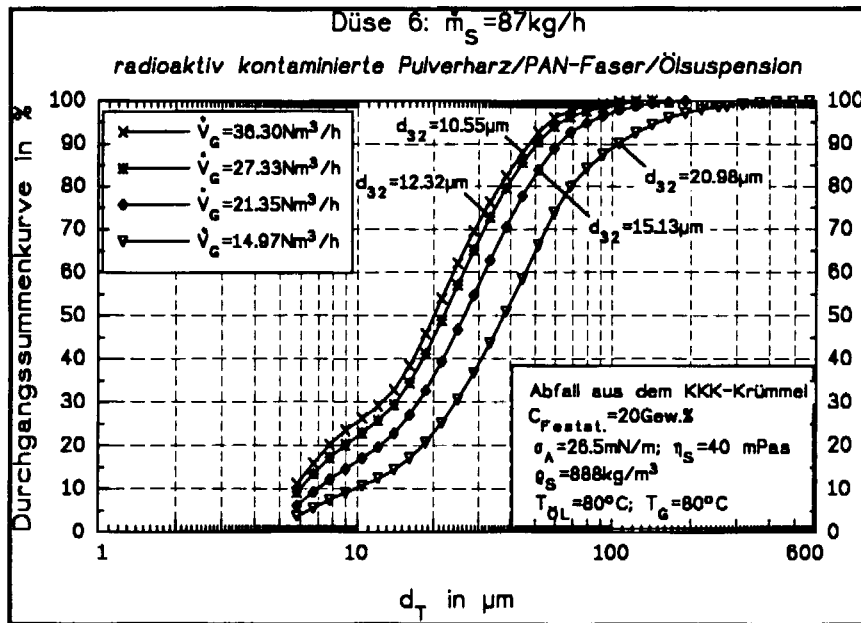


Abb. 6.45 Tropfengrößenverteilungen beim Zerstäuben einer Pulverharz / PAN-Faser / Ölsuspension mit einem Betriebsabfall aus dem KKK-Krümme

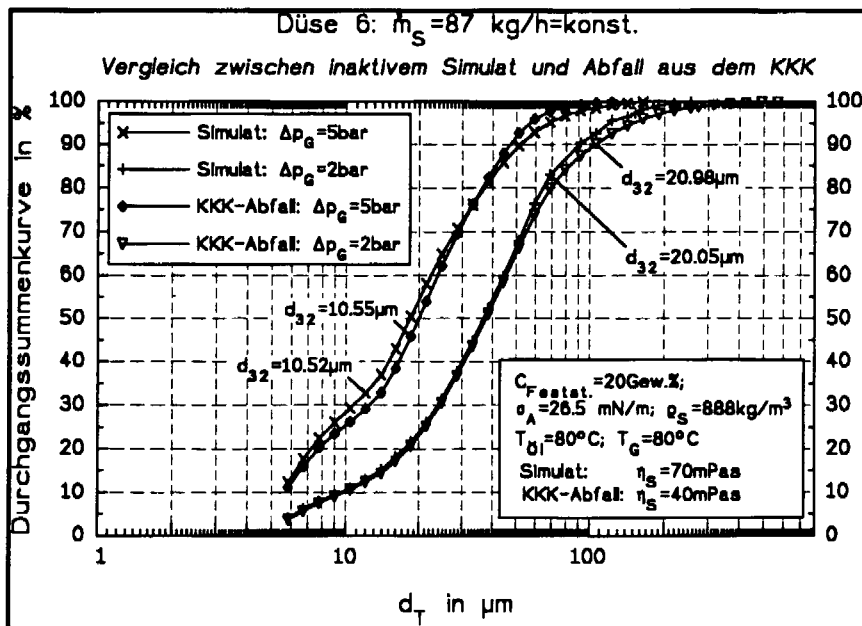


Abb. 6.46 Gegenüberstellung der Tropfengrößenverläufe beim Zerstäuben einer KKK-Ölsuspension und einer Simulat-Ölsuspension

Die Ergebnisse belegen eindeutig, daß die beim Zerstäuben von inaktiven Harz / PAN-Faser / Ölsuspensionen ermittelten Tropfengrößenverteilungen und die daraus gezogenen Schlußfolgerungen (vgl. Kap. 6.5.3.3) auf reale Abfallsuspensionen übertragbar sind.

Obwohl Zerstäubungsversuche mit einer wässrigen Abfallsuspension nicht durchgeführt wurden, ist davon auszugehen, daß auch in diesem Fall keine abweichenden Resultate zu erwarten sind. Es ist sogar wahrscheinlich, daß aufgrund der homogenen Abfalldurchmischung auch in wässriger Lösung eine höhere Feststoffbeladung möglich ist als in den Zerstäubungsversuchen mit Abfallsimulaten.

7. Schlußfolgerungen und Ausblick

Die experimentellen Untersuchungen haben gezeigt, daß die Verbrennung verbrauchter Ionenaustauscherharze mit dem Verfahren der Sprühinjektion als interessantes Verfahren anzusehen ist.

Es ist deutlich geworden, daß eine Zerstäubung von Pulverharz / PAN-Fasersuspensionen Düsen erfordert, die große freie Strömungsquerschnitte besitzen. Von den vier untersuchten Düsentypen hat sich nur die Überschall-Pneumatikdüse als geeignet erwiesen. Mit den anderen Düsen ist eine Zerstäubung von Harzsuspensionen ohne PAN-Faseranteile zwar grundsätzlich möglich, da über 80% der jährlich anfallenden Abfallmenge aber mit PAN-Fasern versetzt ist, wäre nur eine Teilentsorgung erreichbar.

Aufgrund ihrer großen Querschnitte arbeitet die Überschall-Pneumatikdüse außerordentlich störungsfrei. Ihrer besonderen Wirkungsweise ist es zuzuschreiben, daß über einem großen Regelbereich sehr feine Tropfen erzeugt werden. Für einen Verbrennungsprozeß ist dies sehr wichtig, weil nicht abzuschätzen ist, welche Betriebsbedingungen später die besten Verbrennungsergebnisse liefern. Die Verfahrensparameter, bei denen die kleinsten Tropfen entstehen, müssen nicht zwangsläufig auch die günstigsten sein. So liefern hohe Verhältnisse $\dot{m}_G / \dot{m}_S$ zwar kleine Tropfen, führen aber gleichzeitig auch dazu, daß die Suspension die Düse stoßartig verläßt, was sich möglicherweise ungünstig auf eine gleichmäßige Verbrennung auswirkt. Die Versuche mit der kleineren Überschall-Pneumatikdüse haben gezeigt, daß dieser unerwünschte Effekt bei Suspensionsdurchsätzen von $\dot{V}_S > 45 \text{ l/h}$, auch bei höheren Zerstäubergasdurchsätzen, nicht mehr auftritt.

Geht man davon aus, daß eine zukünftige Verbrennungsanlage mit einem Suspensionsdurchsatz von $\dot{V}_S = 100 \text{ l/h}$ betrieben wird, so ist die kleinere der beiden Überschall-Pneumatikdüsen der größeren vorzuziehen. In den Versuchen hat sich herausgestellt, daß mit der kleineren Düse grundsätzlich auch kleinere Tropfen gebildet werden, ohne daß hierbei Verstopfungsprobleme auftraten.

In SWR-Kernkraftwerken werden zur Zeit Pulverharze der Firmen Bayer und Graver verwendet. Ein Einfluß der Pulverharzsorte auf die Tropfengrößenverteilung im Sprühnebel konnte nicht festgestellt werden, obwohl sich die Korngrößen der beiden Produkte deutlich voneinander unterscheiden.

Bei der Auswahl einer geeigneten Trägerflüssigkeit ist das untersuchte Mineralölprodukt dem Wasser vorzuziehen. Im Vergleich zu wässrigen Suspensionen werden beim Zerstäuben von Ölsuspensionen, infolge der geringeren Oberflächenspannung des Öls, um etwa 80% bis 100% kleinere Tropfen gebildet. Ein weiterer Nachteil wässriger Suspensionen liegt in ihrem geringen Energieinhalt, der eine zusätzliche Fremdheizung notwendig macht, um den für die Verbrennung erforderlichen Heizwert bereitzustellen. Es ist außerdem zu bedenken, daß der im Rauchgas befindliche Wasserdampf eine Kondensation erforderlich macht, die bei einer Verbrennung mit Rückstandsöl entfällt.

Zerstäubungsversuche mit dem reinen Öl haben gezeigt, daß sowohl die Öl- als auch die Gastemperaturen einen Einfluß auf die Tropfenbildung haben. Als günstig hat sich in den Versuchen eine Öl- und eine Gastemperatur von ca. 80°C herausgestellt.

Für eine Abgasminimierung ist ein möglichst hoher Feststoffgehalt in der Suspension anzustreben. PAN-Fasern stellen den begrenzenden Faktor für die maximale Feststoffkonzentration dar. Ohne PAN-Faseranteile war es noch möglich Ölsuspensionen mit einer Feststoffkonzentration von 40 Gew.% zu zerstäuben. Die Anwesenheit von PAN-Fasern, die üblicher Weise im Mischungsverhältnis 1:4 zu den Pulverharzen vorliegen, führen zu einer deutlichen Verschlechterung der Fließeigenschaften. Da die Versuche mit Pulverharz / PAN-Faser / Ölsuspensionen aus verfahrenstechnischen Gründen nur bis zu einer Feststoffkonzentration von 20 Gew.% durchgeführt wurden, können keine exakten Angaben über den maximal möglichen Feststoffgehalt in der Ölsuspension gemacht werden. Deutlich geworden ist jedoch, daß die Art und Weise der Abfallvorbehandlung einen entscheidenden Einfluß auf die maximal erzielbare Feststoffbeladung hat. Bei der Herstellung einer Ölsuspension mit einem radioaktiv kontaminierten PAN-Faser / Pulverharzabfall aus dem KK-Krümmer wurden deutlich bessere Fließeigenschaften festgestellt als bei vergleichbaren Simulatsuspensionen. Während die Abfallsuspension bei einer Feststoffkonzentration von 25 Gew.% noch fließfähig war und keine größeren Faseragglomerate zu beobachten waren, lag die Simulatsuspension bei der gleichen Feststoffkonzentration als nicht mehr pumpfähiger Schlamm vor. Der Grund für die besseren Fließeigenschaften der Abfallsuspension ist in der im KKK durchgeführten Walzentrocknung zu sehen, mit der ein homogenes klümpchenfreies Abfallprodukt erzeugt wird.

Der abschließende Zerstäubungsversuch mit einem in Öl suspendierten radioaktiv kontaminierten Betriebsabfall wurde bei einem Durchsatz von $\dot{m}_s = 87 \text{ kg/h}$ mit der kleineren Überschall-Pneumatikdüse durchgeführt. Bei einem Feststoffgehalt von 20 Gew.% entspricht dies einer durchzusetzenden Abfallmenge von 17.4 kg/h. Hiermit liegt man genau in dem Bereich, für den auch eine Verbrennungsanlage auszulegen wäre.

Die Ergebnisse aus diesem Versuch zeigen, daß ab einem Zerstäubergasdurchsatz von $\dot{V}_G > 21.5 \text{ Nm}^3/\text{h}$ eine für den Verbrennungsprozeß günstige enge Tropfengrößenverteilung erzielt wird, bei der die größten Tropfen unterhalb eines Bereichs von $200 \mu\text{m}$ liegen. Bei einer Steigerung des Zerstäubergasdurchsatzes auf $\dot{V}_G = 36.30 \text{ Nm}^3/\text{h}$ sind schon über 90% der Tropfen kleiner als $50 \mu\text{m}$. Eine weitere Steigerung des Gasdurchsatzes ist nicht sinnvoll, weil hierdurch keine wesentlich kleineren Tropfen erzeugt werden. Eine genaue Festlegung der optimalen Zerstäubergasmenge kann jedoch nur in realen Verbrennungsversuchen erfolgen.

In deutschen Kernkraftwerken fallen jährlich ca. 140 t Ionenaustauscherharze an, für die eine Sprühinjktionsverbrennung geeignet erscheint. Bei einem kontinuierlichen Brennerbetrieb und einer Ofenverfügbarkeit von 70% ergibt sich daraus ein Durchsatz von ca. 20 kg/h. Aus den Erkenntnissen der Zerstäubungsversuche empfiehlt es sich, die Verbrennung mit einer Trägerflüssigkeit auf Mineralölbasis durchzuführen. Geht man davon aus, daß die Ölsuspension eine Feststoffkonzentration von 20 Gew.% hat, so ergibt sich daraus ein Suspensionsdurchsatz von 100 kg/h. Für diese vergleichsweise geringe Ofengröße könnte im Labor eine 1:2 oder sogar 1:1 Versuchsanlage ausgelegt und aufgebaut werden.

Bei den Auslegungskriterien für eine Versuchsanlage sollte man sich an den Betriebserfahrungen orientieren, die an bestehenden Sprühinjktionsbrennern zur Verbrennung feststoffhaltiger Suspensionen gemacht wurden [6], [47]/[57].

In Verbrennungsversuchen mit Abfallsimulaten müssen die für die Verbrennung radioaktiv kontaminierter Betriebsabfälle notwendigen Betriebsparameter experimentell ermittelt werden. Hierzu zählen vor allem:

- Ermittlung der für den Anfahr- und Dauerbetrieb notwendigen Prozeßparameter für Feed-, Verbrennungs- und Abgasreinigungsteil
- Ermittlung der Massenbilanzen für die wesentlichen Schadstoffe in den verschiedenen Abfallströmen

Der Verbrennungsprozeß selbst ist systematisch zu untersuchen. Von Bedeutung für die zu erzielende Volumenreduktion und die Wirtschaftlichkeit des Verfahrens sind die Qualität der Abgase und der Umfang der Abgasreinigung. Die Versuche hierzu können zu einem großen Teil mit inaktiven Proben durchgeführt werden.

Eine wesentliche Grenze für die Verbrennung von Ionenaustauscherharzen sind die enthaltene Aktivität bzw. die auftretenden Ortsdosisleistungen. Um Erkenntnisse über das Freisetzungsverhalten von Radionukliden zu erhalten, müssen Versuche mit getracerten Simulaten durchgeführt werden. Als Leitnuklid kann dabei Cäsium dienen, für dessen Freisetzung eine Schwelltemperatur von 800°C vorausgesagt wird. Ziel einer optimierten Verbrennung muß die weitgehende Aktivitätsrückhaltung im Verbrennungsrückstand sein, um einen unzulässigen Austrag in die Filterstrecke auszuschließen.

Aus den Erkenntnissen dieser Versuche können Rückschlüsse gezogen werden, in welcher Menge die höher aktiven Kugelharze, nach einer vorhergehenden Zerkleinerung, der Pulverharz / PAN-Faser / Ölsuspension zugemischt werden dürfen, um die zulässigen Grenzwerte nicht zu überschreiten.

Eine im Anschluß an die Laborversuche durchzuführende Verbrennung realer Betriebsabfälle könnte auch mit der Laboranlage durchgeführt werden, wenn eine dafür geeignete Abgasreinigungsstrecke vorhanden ist. Nähere Beschreibungen zum Aufbau und zur Wirkungsweise von Abgasstrecken zur Reinigung radioaktiv kontaminierter Abgase sind den Quellen /5/ und /58/-/60/ zu entnehmen.

8. Zusammenfassung

Nach heutigem Stand der Technik werden die beim Betrieb von Kernkraftwerken als Abschlämmung anfallenden und radioaktiv kontaminierten Kugel- und Pulverharze in der Regel nach einer Trocknung unfixiert in entsprechenden Behältern verpackt und zwischengelagert. In einem zukünftigen Endlager für radioaktive Stoffe sollen nach Möglichkeit keine organischen brennbaren Abfälle eingelagert werden. Daher sollen die aus einem Polystyrol-Gerüst bestehenden Harze durch eine geeignete Behandlung in eine anorganische, nicht brennbare Form überführt werden. Als mögliches Behandlungsverfahren bietet sich die Verbrennung an. Allerdings ist es bisher noch nicht gelungen ein Verbrennungsverfahren zu finden, mit dem eine einwandfreie Verbrennung gewährleistet werden kann. Erfolgversprechende Ansätze sind in einer Sprühinjektions-Verbrennung zu sehen, bei der Pulverharzsuspensionen mittels Düse zerstäubt und dabei mit großer Brennstoffoberfläche einem Brenner zugeführt werden.

Im Rahmen dieser Arbeit werden entsprechende Untersuchungen zur Charakterisierung des Fließ- und Zerstäubungsverhaltens von Pulverharzsuspensionen durchgeführt, die als ein wesentlicher verfahrenstechnischer Schritt in Richtung auf eine Sprühinjektions-Verbrennung anzusehen sind.

Ausgehend von einer Zusammenstellung der charakteristischen Abfallmengen und Stoffdaten der in den Kernkraftwerken anfallenden Ionenaustauscherharze, werden zunächst die Partikeldurchmesserverteilungen von unverbrauchten Harzen ermittelt. Durch den Vergleich mit den nach einem Naßmahlschritt ermittelten Partikelverteilungen wird aufgezeigt, daß die Harze in eine für die Sprühinjektion bzw. Verbrennung günstigere Form gebracht, d.h. weiter zerkleinert werden können. Insbesondere können die Kugelharze in eine mit den Pulverharzen vergleichbare Partikelverteilung überführt werden.

Unter der Vorgabe, den Stoffstrom eines Trägerfluids gering zu halten, d.h. Suspensionen mit möglichst hoher Harzbeladung herzustellen und dabei die Fließfähigkeit aufrecht zu erhalten, wird der Einfluß der Partikelverteilung und einer thermischen Vorbehandlung der Harze sowie der Zugabe von Additiven auf das Fließverhalten bzw. die Suspensionsviskosität untersucht. Da wässrige Suspensionen wegen ihres geringen Heizwertes nur durch zusätzliche Energiezufuhr verbrannt werden können, wird als alternatives Fluid ein beim Gasöl-Hydrocrackprozeß anfallendes Rückstandsöl einbezogen. Anhand der Untersuchungsergebnisse läßt sich folgendes festhalten:

Ohne Zugabe von Additiven wird bei üblichen Mischungsverhältnissen von Kationen- zu Anionenaustauscherharzen (3:1 bis 1:1) in wässrigen Suspensionen durch die Bildung von großflockigen Agglomeraten, bei Harzgehalten von ca. 18 Gew.%, die Fließgrenze erreicht, d.h. es liegt ein nicht mehr fließfähiger Schlamm vor. Durch Zugabe eines Additivs läßt sich der Feststoffgehalt auf ca. 28 Gew.% steigern, wobei dieses mit dem als wirkungsvoll ermittelten Tensid Naphtalintrisulfonsäure (NTS) erreicht wird.

Eine Zerkleinerung, d.h. kleinere Partikeldurchmesser bzw. feinere Partikelverteilungen wirken sich auf die Fließfähigkeit negativ aus. Ohne Zugabe eines Tensids wird die Fließgrenze von wässrigen Suspensionen schon bei Feststoffgehalten von ca. 15 Gew.% erreicht. Entsprechendes tritt auch bei der Zugabe von NTS auf. Trotz Tensid wird die Fließgrenze bei einem Feststoffgehalt von ca. 22 Gew.% erreicht.

Bei einer Trocknung der Harze, die in der Regel ohnehin zum Zweck der Zwischenlagerung durchgeführt wird, bleibt die Fließfähigkeit von wässrigen Suspensionen bis zu einem Feststoffgehalt von ca. 30 Gew.% erhalten. Eine Trocknung muß auf jeden Fall dann gefordert werden, wenn Öl als Trägerfluid verwendet wird. Feuchte Harze in Verbindung mit Öl neigen zu großflockiger Agglomeratbildung.

Mit Blick auf die Zerstäubung und Verbrennung bietet das untersuchte Öl gegenüber Wasser als Trägerflüssigkeit deutliche Vorteile. Wegen der geringeren Dichte des Öls und oleophoben Eigenschaften der Harze bleibt die Fließfähigkeit von Ölsuspensionen bis zu Harzgehalten von ca. 40 Gew.% erhalten. Geringfügig höhere Feststoffgehalte sind durch Zugabe von Additiven erreichbar. Als organisches Material auf Basis von Kohlenwasserstoffverbindungen mit hohem H/C-Verhältnis und Heizwert ist eine Verbrennung ohne zusätzliche Energiezufuhr möglich. Allerdings liegt der Stockpunkt mit 36°C über der Raumtemperatur und macht damit ein Erwärmen des Öls zur Herstellung fließfähiger Suspensionen erforderlich. Die dazu notwendige Energie kann aus dem Verbrennungsprozeß bezogen werden.

An einen Überblick über die für eine Suspensionszerstäubung entwickelten und markt-gängigen Düsenkonstruktionen und eine modellhafte Beschreibung der den Zerstäubungsprozess kennzeichnenden Einflußgrößen schließen sich als Arbeitsschwerpunkt Untersuchungen zum Zerstäubungsverhalten von Wasser- / und Öl-/ Harz-Suspensionen zwecks Auswahl einer geeigneten Düsenkonstruktion an.

Nach einer Beschreibung des Aufbaus und der Wirkungsweise des für die Versuche aufgebauten Zerstäubungsversuchsstandes bzw. des zur Erfassung von Tropfengrößenverteilungen eingesetzten Partikelgrößenmeßgerätes, wird auf die Zerstäubungsversuche

und -ergebnisse eingegangen und dabei eine für die Sprühinjektion geeignete Düsenkonstruktion vorgeschlagen.

Die zur Vermeidung der Rißbildung im Kraftwerksbetrieb den Pulverharzen zugesetzten Polyacrylnitrilfasern (PAN-Fasern) begünstigen in damit beaufschlagten Suspensionen die Bildung größerer Agglomerate und stellen insofern einen begrenzenden Faktor in bezug auf den Feststoffgehalt und eine Zerstäubung dar. Nur mit den Überschall-Pneumatikdüsen, von denen zwei unterschiedlich große Baumuster ausgesucht wurden und die sich durch relativ große und freie Querschnitte auszeichnen, konnte diese Suspensionsart störungsfrei zerstäubt werden. Aufgrund ihrer Wirkungsweise liefern sie über einen weiten Regelbereich feine Tropfengrößenverteilungen. Ein hohes Zerstäubergas-/ Suspensions-Verhältnis begünstigt dabei einerseits die Bildung feinsten Tropfen. Andererseits kann es dann bei geringen Suspensionsdurchsätzen dazu kommen, daß die Suspension nicht mehr kontinuierlich, sondern stoßweise aus der Düse austritt. Bei der kleineren Baugröße tritt dieser Effekt oberhalb eines Durchsatzes von ca. 45 l/h auch bei höheren Zerstäubergasdurchsätzen nicht mehr auf, sodaß diese mit Blick auf größere Suspensionsdurchsätze und feinere Tropfenverteilungen der größeren vorzuziehen ist. Mit dieser Düsenbauart können wässrige Pulverharz-/PAN-Fasersuspensionen (Mischungsverhältnis 4:1) bis zu einer Feststoffkonzentration von ca. 26 Gew.% zerstäubt werden.

Aufgrund der bei wässrigen Suspensionen als gut ermittelten Zerstäubungseigenschaften wurde bei den Untersuchungen mit Öl als Trägerfluid nur noch diese Düsenkonstruktion als erfolgversprechend in Betracht gezogen. Unabhängig von der Pulverharzsorte können Öl-/ Harzsuspensionen bis zu Feststoffgehalten von ca. 40 Gew.% zerstäubt werden, wobei gegenüber wässrigen Suspensionen noch feinere Tropfenverteilungen erzielt werden. Wie Zerstäubungsversuche mit reinem Öl zeigen, begünstigen höhere Temperaturen die Bildung kleinerer Tropfen. Eine Öl- und Gastemperatur im Bereich von ca. 80°C ist als ausreichend anzusehen.

Bis zu welchem maximalen Feststoffgehalt unter Aufrechterhaltung der Fließfähigkeit eine Zerstäubung von Ölsuspensionen mit zusätzlicher PAN-Faserfracht möglich ist, wurde nicht abschließend geklärt. Bis zu Feststoffgehalten von ca. 25 Gew.% lassen sich derartige Suspensionen auf jeden Fall gut zerstäuben. Dies läßt sich aus den Ergebnissen der Zerstäubungsversuche unter Verwendung echter, radioaktiv kontaminierter Pulverharz-PAN-Faserabfälle ableiten. Obwohl die Versuche aus anderen Gründen nur mit einer Feststoffkonzentration von ca. 20 Gew.% gefahren wurden, konnte bis zu der o.g. Feststoffkonzentration von ca. 25 Gew.% keine Agglomeratbildung durch die Fasern beobachtet werden und die Fließfähigkeit war gegeben. Dies

war bei vergleichbaren Suspensionen mit frischen Pulverharz-PAN-Fasermischungen nicht unbedingt der Fall. Der abschließende Zerstäubungsversuch wurde mit dem kleineren Düsenbaumuster bei einem Suspensionsdurchsatz von $\dot{m}_s = 87 \text{ kg/h}$ gefahren, was bei einer Feststoffkonzentration von ca. 20 Gew.% einem Abfalldurchsatz von ca. 17,4 kg/h entspricht. Dieser Wert liegt im Bereich der Größenordnung des Abfalldurchsatzes, für den eine Verbrennungsanlage ausgelegt werden müßte, um die jährlich in der Bundesrepublik Deutschland anfallende Abfallmenge an Ionenaustauscherharzen von 140 t in einem kontinuierlich betriebenen Sprühinjektions-Brenner durchzuetzen.

9. Literaturverzeichnis

- /1/ Vorbericht an den Kerntechnischen Ausschuß, KTA 3606
Behandlung radioaktiver Konzentrate in Kernkraftwerken
Deutsches Institut für Normung-Normenausschuß Kerntechnik, Januar 1985

- /2/ W. Weyer, P. Kraff
Untersuchung der Möglichkeiten zur Verbrennung von verbrauchten
Ionenaustauscherharzen aus Kernkraftwerken
Arbeitsbericht WTI / KFA, Februar 1989

- /3/ K. Kroebe, A. Meyer, G. Naumann, D. Rittscher
Verfestigung radioaktiver Abfälle aus Kernkraftwerken
Sonderdruck aus Schweizer Maschinenmarkt, August 1977

- /4/ M.Laser, H.Mallek
Verminderung der Schadstoff-Emissionen bei der Verbrennung von Abfällen
und Produktionsrückständen
Vortrag anlässlich Diskussionsforum Umwelttechnik
Transparent 1986
Grainau- Eibsee, 4.-7.7.1986

- /5/ K.H. Gräbner, R.Grade
Incineration of Radwaste in a commercially operated Plant
KWU: Paper presented at the 6th Annual Conference of Incineration of Low-
Level Radioactive Waste
April 21-24, 1987, St. Charles, Illinois

- /6/ M. Hoshino, M. Hayashi; I. Oda, N. Nonaka, K. Kuwayama, T. Shigeta
Proc. Int. Conf. on Incineration of Harzadous and Mixed Wastes
San Francisco / USA. 3.-6. Mai 1988

- /7/ Untersuchungen über die thermische Beständigkeit von mit Polystyrol
verfestigten Ionenaustauschern
Institut für Chemie der Treib- und Explosivstoffe, V-Bericht 5/75
Fraunhofer Gesellschaft, Oktober 1975

- /8/ G. Kühne
Besondere Merkmale von Ionenaustauschern für die Kerntechnik
Nr.9 / 73, VGB-Speisewassertagung 1971-Sonderdruck
VGB Dampftechnik GmbH, Essen

- /9/ H.G. Heitmann
Praxis der Kraftwerk-Chemie, S. 610f
Vulkan-Verlag, Essen

- /10/ G. Naumann, Bayer AG, Leverkusen
Organische Ionenaustauscher
Ullmann Enzyklopädie, Band 13, S.296

- /11/ H. Hepp, H. Generlich, E. Jaensch
Wasserchemische Betriebserfahrungen im SWR-Kernkraftwerk Würgassen
VGB Kraftwerkstechnik 59
Heft 2, Februar 1979, S. 158-170

- /12/ R. Svoboda et al.
Kondensatreinigung mit Pulverharz-Anschwemmfiltern am Beispiel
einer Siedewasserreaktoranlage
VGB Kraftwerkstechnik 61, Heft 2, Februar 1981, S. 133-143

- /13/ D. Grünewald, K. Kallenberg
Inbetriebnahme der Kondensatreinigung im Kernkraftwerk Würgassen
Brennstoff-Wärme-Kraft 24
Nr.10, Oktober 1972, S. 373-377

- /15/ H. Durcak
Kondensatreinigung in Kernkraftwerken mit Siedewasserreaktor
VGB Kraftwerkstechnik 59
Nr. 3, März 1979, S. 199-202

- /16/ H.Geiser
Verpackungskonzept für Rückstände aus der Verbrennung von Pulverharzen
WTI-Zwischenbericht, Januar 1992

- /17/ Hirsch, KKK Krümmel
Gesprächsnotiz während eines Besuchs im KKK Krümmel
Juli 1991

- /18/ KWU-Studie
Anfall und Verarbeitung der radioaktiven Abfälle aus Kernkraftwerken in der
Bundesrepublik Deutschland
Deutschland, Dezember 1981
KWU/ BS / 01 / 1981

- /19/ B. Deryaguin
Kolloid-Z., S.155, 69 (1934)

- /20/ E.J.W. Verwey, J.Th.G. Overbeek
Theory of the stability of lyophobic Colloids
Elsevier Publ. Co., Amsterdam, 1948

- /21/ Th.F. Tadros
Adv. Colloid Interface Sci., S.141, 12 (1980)

- /22/ R. Pätzold
Rheol. Acta, S. 322-344, 19 (1980)

- /23/ B. Richter
Das rheologische Verhalten wäßriger Kohlesuspensionen und dessen
Beeinflussung durch Additive in Hinblick auf die Verwendung in
Kohlevergasungsanlagen, Dissertation an der Uni Dortmund, Juli 1984

- /24/ B. Dobiás
in H. Stache; Tensid-Taschenbuch, S.57-80
Carl Hanser, München, Wien, (1979)

- /25/ H. Lange
Waschmittel-Chemie (Henkel), S.39-54
Hüthig, Heidelberg, (1976)

- /26/ K. Lindner
Tenside-Textilhilfsmittel-Waschrohstoffe, Band 1, S.561
Wissenschaftliche Verlagsgesellschaft, Stuttgart (1964)

- /27/ R.K. Freier
Chemie des Wassers in Thermischen Kraftanlagen, S. 438-439
de Gruyter-Verlag (1984)

- /28/ H.W. Glaser
Das Zerstäuben von Suspensionen mit Ein-und Zweistoffdüsen
Dissertation an der Gesamthochschule Essen (1989)

- /29/ R. Petela
Studie der Kohlenstaub-Öl - Suspension. 2. Teil-Anwendung
if-Die Industrieheizung (1986) 39, S. 5-26

- /30/ T. Richter, P. Walzel
Zerstäuben von Flüssigkeiten mit Hohlkegel-Druckdüsen
Chem.-Ing.-Technik 61 (1989) 4, S. 319-321

- /31/ P. Walzel
Tropfenverteilungen und Wirkungsgrad beim Zerstäuben von Flüssigkeiten mit
einer Turbulenzdüse
Chem.-Ing.-Technik 52 (1980) 12, MS 857/80

- /32/ P. Walzel
Turbulenter Zerfall von Flüssigkeiten aus der Sicht der Ähnlichkeitstheorie
Chem.-Ing.-Technik 52 (1980) 6, S. 525 - 526

- /33/ S. Nukiyama, Y. Tanasawa
An experiment on the atomization of liquid
Trans. Soc. Mech. Eng. (Japan). 5(1939), S. 1-4

- /34/ K. Brauckhage
Das Zerstäuben als Grundverfahren
Chem.-Ing.-Technik 62 (1990) Nr.8, S. 612-625

- /35/ M. M. Elkotb et. al.
Proc. of the 2nd Intern. Conf. on Liquid Atomization and Spray Systems
Madison / Wis. 1982, S. 100-115

- /36/ L.G. Dodge
Change of calibration of diffraction-based particle sizers in dense sprays
Optical Engineering 23 (1984) 5, S. 626-630

- /37/ P.G. Felton, A.A. Hamidi, A.K. Aigal
Measurement of Drop Size Distribution in Dense Spray by Laser Diffraction
ICLASS 85, London, 2 (1985) IV A / 4 / 1-11

- /38/ K. Bauckhage, V. Wasmansdorff
Bestimmung von Transportgrößen in Sprühkegeln
Chem.-Ing.-Technik 57 (1985) Nr.8, S. 686-697, MS 1388 / 85

- /39/ L.G. Dodge, D.J. Rohdes, R.D. Reitz
Drop-size measurement techniques for sprays: Comparison of Malvern laser diffraction and Aerometrics phase Doppler
Applied Optics 26 (1987) 11, S. 2144-2154

- /40/ H.W. Glaser, M.h. Cao
Feinstzerstäubung hochkonzentrierter Kohle/Wasser-Suspensionen
Chem.-Ing. Tech. MS 1706/88

- /41/ P.L. Meyer, N. Chigier
Characterization of the Atomization Process in Coal-Water Slurry Sprays
Int. Conf. on Liquid Atomization and Spray Systems, London (1985)

- /42/ Produktinformation der Firma Bayer zum Inertfasermaterial
Lewasorb AF 2 KR, Bestell-Nr. 5 - 9220, Januar 1986

- /43/ R.K. Freier
Chemie des Wassers in Thermischen Kraftanlagen, S. 415-451
de Gruyter-Verlag (1984)

- /44/ Produktinformation der Firma Bayer zum Kationenaustauscherharz
Lewasorb A50, Bestell-Nr. 5-9100, Januar 1986

- /45/ Produktinformation der Firma Bayer zum Anionenaustauscherharz
Lewasorb A10, Bestell-Nr. 5-9000, Januar 1986

- /46/ Master Sizer Referenz-Handbuch
Malvern Instruments, Version S 2.0, Oktober 1987

- /47/ T.U. Yu, S.W. Kang, M.A. Toqan, P.M. Walsh, J.P. Teare, J.M. Beer
A.F. Sarofim
Effect of fuel treatment on coal-water fuel combustion
Symp. (Int.) Combust., [Proc.], 1986, 21st., S. 369-378

- /48/ J. G. Hansel
Boiler heat transfer considerations in oxygen-enriched coal-water slurry and
pulverized coal combustion
Energy Prog. 1986, 6(1), S. 44-52

- /49/ R.W. Borio, M.J. Hargrove
Coal slurry fuel firing
Coal Technol. (Houston) 1984, 7th (3-5), S. 213-230

- /50/ D.C. Rawlins, R.G Jones, G.J. Gremane, L.D. Smoot, L.E. Paulson
Lignite coal water slurry combustion characteristics in a laboratory-scale furnace
Coal Slurry Fuels Prep. Util., Proc., Int. Symp. (Orlando), 8 th, 1986, S. 422-435

- /51/ A.W. Scaroni, C.Y. Tsai, T.S. Mc Ilvried, R.G. Jenkins
The combustion of a coal-water fuel with oxygen-enriched air
Coal Slurry Fuels Prep. Util., Proc., Int. Symp. (Orlando), 8 th, 1986, S. 409-421

- /52/ S. Srinivasachar, S.W. Kang, L.D. Timothy, D. Froelich, A.F. Sarofim, J.M. Beer
Fundamentals of coal-water fuel combustion
Coal Slurry Fuels Prep. Util., Proc., Int. Symp. (Orlando), 8 th, 1986, S. 330-341

- /53/ J.W. Allen, P.R. Beal, P.F. Hufton
Small (5million Btu/h) and large (300 million Btu/h) thermal test rigs for coal and
coal slurry burner development
Prepr. Pap. - Am. Chem. Soc., Div. Fuel Chem. 1983, 28(2), S. 62-76

- /54/ Y. C. Fu, G.T. Bellas, J.I. Joubert
Coal-water mixture combustion using oxygen-enriched air and staged firing
Prepr. Pap. - Am. Chem. Soc., Div. Fuel Chem. 1987, 32(4), S. 82-93

- /55/ Y. C. Fu, G.T. Bellas, D.E. Wieczenski, J.I. Joubert, G.F. Walbert
Coal-water mixture combustion tests using oxygen-enriched air
Coal Slurry Fuels Prep. Util., Proc., Int. Symp. (Orlando), 8 th, 1986, S. 577-587

- /56/ D.A. Akers, T.M. Murray
Combustion of water-oil-coal mixtures in a comercial - scale boiler
Coal: Phoenix '80s, Proc. CIC Coal Symp. 1981, 64th, Volume 1, S. 357-359

- /57/ Y.S. Pan
Coal-liquid mixture combustion tests in oil-design boilers at PETC
Natl. Res. Counc. Can., [Rep.] NRCC, NRCC 20457, Proc. Workshop:
Combust. Probl. Relat. Coal-Liq. Mixtures, 1982, S. 208-255

- /58/ F. Dirks, W. Hempelmann, H.Leibold
Weiterentwicklung des KfK-Systems zur Verbrennung radioaktiver Reststoffe
SVA-Vertiefungskurs, Abfallbewirtschaftung im Kernkraftwerk, Dezember 1986

- /59/ M. Laser, M. Arnold
Verbrennung schwach radioaktiver Abfälle nach dem Jülicher Verbrennungsverf.
SVA-Vertiefungskurs, Abfallbewirtschaftung im Kernkraftwerk, Dezember 1986

- /60/ T. Ernst, F.Stalder, U. Tillessen
Stand der Verbrennungstechnik für radioaktive Abfälle und Vorgehensplan
Motor Columbus AG, Schweiz, August 1987

10. Formelzeichen, Abkürzungen und Indices

Formelzeichen

A	:	Abstand Düsenaustritt Laserstrahl	[mm]
A^*	:	Flüssigkeitsaustrittsquerschnitt/ Zerstäubergasaustrittsquerschnitt	[-]
c	:	Massenanteil	[-, Gew. %]
c_w	:	aerodynamische Widerstandskraft	[-]
d_{32}	:	Sauterdurchmesser	[μm , m]
d	:	Durchmesser	[μm]
d_i	:	Rohrinnendurchmesser	[mm]
D	:	Düsendurchmesser allgemein	[mm]
D^*	:	Schergeschwindigkeit	[s ⁻¹]
D_A	:	Düsenaustrittsdurchmesser	[mm]
D_E	:	Durchmesser des Tangentialkanals bei EDD	[mm]
D_{MK_A}	:	Mischkammeraustrittsdurchmesser	[mm]
D_{s_A}	:	Düsenaustrittsdurchmesser (suspensionsseitig)	[mm]
E_σ	:	Oberflächenenergie	[N m]
f	:	Dicke der Flüssigkeitsschicht eines Sspensionstropfens	[μm]
F_σ	:	Oberflächenspannungskraft	[N]
F_w	:	aerodynamische Widerstandskraft	[N]
$\dot{m}$	:	Massenstrom	[kg/h]
N	:	Streuparameter	[-]
Oh	:	Ohnesorge-Zahl	[-]
r	:	Radius	[μm]
Re	:	Reynoldszahl	[-]
Re_G	:	Gas-Reynoldszahl	[-]
$t_{1/2}$	:	Halbwertszeit	[d, a]
T	:	Temperatur	[°C]
T_p	:	Stockpunkt	[°C]
v	:	Geschwindigkeit	[m/s]
v^*	:	Geschwindigkeitszahl	[-]
V	:	Flüssigkeitsvolumen	[m ³]
$\dot{V}$	:	Volumenstrom	[m ³ /h]
$\dot{V}_G$	:	Zerstäubergasstrom	[Nm ³ /h]
We	:	Weberzahl	[-]
We_G	:	Gas-Weberzahl	[-]

Griechische Formelzeichen

ϕ	:	Durchmesser	[mm]
η	:	Viskosität	[mPa s, Pa s]
η^*	:	Viskositätszahl	[-]
γ	:	Schergeschwindigkeit	[-]
ρ	:	Dichte	[kg/m ³]
ρ^*	:	Dichtezahl	[-]
σ_A	:	Flüssigkeitsoberflächenspannung	[mN/m]
$\Delta n/\Delta t$	:	Zylinderbeschleunigung des Viskosimeters	[min ⁻²]
Δp	:	Düsenvordruck bei EDD	[bar]
Δp^*	:	Düsendruckzahl	[-]
Δp_G	:	Zerstäubergasdruck am Düsenaustritt	[bar]
Δv	:	Differenzgeschwindigkeit zwischen Zerstäubergas und Fluid	[m/s]
ξ	:	Druckverlustbeiwert	[-]
Ψ	:	Polydispersitätsmaß	[-]
ζ	:	Formfaktor	[-]

Abkürzungen

CMC	:	kritische Mizellbildungskonzentration
DVB	:	Divinylbenzol
DWR	:	Druckwasserreaktor
EDD	:	Einstoff-Druckdüse
HKD	:	Hohlkegel-Dralldüse
KGv	:	Korngrößenverteilung
NTS	:	Naphtalintrisulfonsäure
PAN	:	Polyacrylnitril
TGV	:	Tropfengrößenverteilung
SWR	:	Siedewasserreaktor

Indices

A	:	Austritt
E	:	Eintritt
G	:	Zerstäubergas
i	:	Komponente i
K	:	Harzkorn
L	:	Flüssigkeit allgemein
m	:	Maximum
Öl	:	Hydrocrack-Gasoil-Residue
S	:	Suspension
T	:	Tropfen

Danksagung

Die vorliegende Arbeit entstand am Institut für Chemische Technologie des Forschungszentrums Jülich GmbH (KFA).

Meinem Doktorvater, Herrn Professor Dr. rer. nat. E. Merz, dem Leiter des Instituts für Chemische Technologie, danke ich herzlich für die Möglichkeit zur Durchführung dieser Arbeit und die mir hierbei durch seine wohlwollende Förderung zugestandenen Freiräume.

Herrn Professor Dr. rer. nat. H. Bonka, Vorstand des Lehr- und Forschungsgebiets Strahlenschutz in der Kerntechnik an der RWTH Aachen, gilt mein Dank für die Übernahme des Korreferats.

Herrn Dr. D. Niephaus danke ich sehr für die Betreuung und Unterstützung meines Themas, für die anregenden Diskussionen sowie für die kritische Durchsicht meiner Arbeit.

Mein besonderer Dank gilt Herrn G. Dickmeis, dessen tatkräftige Hilfe beim Aufbau der Versuchsanlage und dessen ständige Hilfsbereitschaft während der Laborexperimente eine wesentliche Voraussetzung für das Gelingen dieser Arbeit waren.

Ebenfalls besonderer Dank gilt Herrn H. Wetzler für die Unterstützung bei der Konstruktion der Laboranlage, für die Anfertigung verschiedener Grafiken sowie für die ständige konstruktive Beratung.

Weiterhin möchte ich mich bei Herrn Dr. S. O. Schmidt für seine zahlreichen Anregungen und seine ständige Hilfsbereitschaft bedanken.

Mein weiterer Dank gilt Herrn M. Korsten für die ausgezeichnete Hilfe bei der Durchführung der Laborexperimente.

Schließlich danke ich allen Mitarbeitern des Instituts, die auf vielfältige Weise zum Gelingen der Arbeit beigetragen haben.