

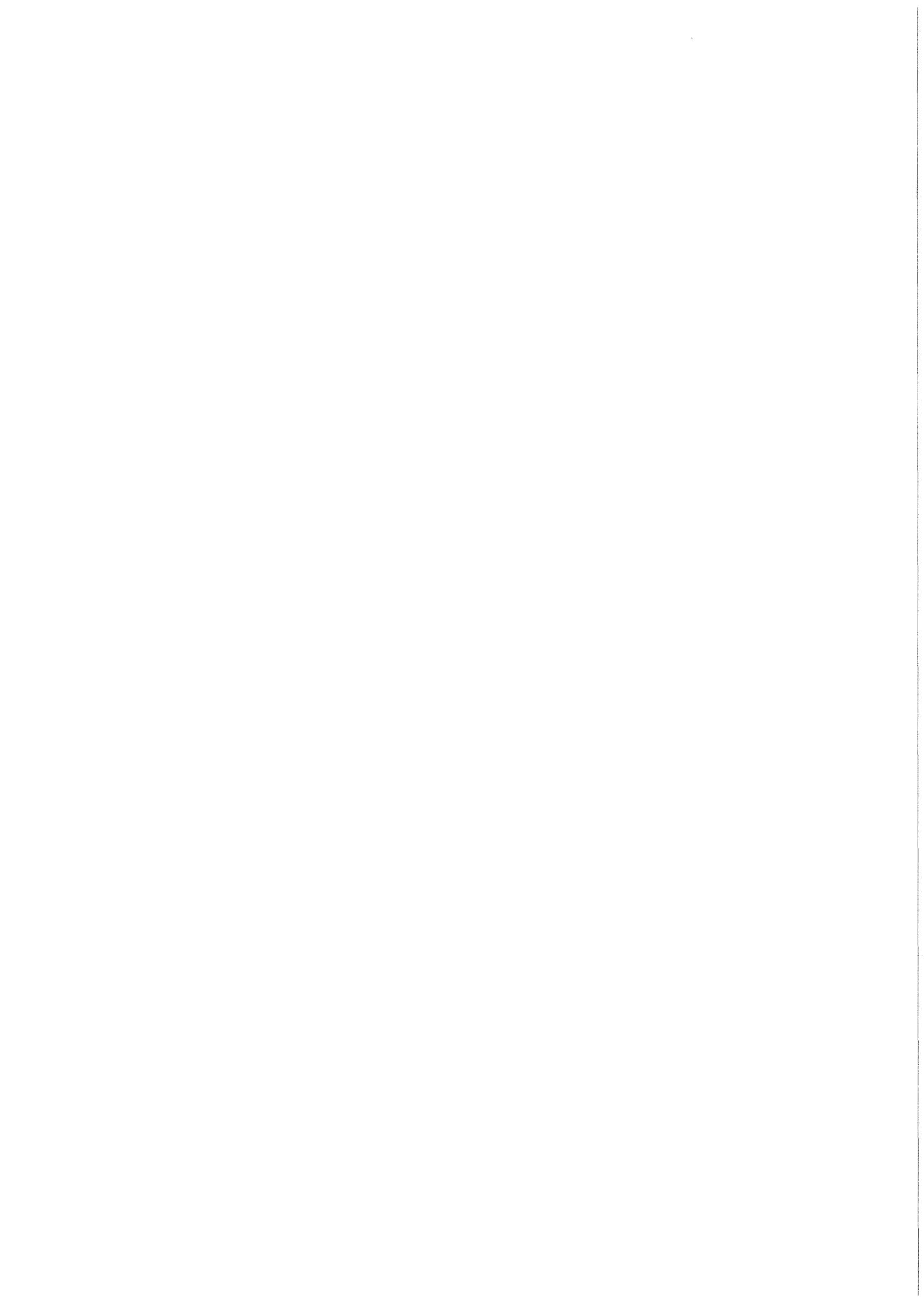
KfK 3835
März 1985

Der Pulskolonnenteststand PUSTA

**Aufgabenstellung
Anlagenbeschreibung
Erste Ergebnisse**

**P. Feucht
Hauptabteilung Ingenieurtechnik
Projekt Wiederaufarbeitung und Abfallbehandlung**

Kernforschungszentrum Karlsruhe



KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE

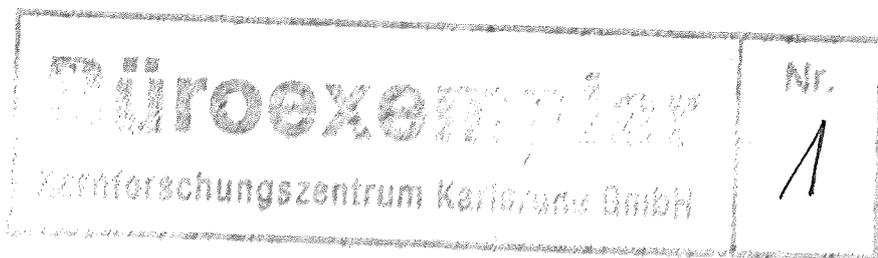
Hauptabteilung Ingenieurtechnik
Projekt Wiederaufarbeitung und Abfallbehandlung

KfK 3835
PWA 83/84

Der Pulskolonnenstand PUSTA

Aufgabenstellung Anlagenbeschreibung Erste Ergebnisse

P. Feucht



KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE GMBH, KARLSRUHE

Als Manuskript vervielfältigt
Für diesen Bericht behalten wir uns alle Rechte vor

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH
ISSN 0303-4003

Zusammenfassung

In der vorliegenden Arbeit werden die Probleme der extraktiven Tritiumabtrennung im PUREX-Prozess zusammengefaßt dargestellt. Zur Absicherung von Auslegung und Betrieb einer Tritiumwaschkolonne wurde ein Teststand realisiert, der die Durchföhrung von Extraktionsexperimenten in uranbeladenen Phasen unter extremen Flußverhältnissen ermöglicht. Die Anlage wird beschrieben, und die Erfahrungen mit neueren Meßverfahren aus der Extraktionsforschung und erste Meßergebnisse werden mitgeteilt.

Abstract

The pulsed column pilot plant PUSTA

This work summarizes the problems of tritium separation by extraction in the PUREX process. To provide more security for the layout and the operation of a tritium scrubber a pilot plant was realized that allows to carry out extraction experiments in uranium loaded phases under extreme flow ratios. The plant is described and information is given about the experiences with newer methods of measuring out of the extraction research and also about first measuring results.

INHALTSVERZEICHNIS

	Seite
<u>A</u> <u>Aufgabenstellung</u>	3
1 Tritiumabtrennung im PUREX-Prozess	3
2 Extraktoren für die Tritiumwäsche	5
2.1 Mischabsetzer	6
2.2 Gepulste Siebbodenkolonnen	7
<u>B</u> <u>Allgemeine Beschreibung der Anlage</u>	9
3 Verfahrensbeschreibung	9
3.1 Kreislauf der wässrigen Phase	10
3.2 Kreislauf der organischen Phase	10
4 Apparatebeschreibung und Auswahl	10
4.1 Allgemeine Richtlinien und Spezifikationen	10
4.1.1 Werkstoffe und Korrosionsfragen	11
4.1.2 Auslegungskriterien	11
4.2 Technische Daten der wesentlichen Apparate und Einrichtungen	11
4.2.1 Behälter	11
4.2.2 Rohrleitungen und Armaturen	12
4.2.3 Fördereinrichtungen	13
4.2.4 Extraktionseinrichtungen	14
4.2.5 Wärmeaustauscher	14
4.2.6 Auffang- und Bodenwannen	14
5 Prozessüberwachung und Steuerung	15

6	Aufstellung des Teststandes	16
7	Sicherheitsbetrachtung	16
7.1	Komponenten	17
7.2	Hilfs- und Nebenanlagen	17
7.3	Qualitätssicherungsmaßnahmen	17
7.4	Leittechnik	18
<u>C</u>	<u>Meßverfahren und erste Ergebnisse</u>	19
8	Trennschichtmessung und -regelung	19
9	Pulsationshub	19
10	Flutpunkt	21
11	Hold-up	22
12	Rückvermischung	24
13	Tropfengrößenverteilung	25
14	Meßdatenerfassung	26
<u>D</u>	<u>Anhang</u>	
	Literaturverzeichnis	27
	Abbildungsverzeichnis und Abbildungen	31

A Problemstellung

Die rein theoretische Dimensionierung von Extraktionsapparaten ist immer noch ein im wesentlichen ungelöstes Problem. Insbesondere ist für gepulste Siebbodenextraktionskolonnen keine rein theoretische Methode zur Ermittlung der Auslegungsdaten bekannt. Der Rückgriff auf Versuchsdaten sowie Erfahrungen aus dem Betrieb sind unverzichtbar. Bei Verwendung einer Pulskolonne zur Abtrennung des Tritiums im PUREX-Prozess ergeben sich durch die Forderung der Waschwasserminimierung zusätzlich die Schwierigkeit des extremen Flußverhältnisses und der dadurch erhöhten Rückvermischung. Zur Absicherung von Auslegung und Betrieb einer großen T-Scrub-Kolonne sind daher umfangreiche Parameteruntersuchungen erforderlich. Anstelle von Tritium wird hierbei das inaktive Isotop Deuterium verwendet. Neben tritiumspezifischen Versuchen sollen mit dem Teststand grundlegende Untersuchungen zur Fluidodynamik und zum Stoffübergang in gepulsten Kolonnen durchgeführt werden.

1 Tritiumabtrennung im PUREX-Prozess

Der weitaus größte Teil des H-3-Inventars in einem Leichtwasserreaktor entsteht durch ternäre Spaltung im Kernbrennstoff.

Bei einem Brennstoffabbrand von 33 GWd/tU werden größenordnungsmäßig 700 Ci Tritium pro Tonne Uran gebildet.

Aus den intakten Brennstäben mit Zirkaloy-Hüllrohren wird nur ein geringer Anteil (0.1 bis maximal 1 %) im Reaktor an das Kühlmittel abgegeben [1,2]. Im Füllgasvolumen der bestrahlten Brennstäbe wurden weniger als 0.01 % des H-3-Inventars gefunden [3,4]. Die Hauptmenge des Tritiums verteilt sich auf das Hüllrohr und auf den Kernbrennstoff. Im Zirkaloy liegt das Tritium als Hydrid gebunden vor und kann nur durch starke Temperaturerhöhung bzw. chemische Desintegration der Zirkaloy-Matrix freigesetzt werden.

Aus Abb. 1 (nach [5]) geht hervor, daß ein ausgeprägtes H-3-Profil mit einem Minimum in der Nähe des Tablettenzentrums, also im heißesten Bereich, vorliegt. Daraus läßt sich ableiten, daß die Tritiumfreisetzung aus dem Kernbrennstoff im wesentlichen von der Temperatur abhängt. Bestätigt wird diese

Ansicht durch verschiedene Untersuchungen über den Freisetzungsgrad von Tritium (nach [3]) bei verschiedenen Brennstableistungen (Abb. 2). Je nach Brennstableistung verteilt sich somit die Hauptmenge des Tritiums wie folgt:

- Hüllmaterial : 40 - 70 %
- Brennstoff : 30 - 60 %

Beim Schneiden der Brennelemente und Lösen des Brennstoffs in Salpetersäure gelangen weniger als 1 % als molekularer Wasserstoff HT bzw. T_2 in die Gasphase. Das im Brennstoff enthaltene Tritium findet sich in der wässrigen Phase als tritiiertes Wasser HTO und als tritiierte Salpetersäure TNO_3 wieder [3,4,6,7]. Das spricht dafür, daß H-3 an Sauerstoff gebunden ist und nicht als eingeschlossenes Gas vorliegt.

Bei einer 350 jato Wiederaufarbeitungsanlage fallen somit nach dem Auflösen je nach Brennstableistung und Kühlzeit rund 10^5 Ci Tritium pro Jahr an.

Neben den wässrigen Prozeßströmen enthalten auch die organischen Phasen, wenn auch nur in geringem Maße, Wasser und Salpetersäure in gelöster Form und als Entrainment zu ca. 1 %. Entsprechend den Verteilungsgleichgewichten von Wasser und Salpetersäure wird das Tritium in das organische Extraktionsmittel extrahiert und kann damit in alle Waste- und Produktlösungen verschleppt werden, sofern es nicht durch Gegenmaßnahmen daran gehindert wird. Um das Verhalten des Tritiums im PUREX-Prozess zu untersuchen, sind daher das Wasser und die Salpetersäure in ihrem Verhalten zu beachten. Zusätzlich sind in den mehr oder weniger wasserdampfgesättigten Abgasen tritiiertes Wasser und tritiierte Salpetersäure zu finden.

Im hochaktiven Bereich werden wegen der starken Strahlenbelastung in geringem Umfang auch nichtacide Wasserstoffatome tritiiert [8]. Ihre Menge spielt aber für die Gesamtbilanz praktisch keine Rolle.

Für die Rückhaltung des Tritiums ergeben sich zwei wesentliche Forderungen für die Prozessführung:

- Konzentrierung auf einen möglichst kleinen Wastestrom
- Beschränkung auf einen kleinen Anlagenbereich

Das beim Brennstoffaufschluß in Form von elementarem Wasserstoff freigesetzte Tritium wird, falls erforderlich, zu tritiiertem Wasser HTO oxidiert werden können (derzeit kann nach SSK/RSK bei der WA 350 das Tritium im Prinzip über den Kamin abgegeben werden). Zur Abtrennung aus den Abgasen besteht die Möglichkeit, den tritiumhaltigen Wasserdampf durch konventionelle Trocknungsverfahren auszuscheiden und zurückzuführen.

Für die Rückhaltung der Hauptmenge des Tritiums, das über die flüssigen Medien in den Extraktionsteil der Aufarbeitungsanlage gelangt, bietet sich als verfahrenstechnische Lösung ein Tritium-Wäscher an, der sich an die HS-Kolonnen anschließt und durch Verwendung tritiumfreier Salpetersäure die Ausbreitung über den PUREX-Prozess verhindert (Abb. 3). Dazu wird als TSS-Lösung ein relativ kleiner Volumenstrom an tritiumfreier Salpetersäure (ca. 3 molar) der organischen HSP-Lösung entgegengeführt, und das Tritium wird ausgewaschen. Die mit tritiiertem Wasser beladene TSR-Lösung wird zusammen mit der HSS-Lösung der HS-Kolonnen zugeführt. Im Gegensatz zur tritiumfreien TSS-Säure des T-Wäschers, werden die anderen Waschlösungen im 1. Extraktionszyklus, d.h. dem hochaktiven Teil, auch die zur Auflösung verwendete Salpetersäure, aus rezykliertem Wasser und aus rezyklierter Salpetersäure hergestellt und sind damit tritiumhaltig.

Durch diese Maßnahmen läßt sich das Tritium durch die Rezyklierung im hochaktiven Teil aufkonzentrieren und in einem kleinen Volumen zusammenhalten.

Es gelangt dann beim Eindampfen des Raffinats aus dem 1. Extraktionszyklus (HAW) in die ausgetriebene Säure, die einer Rektifikation zugeführt wird. Das Kopfprodukt wird teilweise der Abfallbehandlung unterworfen und zum anderen Teil, ebenso wie das Sumpfprodukt, rezykliert.

2 Extraktoren für die Tritiumwäsche

Bedingt durch die Radioaktivität bei der Aufarbeitung, unterliegen die zum Einsatz kommenden Apparate strengen Auswahlkriterien.

Einige wesentliche Anforderungen, die für viele Apparate in einer Wiederaufarbeitungsanlage erfüllt werden sollten, sind folgende:

- Zuverlässigkeit,
- Flexibilität,
- Eingriffsmöglichkeiten,
- stabiles Betriebsverhalten,
- Unempfindlichkeit,
- hohe Standzeit,
- Fernbedienbarkeit,
- kritisch sicher.

Für chemische Prozesse kommen drei verschiedene Apparatetypen bei der Gegenstromextraktion zur Anwendung:

- Mischabsetzer,
- Extraktionskolonnen,
- Zentrifugalextraktoren.

Bei der Wiederaufarbeitung sind bisher nur

- Mischabsetzer,
- Füllkörperkolonnen,
- gepulste Siebbodenkolonnen und
- Zentrifugalextraktoren

zum Einsatz gekommen.

Nicht durchgesetzt haben sich die gepulsten und ungepulsten Füllkörperkolonnen, da durch ihre relativ geringe Leistungsfähigkeit bedingt, zu große Bauhöhen erforderlich sind.

Für die Tritiumwäsche werden derzeit nur der Mischabsetzer und die gepulste Siebbodenkolonne diskutiert.

2.1 Mischabsetzer

Für Mischabsetzer liegen umfangreiche Erfahrungen mit Durchsätzen bis zu einigen Tonnen pro Tag vor.

Die hauptsächlichen Merkmale der Mischabsetzer sind:

- träge Dynamik,
- Flexibilität,
- großer Wirkungsgrad,
- gute Vorausberechnung,
- lange Einstellzeit,
- Akkumulation von Niederschlägen,
- schwierige Regelung,
- Wahl der dispersen Phase nicht möglich,
- mechanisch bewegte Teile,
- große Verweilzeit,
- großer Flächenbedarf,
- ungünstige Form für Modultechnik.

Bei der Abtrennung des Tritiums ergibt sich durch die zusätzliche Forderung der Minimierung an TSS-Lösung die verfahrenstechnische Schwierigkeit des extremen Flußverhältnisses.

Eine Lösung dieser Problematik kann durch den Einsatz eines Holley-Mott-Mischabsetzers (Abb. 4) erreicht werden. Durch eine interne Rückführung der wässrigen Phase wird in der Mischkammer ein Mischungsverhältnis von 1 angestrebt.

2.2 Gepulste Siebbodenkolonnen

Bei Extraktionskolonnen (Abb.5) werden die extremen Flußverhältnisse durch entsprechend kleine Strömungsgeschwindigkeiten der kontinuierlichen Phase realisiert. Weitere charakteristische Eigenschaften pulsierender Siebbodenkolonnen sind:

- kurze Verweilzeit der dispersen Phase,
- große Durchsätze,
- unempfindlich gegen Dichteschwankungen,
- nur eine Phasengrenzfläche,

- Wahl der dispersen Phase möglich,
- keine mechanisch bewegten Teile,
- kleiner Flächenbedarf,
- günstige Form für Modultechnik,
- stark schwankender Wirkungsgrad.

Die Wirksamkeit wird dabei durch folgende Parameter wesentlich bestimmt:

Geometrieparameter

- Siebbodenabstand,
- Lochdurchmesser,
- freie Querschnittsfläche,
- Lochform,
- Kolonnendurchmesser.

Betriebsparameter

- Durchsatz,
- Phasenverhältnis,
- Pulsfrequenz,
- Pulsamplitude,
- Pulsform.

Stoffwerte

- Grenzflächenspannung,
- Dichteunterschied,
- Viskosität.

Verantwortlich für die Auswirkungen auf den Stoffübergang sind die Einflüsse der o. g. Parameter auf

- Tropfengrößenverteilung,
- Hold up,
- Flutpunkt und
- Rückvermischung.

Verglichen mit den Mischabsetzern, sind gepulste Siebbodenkolonnen schwieriger zu berechnen und auf große Maßstäbe zu übertragen.

B Allgemeine Beschreibung der Anlage

Der Pulskolonnenteststand PUSTA ist eine Versuchsanlage und dient zur Erzielung von Versuchsergebnissen, die eine Beschreibung der Fluidodynamik und des Stoffübergangs in gepulsten Siebbodenextraktionskolonnen erlauben. Erstes Versuchsziel ist die Aufstellung von Korrelationsgleichungen und Modellen, die eine Auslegung der Kolonnen für große Wiederaufarbeitungsanlagen und eine Optimierung im Hinblick auf den Stoffaustausch und die Betriebssicherheit ermöglichen. Im wesentlichen sollen folgende Versuche durchgeführt werden:

Bestimmung von

- Hold-up, Tropfengröße, Tropfengrößenverteilung,
- Rückvermischungskoeffizienten und
- Stoffdurchgangszahlen

in Abhängigkeit von

- Pulsationsenergie,
- Flußverhältnis,
- spezifischem Durchsatz,
- Kolonnengeometrie und
- Temperatur.

3 Verfahrensbeschreibung

Die Verknüpfung der Einzelkomponenten und Verfahrensströme sind im Verfahrensfließbild dargestellt (Abb. 6). Die zum Ansetzen der Prozeßmedien benötigten Lösungen werden vom Tanklager bzw. vom Uranextraktionszyklus UEZ bezogen und in den Ansetzbehältern mit mechanischen Rührern homogenisiert. Verbrauchte Lösungen werden an den entsprechenden Schnittstellen zur Wiederaufarbeitung an den UEZ oder an die Hauptabteilung Dekontaminationsbetriebe HDB abgegeben.

3.1 Kreislauf der wässrigen Phase

Frische wässrige Chemikalien werden vom UEZ im Behälter BB 016 übernommen und im Vorlagebehälter BB 011 gemischt. Die wässrige Phase wird dann in Behälter BB 011, BB 012 oder BB 013 gelagert und kann mit der Pumpe AP 150 in jeden anderen Behälter gefördert werden. Mit der Pumpe AP 108 werden über den Wärmetauscher BC 110 wahlweise die Kolonnen BE 001 oder BE 002 versorgt. Der Auslauf der wässrigen Phase erfolgt am Fuß der Kolonnen und gelangt über die Meßbehälter BB 014/015 in den Sammelbehälter BB 001 oder in den Vorlagebehälter BB 013 zurück.

3.2 Kreislauf der organischen Phase

Die organische Phase wird in den Behältern BB 023 und BB 024 im feuergeschützten Raum FGR gelagert und bei Bedarf mit der Pumpe AP 206 in die Vorlagebehälter BB 021 und BB 022 gefördert. Mit der Pumpe AP 222 wird die organische Phase über den Wärmetauscher BC 230 und den Pufferbehälter BB 025 alternativ in die beiden Kolonnen eingespeist. Der Auslauf der organischen Phase erfolgt am Kopf der Kolonnen und wird über die Meßbehälter BB 026/027 in den Vorlagebehälter BB 022 zurückgeführt. Zur Lagerung wird die organische Phase mit der Pumpe AP 250 über den Kühler BC 250 zum FGR zurückgefördert.

4 Apparatebeschreibung und Auswahl

4.1 Allgemeine Richtlinien und Spezifikationen

Für die Anlage gelten die Bestimmungen und Vorschriften des konventionellen Chemieanlagenbaues mit den Einschränkungen, die sich aus der Berücksichtigung des § 3 der Strahlenschutzverordnung ergeben. Die für die Technikumshalle zur Komponentenerprobung TEKO erarbeiteten "Technischen Liefer- und Abnahmebedingungen" TLA wurden weitgehend angewendet.

4.1.1 Werkstoffe und Korrosionsfragen

Während des Betriebes kommen die Komponenten des Systems im Temperaturbereich von 20 bis 60 ° C mit Prozeßlösung in Berührung. Alle Apparate, Rohrleitungen und Komponenten wurden, soweit sie nicht aus Gründen der Verfahrenstechnik oder Korrosion aus anderen Materialien hergestellt werden mußten, aus den Werkstoffen 1.4306, 1.4541 oder 1.4571 gefertigt. Als Dichtungsmaterial wurde vorzugsweise Polytetrafluorethylen verwendet.

4.1.2 Auslegungskriterien

Alle Apparate und Behälter, mit Ausnahme der Wärmeaustauscher, sind an ein Entlüftungssystem angeschlossen. Bei einem Störfall können maximal nur einige mm WS Überdruck auftreten. Durch Überläufe und Niveaumessung mit Warnanzeige kann das Überschreiten eines maximalen Füllstandes in den Behältern ausgeschlossen und damit ein Eindringen von Prozeß- und Abfall-Lösungen in das Entlüftungssystem verhindert werden.

4.2 Technische Daten der wesentlichen Apparate und Einrichtungen

4.2.1 Behälter

Alle Behälter sind bezüglich ihrer Dimensionierung weitgehend standardisiert und entsprechen im wesentlichen DIN 28105. Sie sind ausgestattet mit den verfahrenstechnisch erforderlichen Zu- und Ablaufstutzen, Probenahme-systemen und den erforderlichen meß- und regelungstechnischen Einrichtungen. In Tabelle 1 sind alle Behälter der PUSTA aufgelistet.

Tabelle 1 : B E H Ä L T E R

EKS-Nr.	Benennung	Inhalt m ³	wäßr.	org.	Uran	Bemerkung
BB 001	Abfallbehälter	5,3	x	x	x	
BB 011	Vorlagebehälter	1,5	x		x	Rührwerk
BB 012	Vorlagebehälter	1,5	x		x	Rührwerk
BB 013	Vorlagebehälter	1,5	x		x	
BB 014	Meßbehälter	0.008	x		x	
BB 015	Meßbehälter	0.036	x		x	
BB 016	Zulaufbehälter	0.125	x		x	
BB 021	Vorlagebehälter	1,5		x	x	
BB 022	Vorlagebehälter	1,5		x	x	
BB 023	Ansatzbehälter	7.45		x	x	Rührwerk/FGR
BB 024	Ansatzbehälter	7.45		x	x	Rührwerk/FGR
BB 025	Zulaufbehälter	0.01		x	x	
BB 026	Meßbehälter	0.086		x	x	
BB 027	Meßbehälter	0.385		x	x	
BB 030	Druckluftbehälter	0.27				
BB 031	Pulsluftbehälter	0.462				
BC 110	Vorwärmer		x		x	
BC 230	Vorwärmer			x	x	
BC 250	Kühler			x	x	

4.2.2 Rohrleitungen und Armaturen

Rohrleitungen

Die für die Förderung der am Prozess beteiligten Medien vorgesehenen Rohrleitungen sind alle in Edelstahl (Werkstoff 1.4306) ausgeführt. Die Rohrleitungen sind im allgemeinen miteinander verschweißt. Lösbare Verbindungen wurden weitgehend nach DIN 2632 und die Dichtflächen (V14/R14) nach DIN 2614 ausgeführt. Das System von Rohrleitungen und Behältern ist bis auf die wenigen notwendigen Zu- und Abgänge ein völlig geschlossenes System, aus dem die Medien und Produktströme nur in der

vorgesehenen Weise austreten können. Rohrkrümmer wurden bis NW 25 mit $R > 5 D$ gebogen. Bei größeren Nennweiten wurden Einschweißbögen verwendet. Außerdem wurden T-Stücke und Reduzierungen nach DIN 2615/2616 eingebaut. Die Leitungen sind nach dem WIG-Verfahren in mindestens 2 Lagen verschweißt. Nach der Montage wurde das Leitungssystem gebeizt und mit vollentsalztem Wasser gereinigt.

Armaturen

Soweit nicht verfahrenstechnische Anforderungen dagegensprechen wurden als Auf-Zu-Ventile Kugelhähne eingesetzt (Dichtheit nach außen von 10^{-3} Torr l/s). Als Dichtungsmaterial wurde PTFE verwendet. Die Hähne sind eingeschweißt, in einzelnen Fällen eingeflanscht. Der größte Teil der Hähne hat einen pneumatischen Antrieb, so daß sie von der Warte aus gesteuert werden können.

4.2.3 Fördereinrichtungen

Zur Förderung der Medien werden magnetangetriebene Kreiselpumpen und Dosierpumpen eingesetzt. Tabelle 2 enthält die wesentlichsten Daten der Pumpen.

Tabelle 2 : P U M P E N

EKS-Nr.	Medium	Fördermenge l/h	Förderhöhe m
AP 108	wässrige Phase	2 - 250	20
AP 150	wässr./org. Phase	6000	24
AP 206	organische Phase	8000	36
AP 222	organische Phase	100 - 6000	24
AP 250	organische Phase	6000	36
AP 290	wässr./org. Phase	250	20

4.2.4 Extraktionseinrichtungen

Pulskolonnen

Die Pulskolonnen mit 100 und 210 mm Durchmesser sind teilweise aus Glas, teilweise aus Edelstahl gefertigt (Abb. 7). Eine Edelstahlkolonne von ca. 350 mm Durchmesser befindet sich z.Zt. in der Planung. Tabelle 3 enthält die wichtigsten Auslegungsdaten und Dimensionen.

Pulseinheit

Zur Erzeugung des Pulses wird Druckluft über einen Pufferbehälter (BB 031) und eine steuerbare Ventileinheit in die Pulsrohre der Kolonnen geführt anschließend in das Abluftsystem entspannt (Abb.8). Die Pulsluftventile werden durch einen Taktgeber gesteuert, der gleichzeitig die Triggersignale für die Datenerfassungsanlage liefert.

4.2.5 Wärmeaustauscher

Die Prozeßmedien werden mit Hilfe von Wärmeaustauschern auf die notwendige Arbeitstemperatur (30 - 60 ° C) erwärmt. Als Heizmedium dient Warmwasser von maximal 80 ° C. Warme Prozessmedien werden nach ihrer Verwendung, soweit notwendig, im Kühler BC 250 wieder auf Raumtemperatur abgekühlt.

4.2.6 Auffang- und Bodenwannen

Das Gerüst ist in einer säurefesten Bodenwanne angeordnet. Zusätzlich sind unterhalb von Armaturen, Pumpen, Behältern und lösbaren Verbindungen im Gerüst Tropfwannen aus Edelstahl angebracht, deren Abläufe zusammengefaßt und in den Sumpf der Bodenwanne geführt werden. Die Behälter im feuergeschützten Raum sind in einer Bodenwanne aus Edelstahl aufgestellt.

Tabelle 3 : P U L S K O L O N N E N

	BE 001	BE 002
<u>Durchsätze l/h</u>		
wässrig	2 - 250	10 - 250
organisch	100 - 600	600 - 3000
<u>Kolonnendaten</u>		
Durchmesser mm	100	210,5
Gesamtlänge mm	8000	8500
Betriebsart	wässrig kontinuierlich	
Länge der Stahlschüsse mm	600	600
Anzahl der Stahlschüsse	8	8
Länge der Glasschüsse mm	200	200
Anzahl der Glasschüsse	8	8
wirksame Länge mm	6400	6400
wirksames Volumen l	50	220
ober. Dekanterdurchmesser mm	225	600
Dekantervolumen l	30	200
Pulsrohrdurchmesser mm	25	50
hydraulische Übersetzung	16 : 1	17 : 1
Betriebstemperatur ° C	10 - 60	10 - 60

5 Prozessüberwachung und -steuerung

Die Steuerung und Überwachung der PUSTA erfolgt im wesentlichen mit Hilfe einer frei programmierbaren Steuerung von der zentralen Warte aus, die im Apparategerüst der Halle 1 (Bühne 3.800) eingerichtet wurde. Der Testcharakter der Anlage macht es jedoch erforderlich, daß Probenahmen und örtliche Eingriffe möglich sind. In den Tafelfeldern der Warte sind die zur Steuerung und Überwachung erforderlichen Anzeigeninstrumente (Linien-schreiber und Punktdrucker, Regler mit Leitgeräten) und die Bedienungselemente weitgehend prozeßkonform angeordnet. Auf den einzelnen Bühnen

sind Rangierverteiler, Alarmverarbeitung, Zusatzgeräte u.ä. in separaten Schränken montiert. In den R & I - Fließbildern (Abb. 9 - 12) sind die meß- und regelungstechnischen Einrichtungen ausführlich dargestellt.

6 Aufstellung des Teststandes

Der Teststand ist in Halle 1 der TEKO (J-L/6-8) auf einer Grundfläche von ca. 40 m² im fünfgeschossigen UEZ Stahlgerüst errichtet (Abb. 13). Wesentliche Bestandteile der Anlage sind:

- zwei gepulste Extraktionskolonnen aus Edelstahl mit Zwischenstücken aus Glas,
- fünf Behälter zur Lagerung und zum Ansetzen von Prozeßchemikalien,
- ein Sammelbehälter für Abfallösungen,
- zwei Vorratsbehälter für brennbare Lösungen (aus Gründen der Sicherheit im separaten feuergeschützten Raum aufgestellt).

7 Sicherheitsbetrachtung

Der Pulskolonneteststand PUSTA ist eine in sich geschlossene Versuchsanlage, die mit abgereichertem Uran betrieben wird. Es treten daher keine Kritikalitätsprobleme auf, und die Zugänglichkeit zu allen Apparaten und Geräten ist gewährleistet. Anstelle von Tritium wird das inaktive Isotop Deuterium verwendet. Bei der Planung und der Ausführung wurde das Gutachten und Konzept der Technikumshalle für Komponentenerprobung TEKO (Technischer Bericht Nr. 116-589-6.1.01; TÜV Baden) und die gutachterliche Stellungnahme zum Verfahren und den verfahrenstechnischen Einrichtungen des Pulskolonneteststandes PUSTA (Technischer Bericht Nr. 116-589/3-6.1; TÜV Baden) berücksichtigt.

7.1 Komponenten

Alle Behälter und Apparate sind mit Anschlüssen für Überlauf und Entlüftung versehen. Die Überläufe sind zusammengefaßt und an einen gemeinsamen Überlaufbehälter (BB 001) angeschlossen. Abluftleitungen sind zusammengefaßt und mit dem Abluftsystem des UEZ verbunden. Sollten ein oder mehrere Behälter derart überfüllt werden, daß Prozeßmedien in die Behälterentlüftung gelangen, so bleibt das ohne sicherheitstechnische Auswirkungen. Beim Zurücklaufen in andere Behälter oder Überlaufen in den Auffangbehälter können zwar Phasengemische auftreten, die aber bedeutungslos für die Sicherheit der Anlage sind. Vor der Entsorgung der Anlage durch die HDB oder den UEZ werden evtl. vorhandene Gemische getrennt und nur rein organische oder rein wässrige Phasen abgegeben. Zur Thermostatisierung der Prozeßmedien (30 - 60 ° C) werden Wärmetauscher mit Warmwasser (max. 80 ° C) betrieben. Die Temperaturen werden überwacht und führen bei Überschreitung der zulässigen Werte zum Absperren des Warmwasserzulaufs. Die Förderung der Prozeßmedien erfolgt mit mechanischen Pumpen, die in Auffangwannen aufgestellt sind.

7.2 Hilfs- und Nebenanlagen

Für die Versorgung des Teststandes mit Druckluft, Heiz- und Kühlwasser und zur Abgasreinigung sind entsprechende Anschlüsse an den UEZ vorhanden.

7.3 Qualitätssicherungsmaßnahmen

Grundlage für die Qualitätssicherungsmaßnahmen sind die Technischen Liefer- und Abnahmebedingungen für die TEKO. Es sind dies die TLA für

- Behälter und Apparate,
- Armaturen,
- Rohrleitungen,
- Behälter und Apparate aus Titan und Titanlegierungen,

- Bodenwannen, Auffangwannen und Tropfwannen,
- Spaltrohrmotorpumpen,
- Rührwerke,
- Kreisel-, Dosier- und Tauchpumpen
- Isolationsarbeiten,
- Anstricharbeiten,
- Beizarbeiten.

7.4 Leittechnik

Die leittechnischen Einrichtungen der PUSTA dienen der Führung des Prozeßablaufes und der Überwachung und Steuerung der Anlage zur Vermeidung von Störfällen. Alle Apparate und Behälter sind mit Füllstandsmeldeeinrichtungen versehen, die beim Erreichen der eingestellten Grenzwerte ein Warnsignal auslösen. Bei einigen Komponenten ist die Überwachung mehrfach vorhanden. Beim Versagen von Niveaumeldern werden etwa anfallende Überlaufmengen im Überlaufbehälter gesammelt. Auffang- und Bodenwannen sind zur Leckerkennung mit Leckdetektoren ausgerüstet. Alle Steuer- und Regeleinrichtungen wurden so ausgelegt, daß die PUSTA bei Ausfall der Hilfsenergien in einen sicheren Zustand übergeht.

C Meßverfahren und erste Ergebnisse

Nach Inbetriebnahme des Pulskolonnenteststandes PUSTA wurden zunächst an der Kolonne mit 210 mm Durchmesser erste Betriebserfahrungen gewonnen, die im folgenden zusammengefaßt dargestellt sind. Die Instrumentierung der Kolonne und die Bodengeometrie sind aus Abbildung 14 ersichtlich.

8 Trennschichtmessung und -regelung

Die Lage der Trennschicht im oberen Dekanter wird mit einer kapazitiven Sonde detektiert. Da die wässrige Phase (ca. 3 molare Salpetersäure) eine relativ hohe Leitfähigkeit und die organische Phase (30 % Tributylphosphat in Dodekan) eine sehr niedrige Dielektrizitätskonstante hat, ergeben sich einige Schwierigkeiten, die aber bei Verwendung einer vollisolierten Sonde und durch Wahl einer geeigneten Meßfrequenz mit entsprechendem Meßumformer zu vermeiden sind. Das Ausgangssignal der Trennschichtmessung wird für die stetige Regelung des Auslaufs der wässrigen Phase am Kolonnenfuß weiterverarbeitet. Der Wirkschaltplan für Messung und Regelung bei der Kolonne JBB 60 BE 002 ist in Abbildung 15 wiedergegeben.

Der auslaufende wässrige Flüssigkeitsstrom wird durch Registrierung des Füllstandes in den beiden Meßbehältern BB 014/015 kontrolliert und kann zur Beurteilung der Stabilität des Betriebszustandes herangezogen werden.

9 Pulsationshub

Wie bereits in Abschnitt 4.2.4 Abb. 8 erläutert, wird die Pulsfrequenz in den Kolonnen durch einen Taktgeber vorgegeben. Der sich dazu einstellende Pulshub hängt neben den Stoffdaten der beiden Phasen und dem Hold up vor allem von der Kolonnengeometrie ab und kann durch die Wahl des Vordrucks im Pulsluftbehälter BB 031 verändert werden.

Der Verbrauch an Pulsluft und damit auch die Abluftmenge, sowie der maximal erreichbare Pulsationshub sind wesentlich von der Auslegung der Pulsrohre

und der Druckluftzuleitungen abhängig. Ausgehend von der Überlegung, daß bei einem pneumatischen Pulsator der Raum zwischen der Flüssigkeitsoberfläche im Pulsrohr und den beiden Steuerventilen bei jedem Takt einmal auf Druck gebracht und wieder entspannt werden muß, gelangt man zwangsläufig zu dem Schluß, dieses Volumen zu minimieren. Bei der Konstruktion der Kolonnen für den Teststand PUSTA wurde daher von der industriellen Praxis (Pulsrohre mit großem Durchmesser, d.h. hydraulisches Verhältnis = Kolonnendurchmesser zu Pulsrohrdurchmesser < 10) abgegangen. Das hydraulische Verhältnis wurde z.B. bei der Kolonne mit 210 mm Durchmesser im unteren Bereich des Pulsrohres auf ca. 18 und im oberen Teil auf ca. 71 erhöht. Weiterhin wurden die Pulsluftleitungen von den Steuerventilen zum Pulsrohr möglichst kurz und nur in Nennweite 25 ausgeführt. Das Ergebnis war, daß bei einer Frequenz von 1,5 1/s ohne Schwierigkeiten ein Pulshub von mehr als 15 mm bei einem Luftverbrauch von maximal 20 Nm³/h erzielt wurde. Vergleichbare Industriekolonnen erreichen dagegen nur einen Hub von ca. 5 mm bei 10 bis 50-fach höherem Luftverbrauch.

Die Messung des Pulshubes in der Kolonne war nach den bisher üblichen Methoden nur näherungsweise möglich und mit Unsicherheiten behaftet. Dies liegt vor allem daran, daß zwar der Hub im Pulsrohr (bei mechanischen Pulsatoren die Amplitude des Pulsator Kolbens) hinreichend genau meßbar ist, aber die Flüssigkeiten in den Zu- und Abläufen mitpulsieren. Dadurch geht ein undefinierter Teil des Pulsatorvolumens für die Amplitude in der Kolonne "verloren". Die häufig diskutierten Versuche zur Messung der wahren Amplitude durch Beobachtung einzelner Tropfen, Messungen an der Phasengrenzfläche im Dekanter und Näherungsrechnungen unter Einbeziehung der Druckverluste in den Zu- und Ablaufleitungen lieferten keine befriedigenden Ergebnisse.

Für den Pulskolonnenteststand PUSTA wurde daher ein Verfahren entwickelt, das die Messung des wahren Pulshubes in der Kolonne ermöglicht. Es sind hierbei nur einige wenige Eichmessungen bei geschlossenen Zu- und Abläufen nötig. Abbildung 16 zeigt das Eichdiagramm für die Kolonne mit 210 mm Durchmesser und das Stoffsystem 3 molare Salpetersäure - 30 % TBP in Dodekan, wobei die Hubfrequenz im Bereich von 0.5 bis 2 1/s variiert wurde. Es wird deutlich, daß der Meßumformer zwischen 3 und 65 mm Hub ein lineares

Signal liefert. In Abbildung 17 ist der sich einstellende Pulshub in Abhängigkeit von den Ventilsteuerzeiten des Pulssteuergerätes (v. Pkt. 4.2.4) bei einem Vordruck von 0.5 bar dargestellt.

10 Flutpunkt

Unter 'Fluten' versteht man den Zusammenbruch des Gegenstroms in der Kolonne durch zu große Durchsätze an kontinuierlicher und disperser Phase. Diese Überlastung kann durch zwei Phänomene ausgelöst werden. Die disperse Phase kann entweder durch ungenügende Pulsation nicht mehr vollständig durch die Böden gefördert werden oder sie wird durch zu starke Pulsation in sehr kleine Tropfen zerteilt, deren Relativgeschwindigkeit kleiner ist als die Strömungsgeschwindigkeit der kontinuierlichen Phase. Als Folge tritt ein 'Kurzschluß' der beiden Ströme auf, d.h. die Phasen treten aus den falschen Kolonnenausläufen aus.

Darüber hinaus ist bei höheren Werten von $a \cdot f$ ein instabiler Dispersionsbereich zu beobachten, bei dem die disperse Phase verstärkt koalesziert und die Kolonneneinbauten durchwandert, ohne in kleine Tropfen zerteilt zu werden.

Für die Berechnung der Belastungsgrenzen sind in der Literatur eine Vielzahl von Arbeiten erschienen [9 - 27], die aber hier nicht näher diskutiert werden sollen.

Die veröffentlichten Gleichungen haben alle einen relativ engen Gültigkeitsbereich und führen bei Extrapolation zu nicht verwertbaren Ergebnissen. Die bisher verlässlichste Aussage liefert die von Berger [28] korrigierte Mc Allister-Gleichung [20, 21]:

$$\begin{aligned} \ln \frac{v_d + v_c}{\Delta c + \Delta d} = & -3.741 + 0.2568 \ln W - 0.07194(\ln W)^2 \\ & + 0.006191(\ln W)^3 - 1.034 \ln K - 0.09096(\ln K)^2 \\ & - 0.0008898(\ln K)^3 + 0.1424 \ln(v_c/v_d) - 0.1807 \ln(a/h_b) \\ & + 0.07198 \ln W/\ln K. \quad (\text{_____ : fehlt in [20,21]}) \end{aligned}$$

mit dem Widerstandskoeffizient

$$w = \frac{\Delta \rho d_L m^2 g}{\rho_c p_M^2}$$

und der Kapillarzahl

$$K = \frac{\eta_c p_V}{m \sigma}$$

Die Größen Δ_c , Δ_d , p_M^2 und p_V beschreiben den Phasentransport durch die Pulsation in der Kolonne.

Erste Untersuchungen zeigen, daß die Gleichung bei Anwendung auf Flußverhältnisse wie sie in T-Waschkolonnen angestrebt werden, zu niedrige Werte liefert.

Zur Bestimmung des Flutpunktes wurde neben der visuellen Beobachtung eine Druckdifferenzmessung zwischen dem oberen und dem unteren Dekanter herangezogen (vgl. Abb. 14). Gelangt man von einem stabilen Betriebspunkt zu einem instabilen, so steigt die Druckdifferenz stetig an ohne einen oberen Grenzwert zu erreichen.

Abbildung 18 zeigt die Flutpunktskurve der Kolonne für uranfreie und Abbildung 19 für uranbeladene Phasen.

Die maximale Flächenbelastung liegt bei beiden Kurven im Bereich von 350 l/dm²h. In uranfreier Phase liegt das Maximum bei einem Produkt aus Hub und Frequenz von ca. 10 mm/s, wobei die Kolonne ohne Pulsation noch bis zu relativ hohen Belastungen von ca. 300 l/dm²h zu betreiben ist. Darüber hinaus ist ein sehr ausgedehnter instabiler Betriebsbereich zu beobachten, der aber meist nicht zum Fluten der Kolonne, sondern nur teilweise zur Phasenumkehr führt. In uranbeladener Phase ist das Maximum der Flutpunktskurve stärker ausgeprägt und zu etwas niedrigeren Werten (ca. 7 mm/s) hin verschoben.

11 Hold-up

Der Hold-up kennzeichnet den relativen Anteil an disperser Phase im Extraktor. Er geht wesentlich in die für den Stoffübergang zur Verfügung stehende spezifische Grenzfläche ein.

Für die Berechnung sind in der Literatur [15, 18, 19, 24, 26, 29-40] im wesentlichen drei Modellvorstellungen zu finden:

- Parabelförmige Ansätze zur Beschreibung des Hold-up in Abhängigkeit von der Pulsation, wobei das Minimum der Funktion den Übergang vom Mixer-Settler-Bereich zum Dispersionsbereich kennzeichnet.
- Potenzproduktansätze mit empirisch bestimmten Exponenten, in denen der Hold-up in Abhängigkeit vom Durchsatz an disperser Phase und der eingetragenen Pulsationsenergie angegeben wird.
- Modelle der Tropfenschwambewegung.

Die Ansätze sind vorwiegend Funktionen der Pulsationsenergie, dem Durchsatz an disperser Phase, der Stoffwerte und der Kolonnengeometrie. Im allgemeinen wird die Strömungsgeschwindigkeit der kontinuierlichen Phase als unbedeutend angesehen. Erste Erfahrungen zeigen jedoch, daß bei großen Flußverhältnissen in der Nähe der Flutungsgrenze der Hold-up durch Geschwindigkeitsänderungen in der kontinuierlichen Phase beeinflußt werden kann.

Zur Messung des Hold-up wird in der Literatur eine große Auswahl verschiedener Meßverfahren beschrieben, die aber meistens eine Störung der Fluidodynamik verursachen (Absaugen von Mischphase, Absperren der Zuläufe oder einzelner Siebböden mit nachfolgender Phasenseparation) oder die Zugabe von Fremdsubstanzen (Leuchfarbstoff) erfordern.

Für den Pulskolonnenteststand PUSTA wurde daher ein kontinuierliches und berührungsloses Verfahren ausgewählt, das eine Messung des örtlichen Hold-up über der Kolonnenhöhe ermöglicht. Es arbeitet nach dem Prinzip der radiometrischen Dichtemessung, bei der die Absorption von Gammastrahlen durch das zu untersuchende Material ausgewertet wird. Abbildung 14 zeigt die in der Höhe verstellbare Anordnung der Strahlenquelle (Cs-137) und des Szintillationsdetektors.

Erste Ergebnisse sind in den Abbildungen 21 und 22 dargestellt. Es wird deutlich, daß bei niedrigen Pulsationsgeschwindigkeiten der Hold-up über der Kolonnenhöhe zunimmt, bei hohen af -Werten aber ein Maximum durchläuft. Beim Übergang vom stabilen in den instabilen Dispersionsbereich sind am

Kolonnenfuß ein sehr hoher Hold-up und über der Kolonnenhöhe eine deutliche Abnahme zu beobachten.

12 Rückvermischung

In technischen Apparaten läßt sich ein Strömungsprofil, wie es bei der Pfropfenströmung vorausgesetzt wird, nur schwer realisieren. Diese Abweichung führt zu einer verbreiterten Verweilzeitverteilung der einzelnen fluiden Elemente.

Diese Vermischungseffekte werden in der kontinuierlichen Phase verursacht durch

- molekulare Diffusion (axial und radial),
- konvektiven Austausch (axial und radial).
- Taylor-Diffusion
- Mitreißen von kontinuierlicher Phase durch Tropfen

und in der dispersen Phase durch

- unterschiedliche Aufstiegsgeschwindigkeit der Tropfen,
- Mitreißen von Tropfen durch die kontinuierliche Phase.

Durch die Vermischung in den beiden Phasen wird bei der Extraktion das treibende Konzentrationsgefälle verkleinert und die Wirksamkeit des Extraktors verringert sich. Bei hohen Flußverhältnissen ist vor allem in der kontinuierlichen Phase eine erhöhte Rückvermischung zu erwarten, die bei Zunahme des Kolonnendurchmessers weiter zunimmt.

Zur Beschreibung dieser Effekte in Gegenstromapparaten sind verschiedene Modellvorstellungen bekannt.

Das Dispersionsmodell beruht auf der Massenbilanz eines infinitesimal kleinen Volumelements (Abb. 20), wobei die Vermischung durch einen der Diffusion analogen Parameter beschrieben wird.

Die verschiedenen Mischzellenmodelle basieren auf einer mathematischen Zerlegung des Apparates in eine Anzahl von ideal durchmischten Volumelementen. Kompliziertere Modelle lassen dann noch zusätzlich einen Rückfluß zwischen den einzelnen Mischzellen zu.

Zur Messung und Auswertung der Rückvermischung wird auf die sehr umfangreiche Literatur verwiesen [19, 31, 36, 40-56].

Im Pulskolonnenteststand PUSTA sollen die Vermischungsphänomene mit Hilfe von Radiotracern gemessen werden, was in einer weiteren Arbeit getrennt beschrieben werden soll.

13 Tropfengrößenverteilung

Die Tropfengrößenverteilung hat erhebliche Auswirkungen auf die Fluidodynamik und auf den Stoffübergang einer pulsierten Siebbodenkolonne. Wesentliche Einflußgrößen sind neben der Pulsationsenergie und der Siebbodengeometrie, die Grenzflächenspannung, die Viskosität und das Benetzungsverhalten der Siebböden.

Die meisten der bisher veröffentlichten Arbeiten [11, 18, 19, 26, 36, 40, 57-60] befassen sich weitgehend mit der Berechnung des mittleren Tropfendurchmessers (Sauterdurchmesser d_{32}) mit Hilfe von Korrelationsgleichungen.

Zur Messung der Tropfengrößenverteilung wurden für den Pulskolonnenteststand PUSTA unter anderem folgende Verfahren diskutiert: Auswertung von Photographien, Fernsehbildern und Computertomographien und die Absaugsonde nach Pilhofer. Da die automatischen Auswerteverfahren für Bilder bisher noch sehr wenig entwickelt sind, wurde die Sondenmeßtechnik nach Pilhofer ausgewählt. Die prinzipielle Funktionsweise ist in Abbildung 23 dargestellt. Mit einer Glaskapillare, die vorn leicht trichterförmig erweitert ist, werden kontinuierliche Phase und Tropfen aus der Kolonne abgesaugt. Die Tropfen wandern in annähernd zylindrischer Form durch die Kapillare, die von der eigentlichen Meßsonde umschlossen wird. Sie besteht im wesentlichen aus zwei Lichtschranken die aus je einem Glühlämpchen und einem Phototransistor gebildet werden. Bewegt sich ein Tropfen durch die Sonde, ergeben sich zwei zeitlich versetzte Spannungsverläufe, aus denen die Strömungsgeschwindigkeit und das Tropfenvolumen berechnet werden können. Das Verfahren läßt sich gut automatisieren und liefert relativ schnell die Daten. Abbildung 24 zeigt beispielhaft die geplotteten Ergebnisse einer Messung. Bei organisch disperser Betriebsweise nimmt der Sauterdurchmesser

mit zunehmender Kolonnenhöhe zunächst deutlich ab, um dann am Kopf der Kolonne wieder leicht anzusteigen (Abb. 25). Trägt man die Sauterdurchmesser über den zugehörigen Hold-up-Werten auf zeigt sich ein eindeutiger Zusammenhang (Abb. 26).

14 Meßdatenerfassung

Um die große Zahl der anfallenden Meßdaten auswerten und dokumentieren zu können wurden verschiedene Datenerfassungssysteme und Kleinrechner über ein Rechnernetzsystem mit der Großrechneranlage des KfK verbunden. Abbildung 27 zeigt die derzeit realisierte Konfiguration. Über die Kanäle 1 bis 64 werden die analogen Signale digitalisiert und in der PDP-11/34 abgespeichert. Die Kanäle 65 bis 72 werden von einem PSI 80-Rechner zur Messung der Tropfenverteilungen ausgenutzt, die unabhängig vom PDP-Rechner abläuft. Nach Ablauf der Erfassungsphase, werden die Daten mit 1 kbyte/s zur Großrechneranlage übertragen und dort weiterverarbeitet.

D Anhang

Literaturverzeichnis

- [1] Smith, J. M.; Gilbert, R. S.: Trans. Am. Nucl. Soc. 14 (1971) 160-161
- [2] Locante, J.: Trans. Am. Nucl. Soc. 14 (1971) 161-162
- [3] Grossmann, L. N.; Hegland, J. O.: Report GEAP-12205 (1971)
- [4] Goode, J. H.; Cox, C. M.: Report ORNL-TM-2994 (1970)
- [5] Neeb, K. H.; Karnath, G.; Richter, H.; Schweighofer, W.; Stöckert, H.: J. Radioanal. Chem. 32 (1967) 523-531
- [6] Ray, J. W.: Reactor and fuel processing technology 12 (1968/69) 19-26
- [7] Neeb, K. H.: Zum Verhalten von Spaltprodukten im Brennstoff von Leichtwasserreaktoren. Thiemig Taschen-Bücher Bd. 65. Verlag Karl Thiemig 1978.
- [8] Sameh, A.: Private Mitteilung
- [9] Gayler, R.; Roberts, N. W.; Pratt, H. R. C.: Liquid-liquid extraction: Part IV. A further study of hold up in packed columns, Trans. Instn. Chem. Engrs. 31 (1953) 57-68.
- [10] Thornton, J. D.: Recent developments in pulsed column techniques, Chem. Eng. Prog. Symposium Series 50 (1954) 13, 39-52.
- [11] Thornton, J. D.: The effect of pulse wave-form and plate geometrie on the performance and throughput of a pulsed column, Trans. Instn. Chem. Engrs. 35 (1957) 316-330.
- [12] Richardson, J. F.; Zaki, W. N.: Sedimentation and fluidisation: Part I, Trans. Instn. Chem. Engrs. 32 (1954) 35-53.
- [13] Jealous, A. C.; Johnson, H. F.: Power requirements for pulse columns, Ind. Eng. Chem. 47 (1955) 6, 1159-1166.
- [14] Edwards, R. B.; Beyer, G. H.: Flooding characteristics of a pulse extraction column, AIChE J. 2 (1956) 2, 148-152.
- [15] Logsdail, D. H.; Thornton, J. D.: The effect of column diameter upon the performance and throughput of pulsed plate columns, Trans. Instn. Chem. Engrs. 35 (1957) 331-342.
- [16] Smoot, L. D.; Mar, B. W.; Babb, A. L.: Flooding characteristics and separation efficiencies of pulsed sieve-plate extraction columns, Ind. Eng. Chem. 51 (1959) 9, 1005-1010.

- [17] Konovalov, V. I.; Shtrobel, V. O.; Romankov, P. G.: Critical equations for flooding in countercurrent extraction columns, *Zh. Prikl. Khim.* 34 (1961) 9, 1966-1971. Übersetzung in *Int. Chem. Eng.*
- [18] Misek, T.: The hydrodynamic behaviour of pulsed liquid-liquid extractors. *Coll. Czechoslov. Chem. Comm.* 29 (1964) 1755-1766.
- [19] Kagan, S. Z.; Aerov, M. E.; Lonik, V.; Volkova, T. S.: Some hydrodynamic and mass transfer problems in pulsed sieve-plate extractors, *Int. Chem. Eng.* 5 (1964) 4, 656-661.
- [20] Groenier, W. S.; Mc Allister, R. A.; Ryon, A. D.: Flooding in perforated-plate pulsed extraction columns, Report ORNL-3890, Oak Ridge (1966).
- [21] Mc Allister, R. A.; Groenier, W. S.; Ryon, A. D.: Correlation of flooding in pulsed, perforated-plate extraction columns, *Chem. Eng. Sci.* 22 (1967) 931-944.
- [22] Coggan, G. C.: The scaling-up of pulsed extraction columns, Part I: Limiting throughputs, *Instn. Chem. Engrs. Symposium Series* 26 (1967) 138-144.
- [23] Klicka, V.; Cermak, J.: Zweiphasenströmung in der Pulsier-Extraktionskolonne, Teil 1, *Verfahrenstechnik* 5 (1971) 8, 320-327.
- [24] Klicka, V.; Cermak, J.: Zweiphasenströmung in der Pulsier-Extraktionskolonne, Teil 2, *Verfahrenstechnik* 6 (1972) 8, 96-105.
- [25] Berger, R.; Leuckel, W.; Wolff, D.: Untersuchungen zur Betriebscharakteristik von pulsierten Siebbodenkolonnen für Flüssig/Flüssig Extraktion, *Chem.-Ing.-Techn.* 50 (1978) 7, 544-545.
- [26] Pilhofer, T.: Grenzbelastung verschiedener Gegenstrom-Extraktionskolonnen, *Chem.-Ing.-Techn.* 51 (1979) 3.
- [27] Mersmann, A.: Zum Flutpunkt in Flüssig/Flüssig-Gegenstromkolonnen, *Chem.-Ing.-Techn.* 52 (1980) 12, 933-942.
- [28] Berger, R.: unveröffentlicht, 1979.
- [29] Cohen, R. M.; Beyer, G. H.: Performance of a pulse extraction column, *Chem. Eng. Prog.* 49 (1953) 6, 279-286.
- [30] Li, W. H.; Newton, W. M.: Liquid-liquid extraction in a pulsed perforated plate column, *AIChE J.* 3 (1957) 1, 56-62.
- [31] Sehmel, G. A.: Longitudinal mixing and hold-up studies in a pulsed sieve plate solvent extraction column, Ph. D. Diss. Univ. of Washington, Seattle (Wash.) 1961.
- [32] Sato, T.; Sugihara, K.; Taniyama, I.: The performance characteristics of pulsed perforated plate columns, *Kagaku Kogaku (Chem. Eng. Japan)* 27 (1963) 8, 583-586.

- [33] Sehmel, G. A.; Babb, A. L.: Hold-up studies in a pulsed sieve-plate solvent extraction column, *Ind. Eng. Chem. Proc. Des. Dev.* 2 (1963) 1, 38-42.
- [34] Jones, S. C.: On the behaviour of a pulsed extraction column, Ph. D. Diss. Univ. of Michigan, Ann Arbor (Mich.) 1963.
- [35] Foster, H. R.: The transient hold-up response of a pulsed sieve-plate column, Ph. D. Diss. Univ. of Washington, Seattle (Wash.) 1964.
- [36] Miyauchi, T.; Oya, H.: Longitudinal dispersion in pulsed perforated-plate columns, *AIChE J.* 11 (1965) 3, 395-402.
- [37] Bell, R. L.; Babb, A. L.: Hold-up and axial distribution of hold-up in a pulsed sieve-plate solvent extraction column, *Ind. Eng. Chem. Process Des. Dev.* 8 (1969) 3, 392-400.
- [38] Mishra, J. C.; Dutt, D. K.: Engineering study of hold-up in a perforated plate pulse column for the counter-current flow of two immiscible liquids, *Chemical Age of India* 20 (1969) 10, 845-852.
- [39] Fernandes, J. B.: Effective interfacial area and hold-up in pulsed extraction column, *AIChE Symposium Series Vol. 68 No 120* pp. 124-129.
- [40] Nemcek, M.; Prochazka, J.: Longitudinal mixing in a vibrating sieve-plate column, *Can. J. Chem. Eng.* 52 (1974) 739-749.
- [41] Mar, B. W.: Longitudinal mixing in pulsed extraction columns, Ph. D. Diss. Univ. of Washington, Seattle (Wash.) 1958.
- [42] Mar, B. W.; Babb, A. L.: Longitudinal mixing in a pulsed sieve-plate extraction column, *Ind. Eng. Chem.* 51 (1959) 9, 1011-1014.
- [43] Claybauch, B. E.: Effects of backmixing on concentration profiles in a pulse column, Ph. D. Diss. Oklahoma State Univ. 1961.
- [44] Burger, L. L.; Swift, W. H.: Back-mixing in pulse columns with particular reference to a scale-up, *US Atom. Ener. Comm. Report HW 28867*, Oak Ridge (Tenn.) 1953.
- [45] Sehmel, G. A.; Babb, A. L.: Hold-up studies in a pulsed sieve-plate extraction column, *Ind. Eng. Chem. Proc. Des. Dev.* 2 (1963) 1, 38-42.
- [46] Miyauchi, T.; Vermeulen, T.: Longitudinal dispersion in two-Phase continuous-flow operations, *Ind. Eng. Chem. Fundamentals* 2 (1962) 113-125.
- [47] Miyauchi, T.; Vermeulen, T.: Diffusion and back-flow models for two-flow axial dispersion, *Ind. Eng. Chem. Fundamentals* 2 (1962) 304-309.
- [48] Klinkenberg, A.: The concept of backmixing, *Chem. Eng. Sci.* 23 (1968) 92.
- [49] Hartland, S.; Mecklenburgh, I. C.: The concept of backmixing, *Chem. Eng. Sci.* 23 (1968) 186-187.

- [50] Rozen, A. M.; Rubezhny, Y. G.; Martynov, B. V.: Longitudinal mixing in pulsating extraction columns, *Sov. Chem. Ind.* 2 (1970) 66-73.
- [51] Novotny, P.; Prochazka, J.; Landau, J.: Longitudinal mixing in reciprocating and pulsed sieve-plate column, *Can. J. Chem. Eng.* 48 (1970) 405-410.
- [52] Böxkes, W.; Hofmann, H.: Vor- und Nachteile verschiedener Befragungstechniken zur Analyse des Mischungsverhaltens in chemischen Reaktoren, *Chem.-Ing.-Tech.* 50 (1978) 5, 345-354.
- [53] Kagan, S. Z.; Veysbeyn, B. A.; Trukhanov, V. G.; Muzychenko, L. A.: Soviet Chemical Industry 4 (1972) 4, 256-259.
- [54] Pulz, A.: Mathematische Modelle zur Analyse von Verweilzeitverteilungen, *Chem. Techn.* 26 (1974) 10, 652-654.
- [55] Kardos, J.; Pulz, A.; Schubert, P.: Darstellung und Auswertung von Verweilzeitverteilungen nach dem Zellenmodell, *Chem. Techn.* 28 (1976) 6, 329-332.
- [56] Kasipatchi Rao, K.V.; Jeelani, S. A. K.; Balasubramanian, G. R.: Backmixing in pulsed perforated plate columns, *Can. J. Chem. Eng.* 56 (1978) 120-123.
- [57] Assenov, A.; Penchev, I.: Effect of pulsing intensity upon droplet size in a plate-pulsed extraction column, *Compte Rendu de l'Academie Bulgare des Sciences* 24 (1971) 10, 1381.
- [58] Assenov, A.; Elenkov, D.; Ballinov, Y.; Penchev, I.; Stefanov, G.: Drop size determination in a vibrating extractor, *Verfahrenstechnik (Mainz)* 7 (1973) 8, 242-244.
- [59] Doulah, M. S.: An effect of hold-up on drop sizes in liquid-liquid dispersions, *Ind. Eng. Chem. Fundam.* 14 (1975) 2, 137-138.
- [60] Khemangkorn, V.; Muratet, G.; Angelino, H.: Study of dispersion in a pulsed perforated plate column, *ISEC 77 CIM Special Volume* 21 429-435.

Abbildungsverzeichnis

- Abb. 1 Verteilung von Tritium in bestrahltem UO_2 -Kernbrennstoff
- Abb. 2 Tritiumfreisetzung aus bestrahltem UO_2 -Kernbrennstoff in Abhängigkeit von der linearen Brennstableistung
- Abb. 3 Scrubsystem mit Spaltprodukt-Scrubkolonne und Tritiumscrubkolonne
- Abb. 4 Prinzip des Holley-Mott-Mischabsetzers
- Abb. 5 Prinzip der pulsierten Siebbodenkolonne
- Abb. 6 Verfahrensfließbild PUSTA
- Abb. 7 Pulskolonne (210 mm Durchmesser) der PUSTA
- Abb. 8 Steuerschema Pulssteuerung
- Abb. 9 R & I-Fließbild I
- Abb. 10 R & I-Fließbild II
- Abb. 11 R & I-Fließbild III
- Abb. 12 R & I-Fließbild IV
- Abb. 13 Übersicht Pulskolonnenteststand PUSTA
- Abb. 14 Instrumentierung der 210 mm-Kolonne
- Abb. 15 Wirkschaltplan der Trennschichtregelung
- Abb. 16 Eichkurve für Hubmessung
- Abb. 17 Hub in Abhängigkeit von den Ventilsteuerzeiten
- Abb. 18 Flutpunktskurve (uranfreie Phasen)
- Abb. 19 Flutpunktskurve (uranbeladene Phasen)
- Abb. 20 Dispersionsmodell
- Abb. 21 Hold-up-Profile (uranfreie Phasen)
- Abb. 22 Hold-up-Profile (uranbeladene Phasen)
- Abb. 23 Prinzip der Absaugsonde
- Abb. 24 Tropfengrößenverteilung

- Abb. 25 Sauterdurchmesser über der Kolonnenhöhe
- Abb. 26 Sauterdurchmesser über Hold-up
- Abb. 27 Rechnerkopplung für Datenerfassung

^3H -Atome pro g UO_2

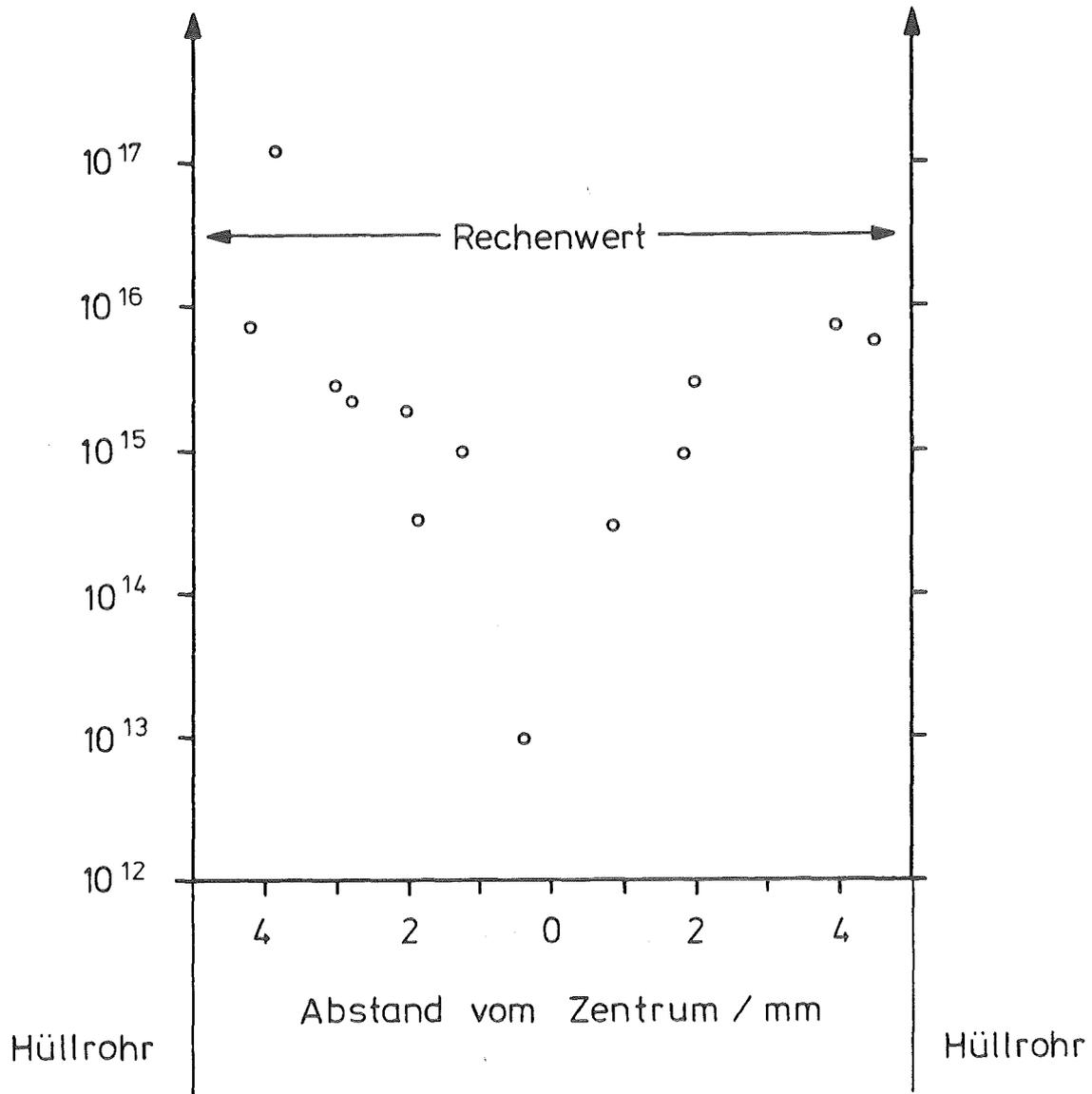


Abb. 1: Verteilung von Tritium in bestrahltem UO_2 - Kernbrennstoff (nach [5])

^3H - Freisetzungsgrad / %

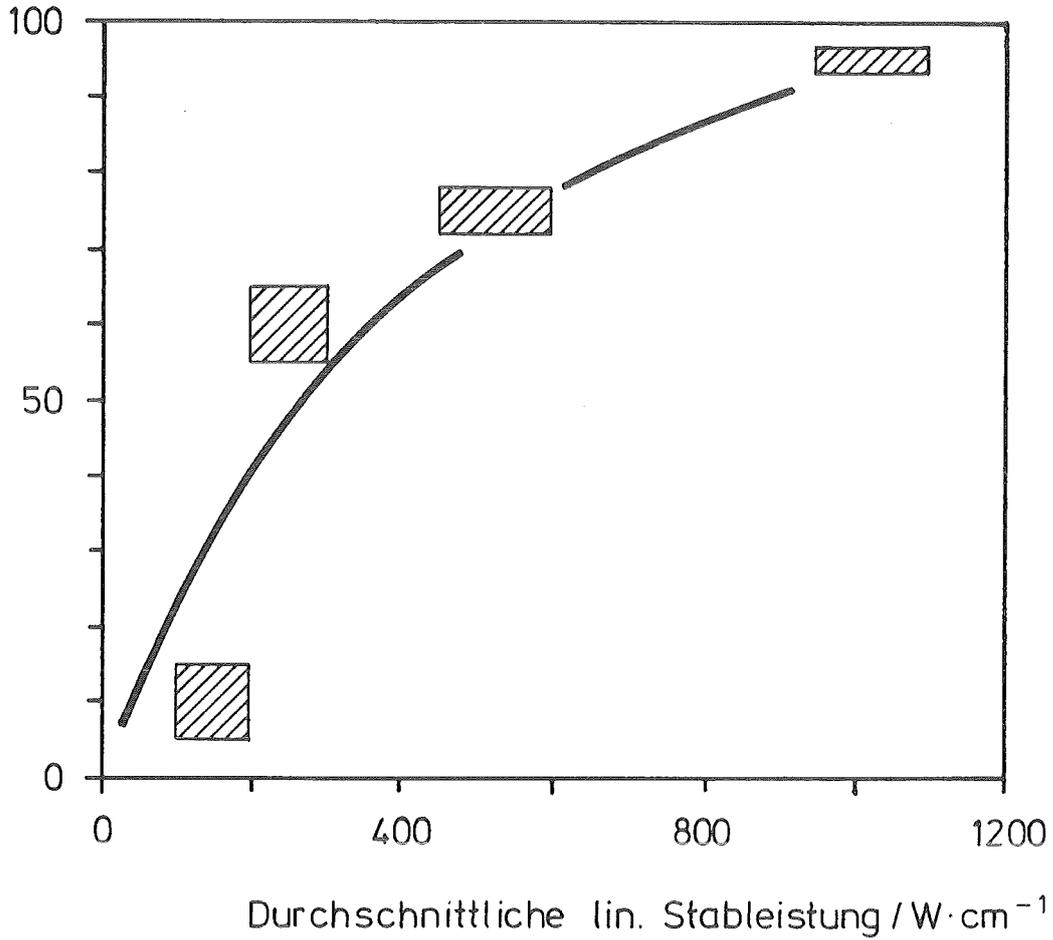


Abb. 2: ^3H -Freisetzung aus bestrahltem UO_2 -Kernbrennstoff in Abhängigkeit von der linearen Brennstableistung (nach [3])

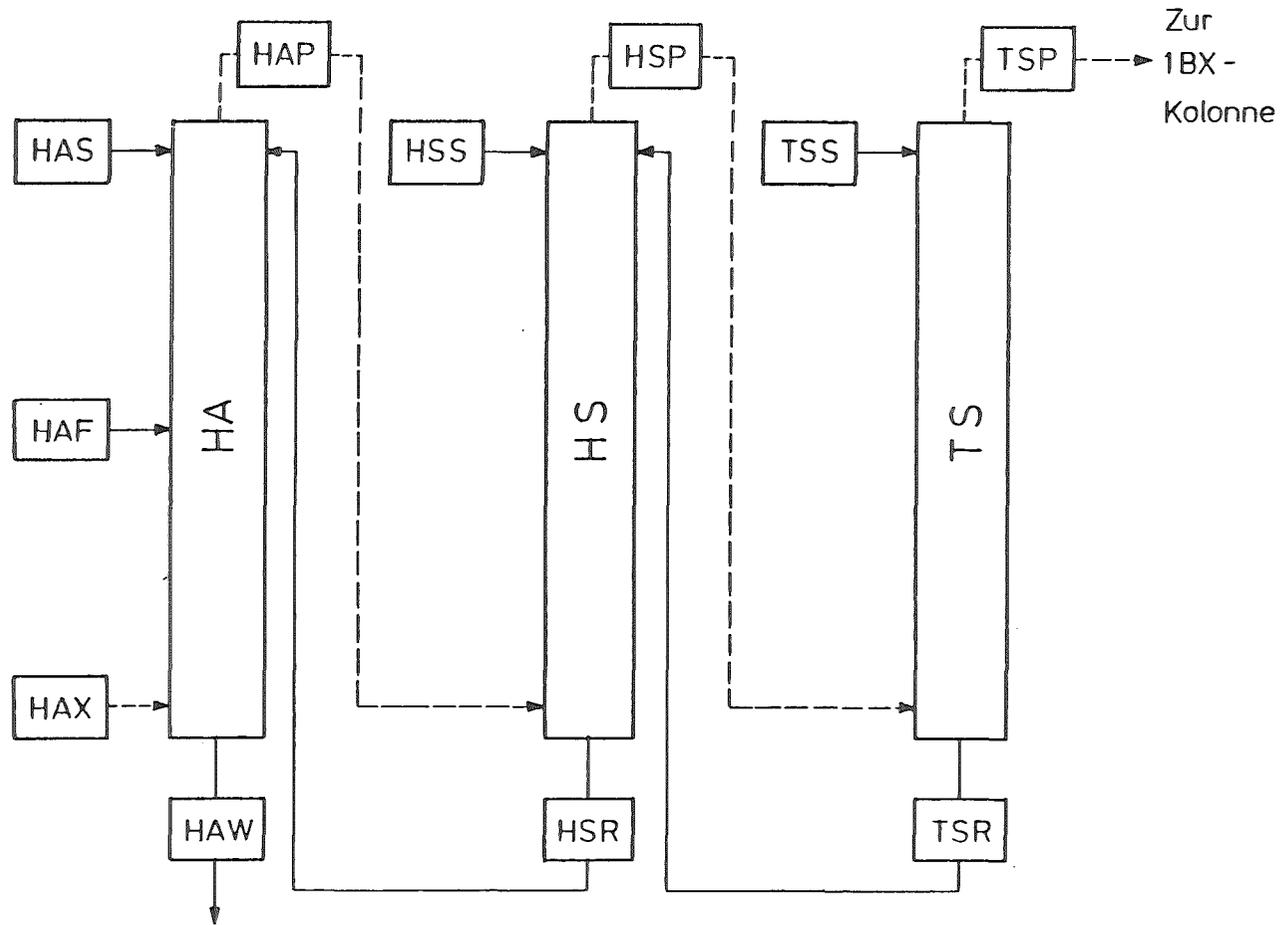


Abb. 3: Scrubsystem mit Spaltprodukt-Scrubkolonne (HS) und Tritiumscrubkolonne (TS) (— wässriger Strom, --- organischer Strom)

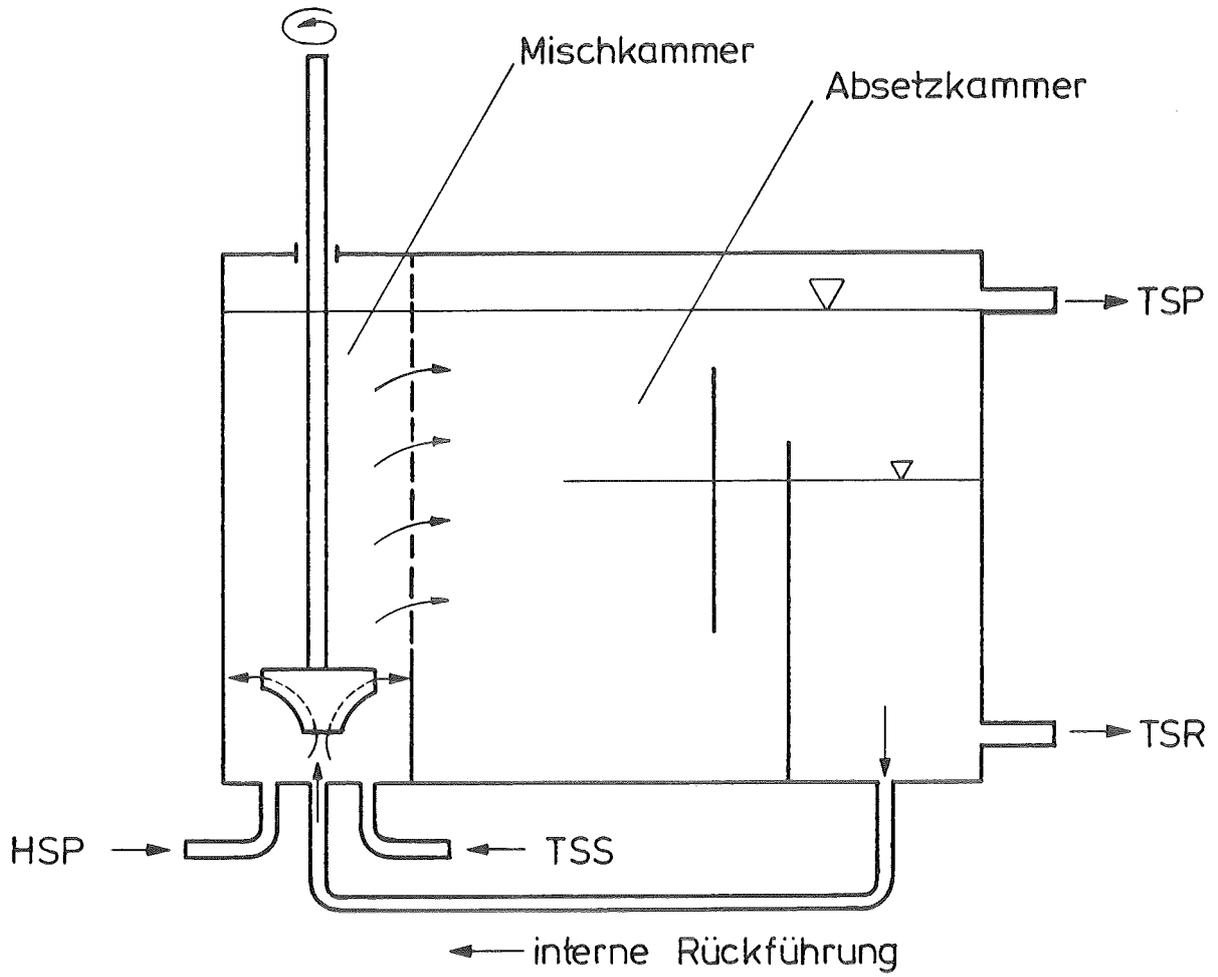


Abb. 4: Prinzip des Holley - Mott - Mischabsetzers

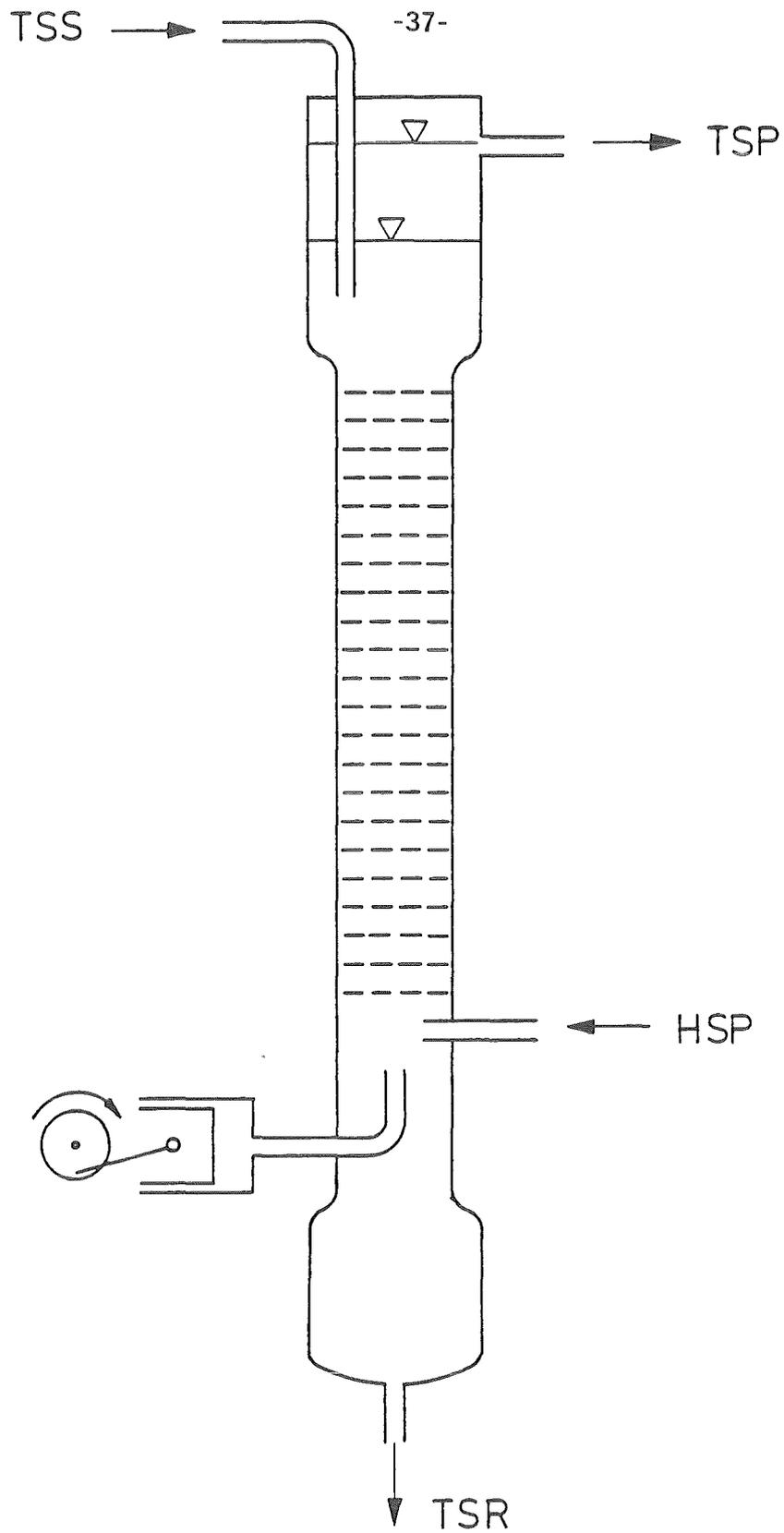


Abb. 5: Prinzip der pulsierten Siebbodenkolonne

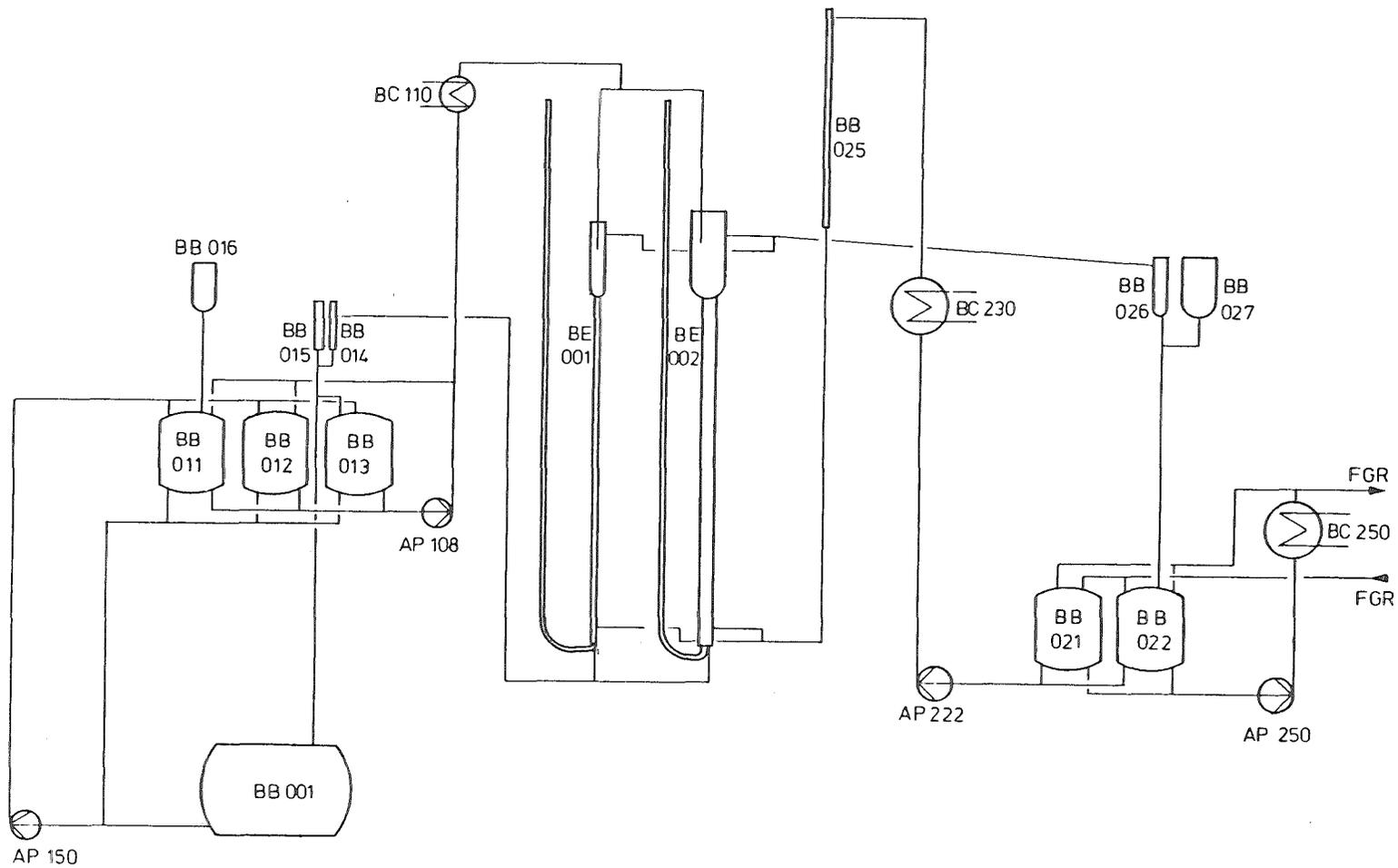
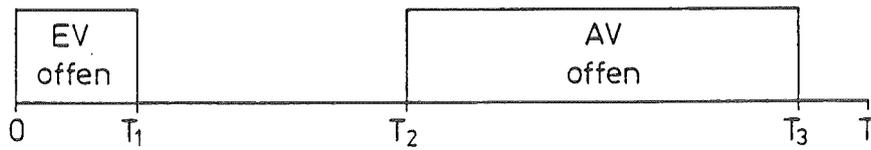
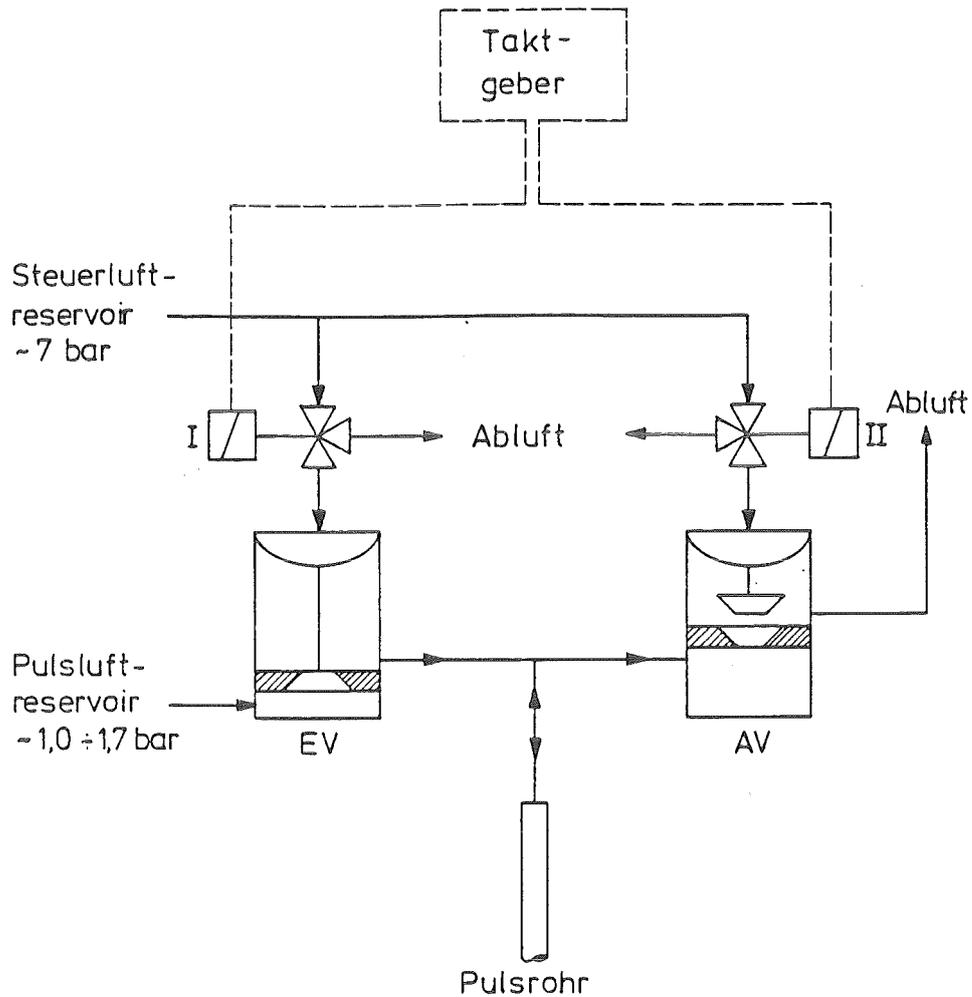
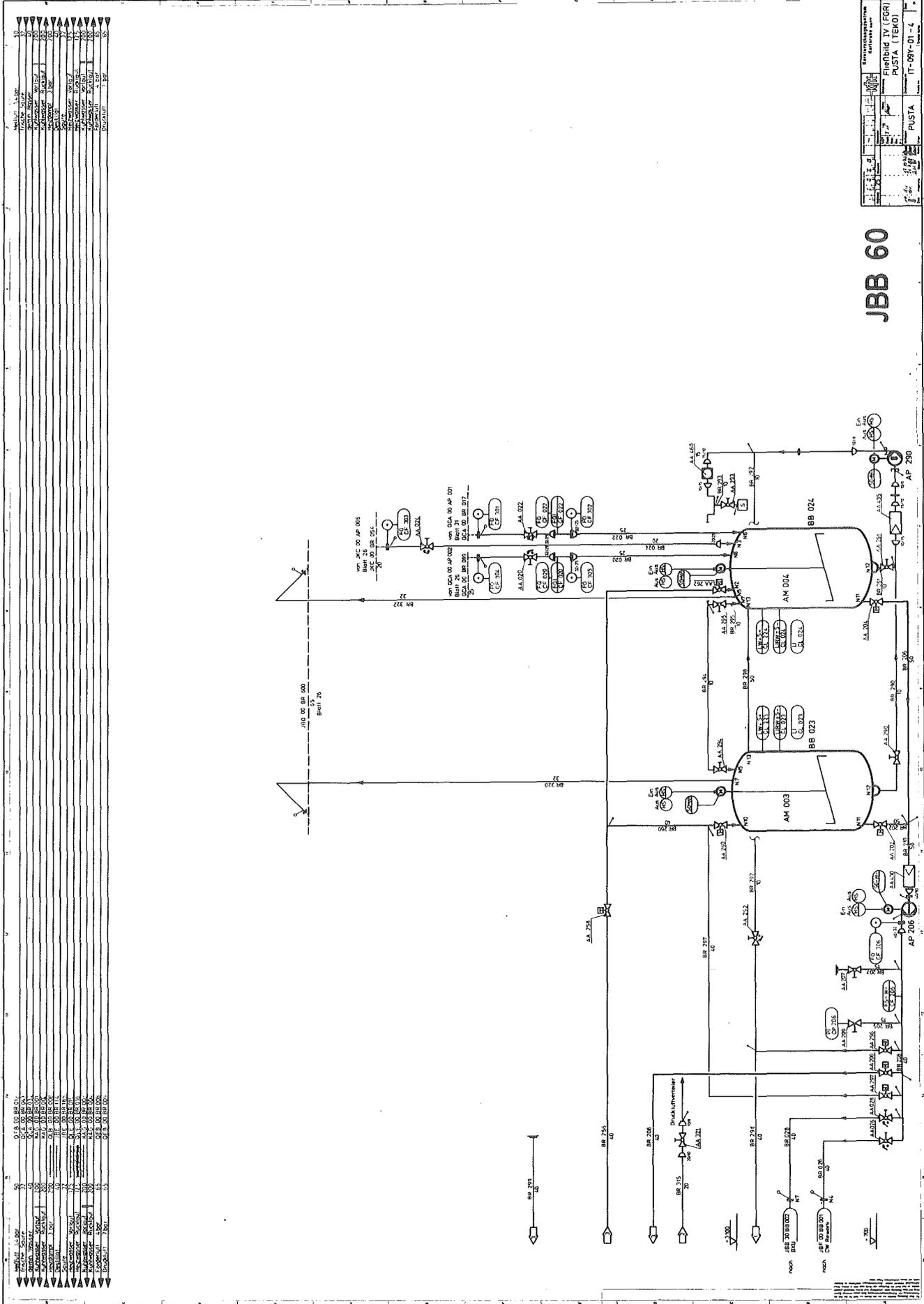


Abb.: 6 Verfahrensfliessbild PUSTA



- T = Taktzeit (0,5 - 2 s)
- T₁ = Einlaß schließt
- T₂ = Auslaß öffnet
- T₃ = Auslaß schließt

Abb.: 8 Steuerschema Pulssteuerung



Technische Zeichnung
PUSTA
PUSTA
IT-09Y-01-4

JBB 60

Abb.: 12

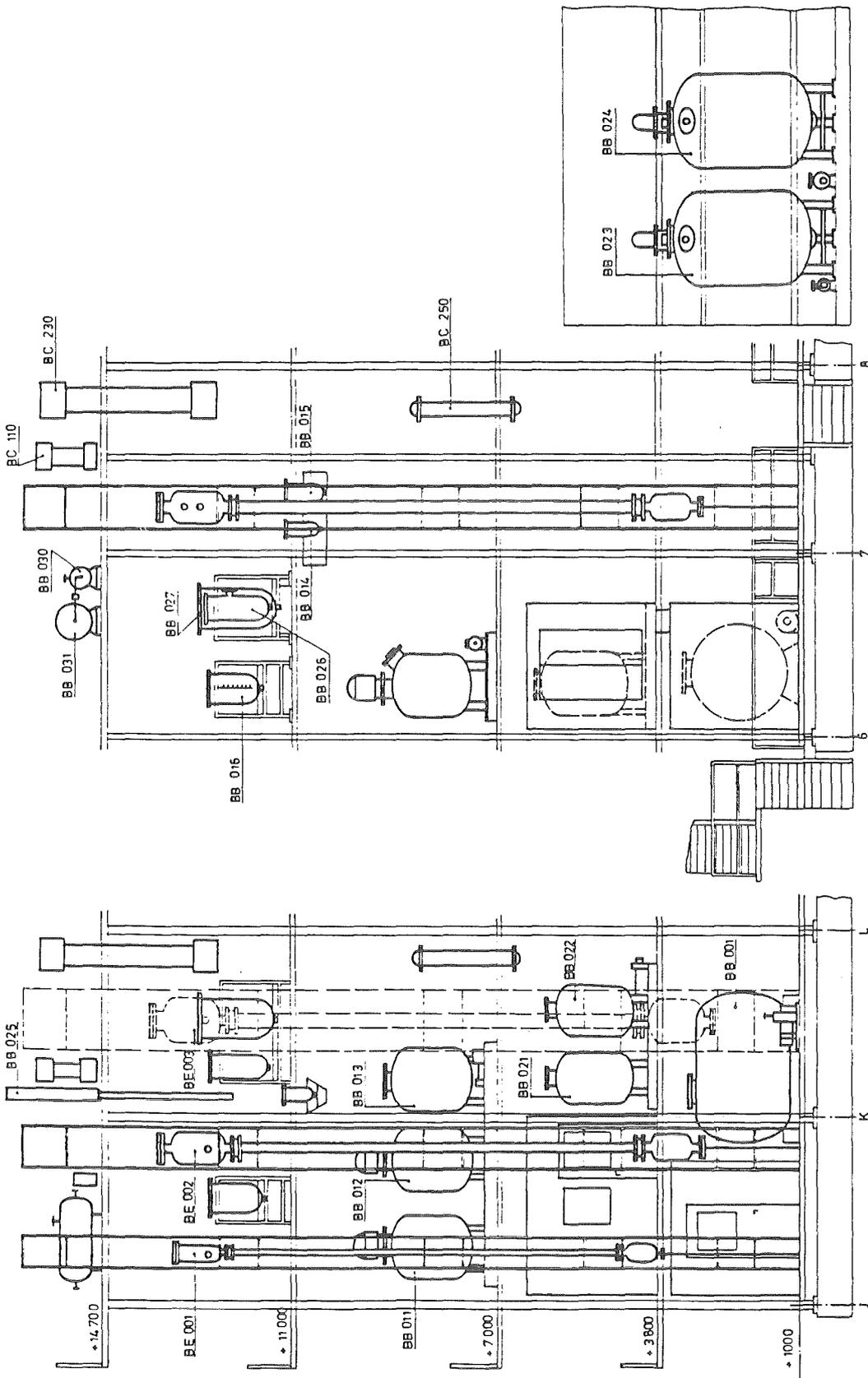
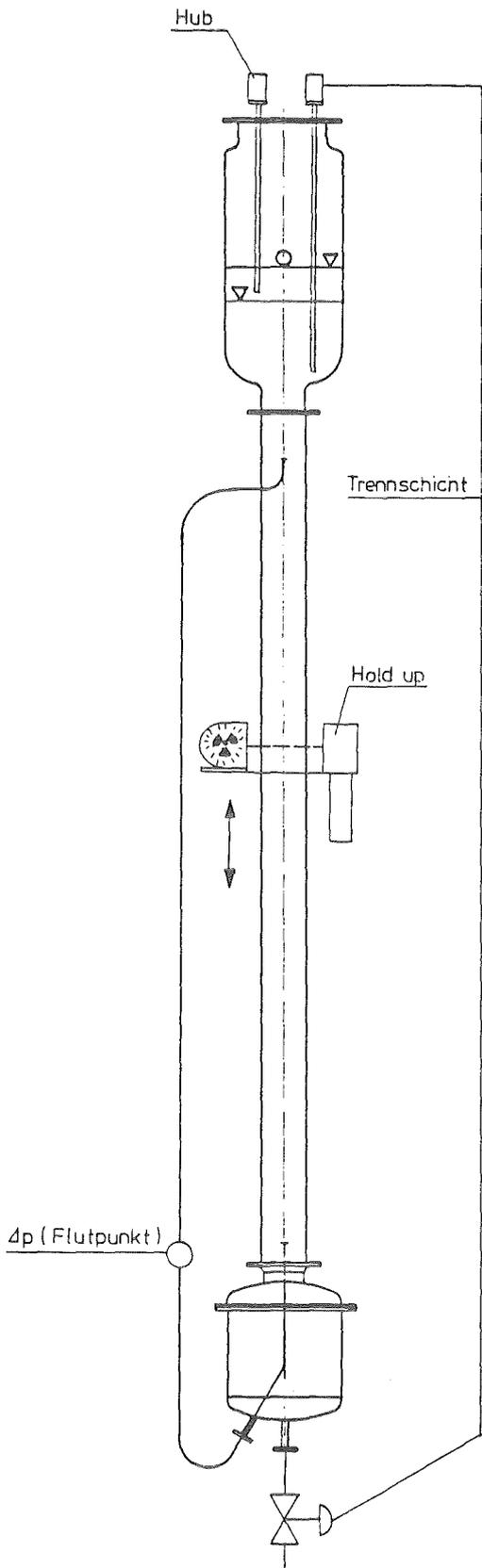


Abb. 13 Übersicht Pulskolonnenstand PUSTA





Lochdurchmesser d	[mm]	4,5
freie Durchtrittsfläche	[%]	23
Siebbodendicke	[mm]	1,5
Bodenabstand	[mm]	50
Kolonnendurchmesser	[mm]	210,5
Cartridgelänge	[mm]	6400

Abb.: 14 Kolonne BE 002

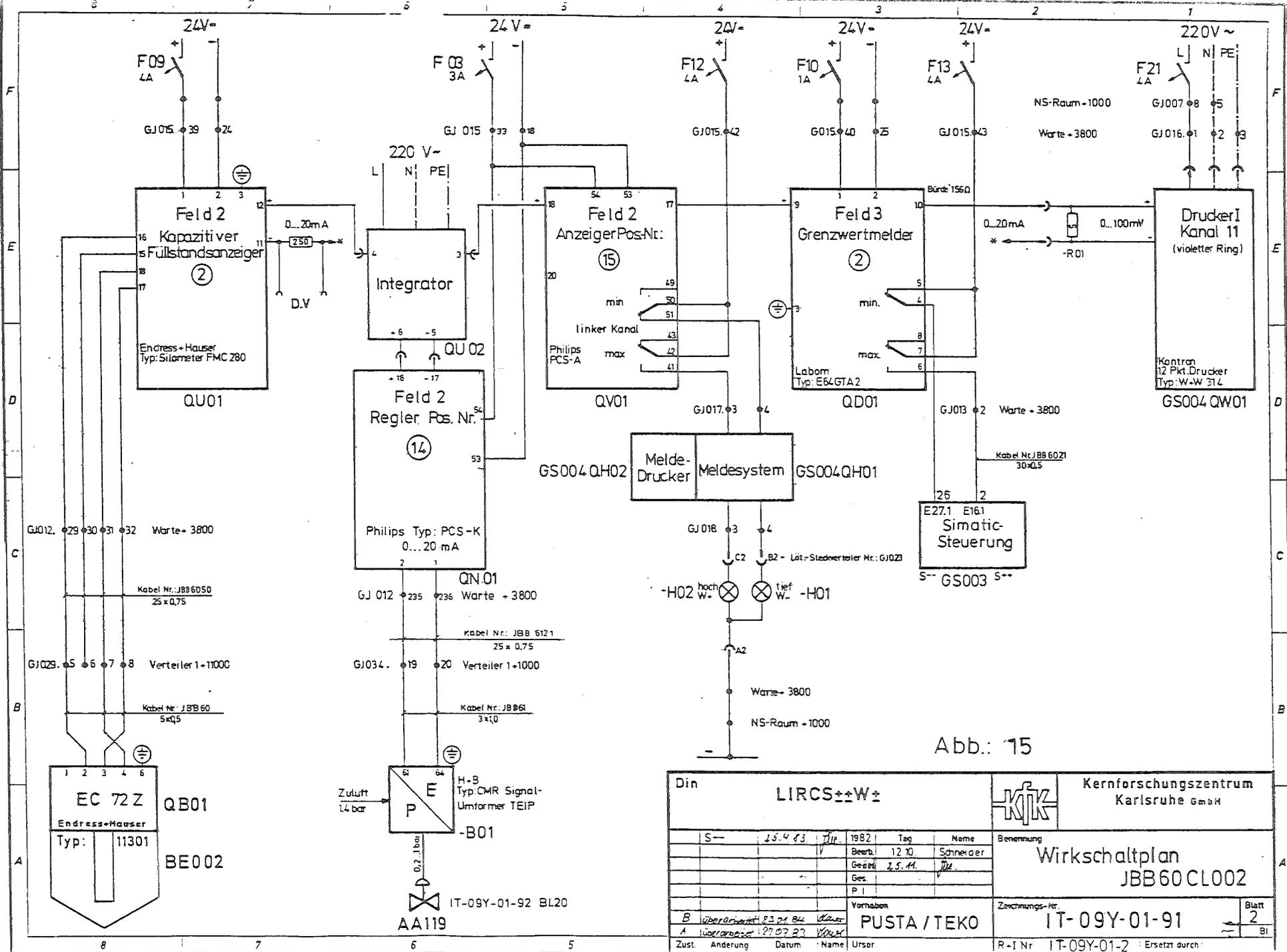


Abb.: 15

Din				LIRCS++W±		Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH			
S--	25.4.83	1982	Tag	Name	Benennung				
			Bearb.	12.10.	Wirkschluplan				
			Gez.	2.5.11.	JBB60 CL002				
			Gez.		Zeichnungs-Nr.				
			P I		IT-09Y-01-91				
Zust. Änderung				Datum		Name		Urspr	
B Überarbeitet 23.01.84 Klaus				Vornamen		Zust.		Blatt	
A Überarbeitet 27.07.87 Klaus				PUSTA / TEKO		R-I Nr.		2	
						IT-09Y-01-2		Ersetzt durch	

210 mm Kolonne
30 % TBP in Dodecan
0.544 Mol Salpetersäure / l
Dichte 0.8351 g/cm³

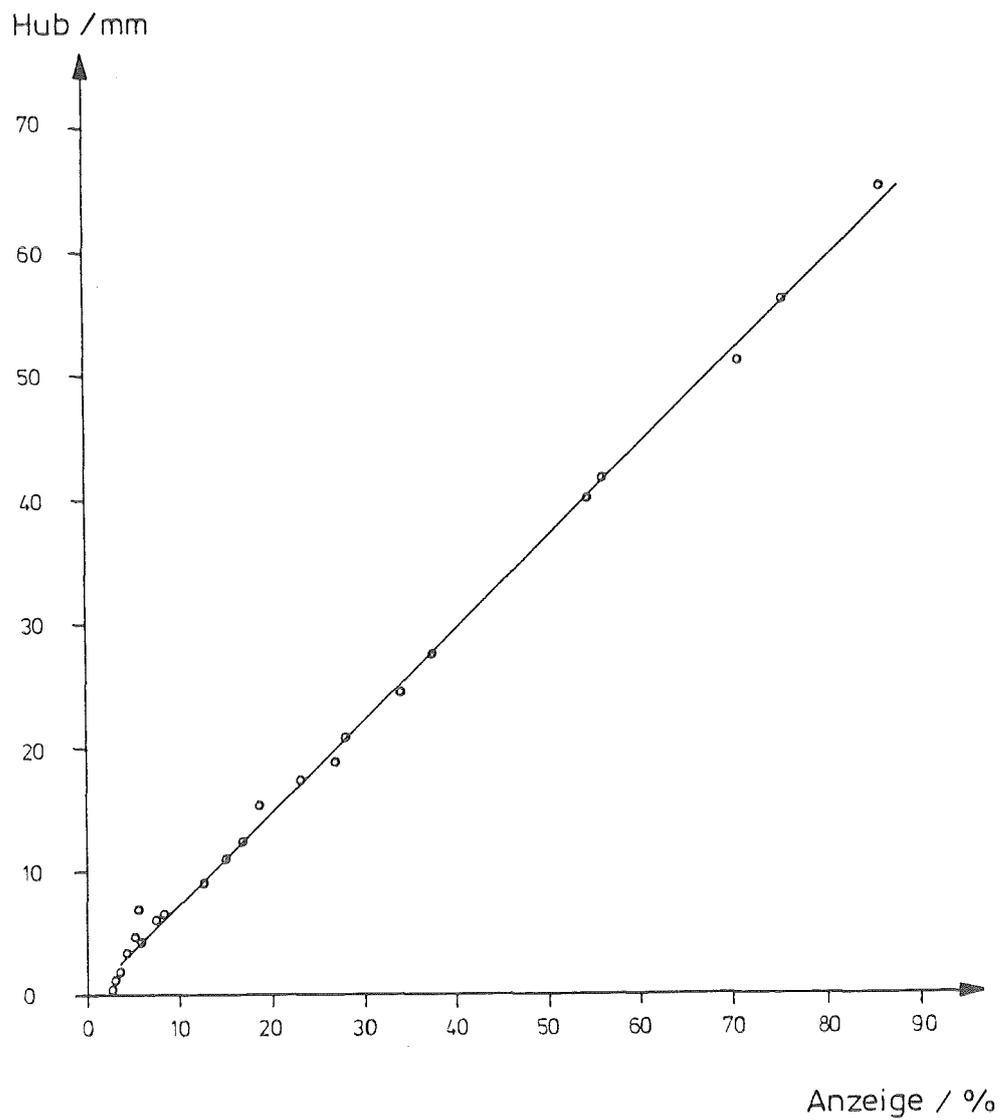


Abb.: 16 Eichkurve für Hubmessung

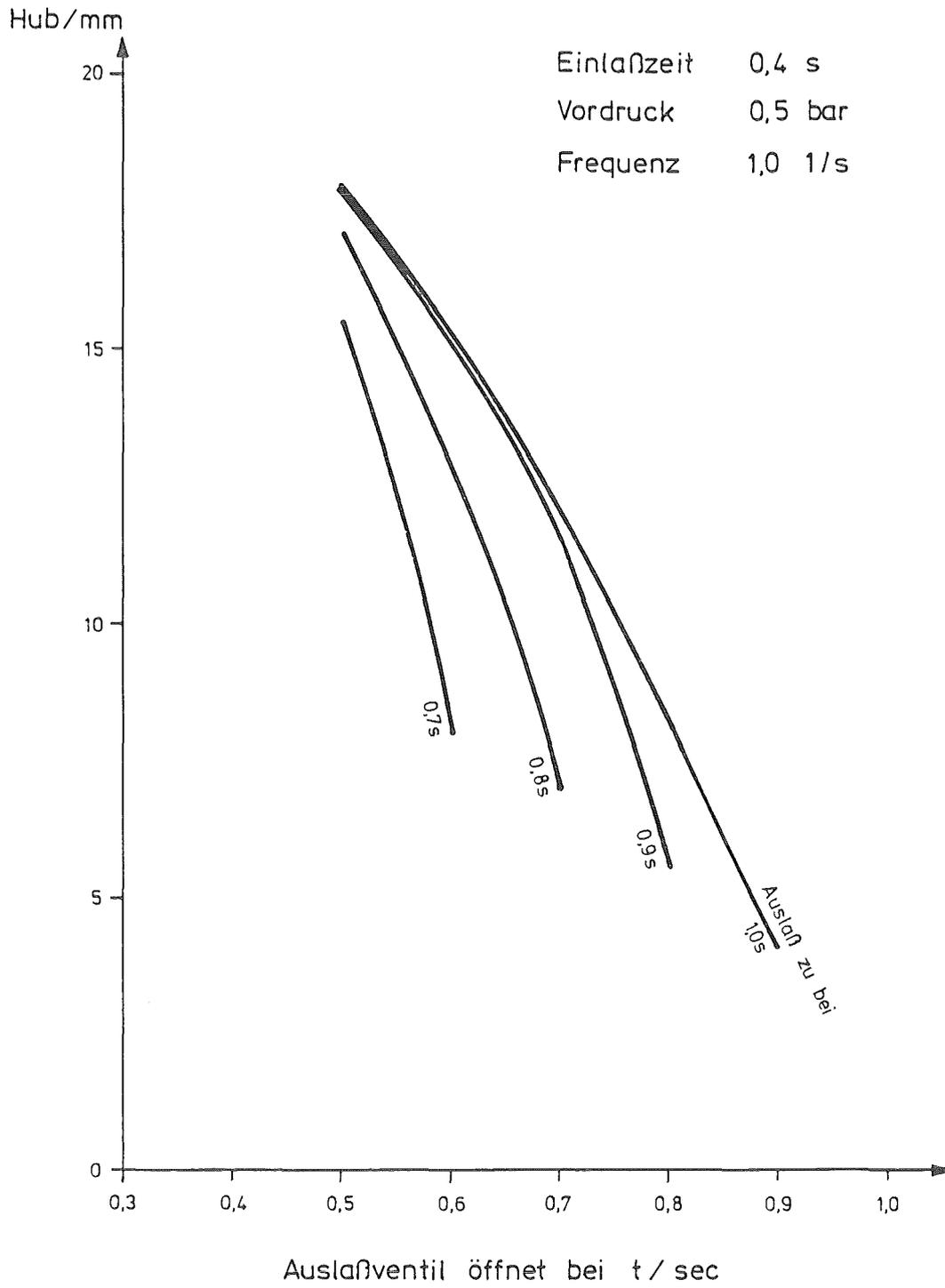


Abb.: 17 Hub in Abhängigkeit von den Ventilsteuerzeiten

30 % TBP / Dodecan - 3 m HNO₃
Flußverhältnis o: a = 20
Frequenz = 0,75 1/s
Düsenboden - 4,5 mm
Kolonnendurchmesser = 210,5 mm
Betriebsweise - org. dispers

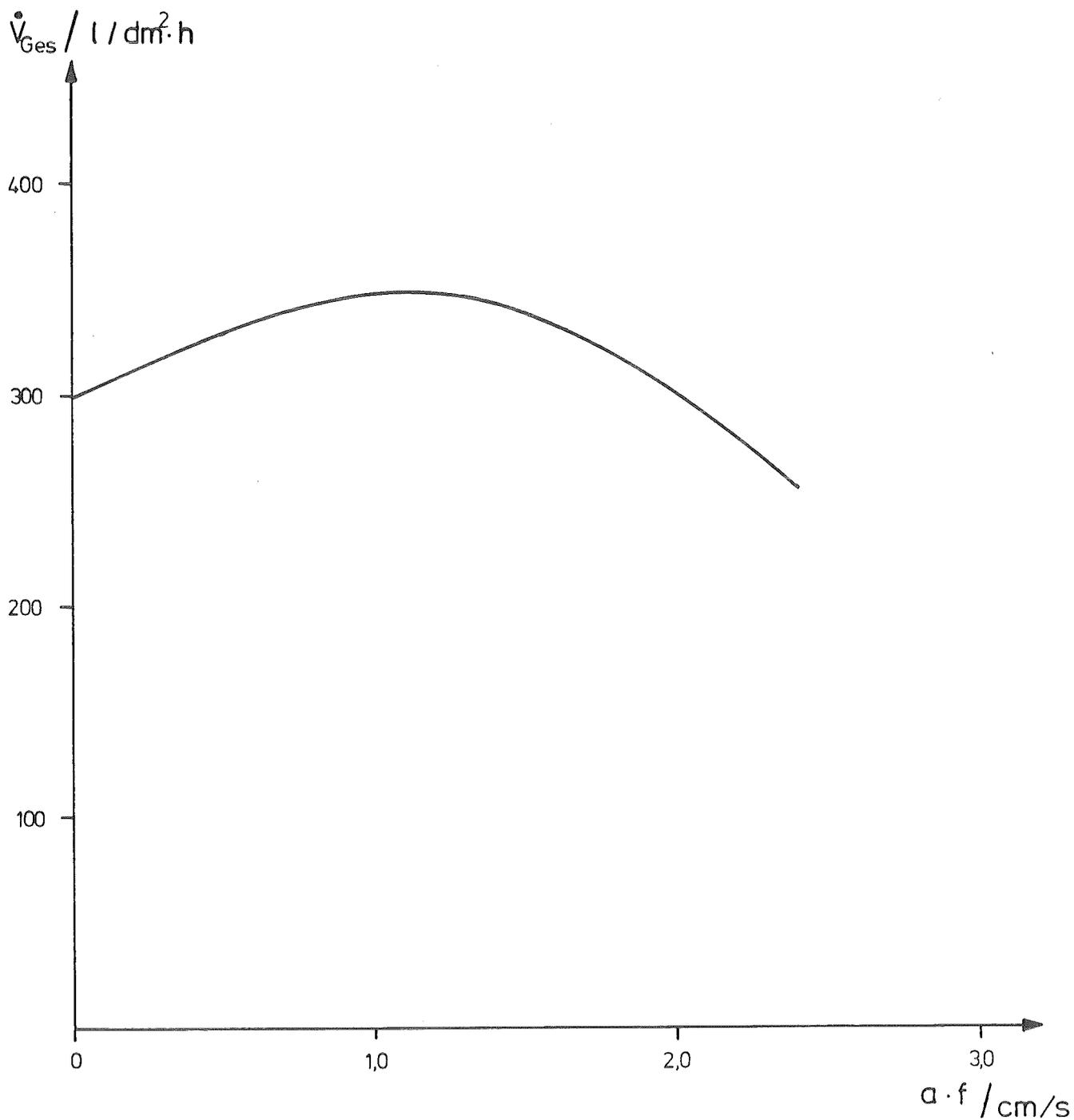


Abb.: 18 Flutpunktskurve (uranfreie Phasen)

30 % TBP / Dodecan mit	-	3m HNO ₃ mit
80g U/l	-	15g U/l
Flußverhältnis o : a	=	20
Frequenz	=	0,75 1/s
Düsenboden	-	4,5 mm
Kolonnendurchmesser	=	210,5 mm
Betriebsweise	-	org. dispers

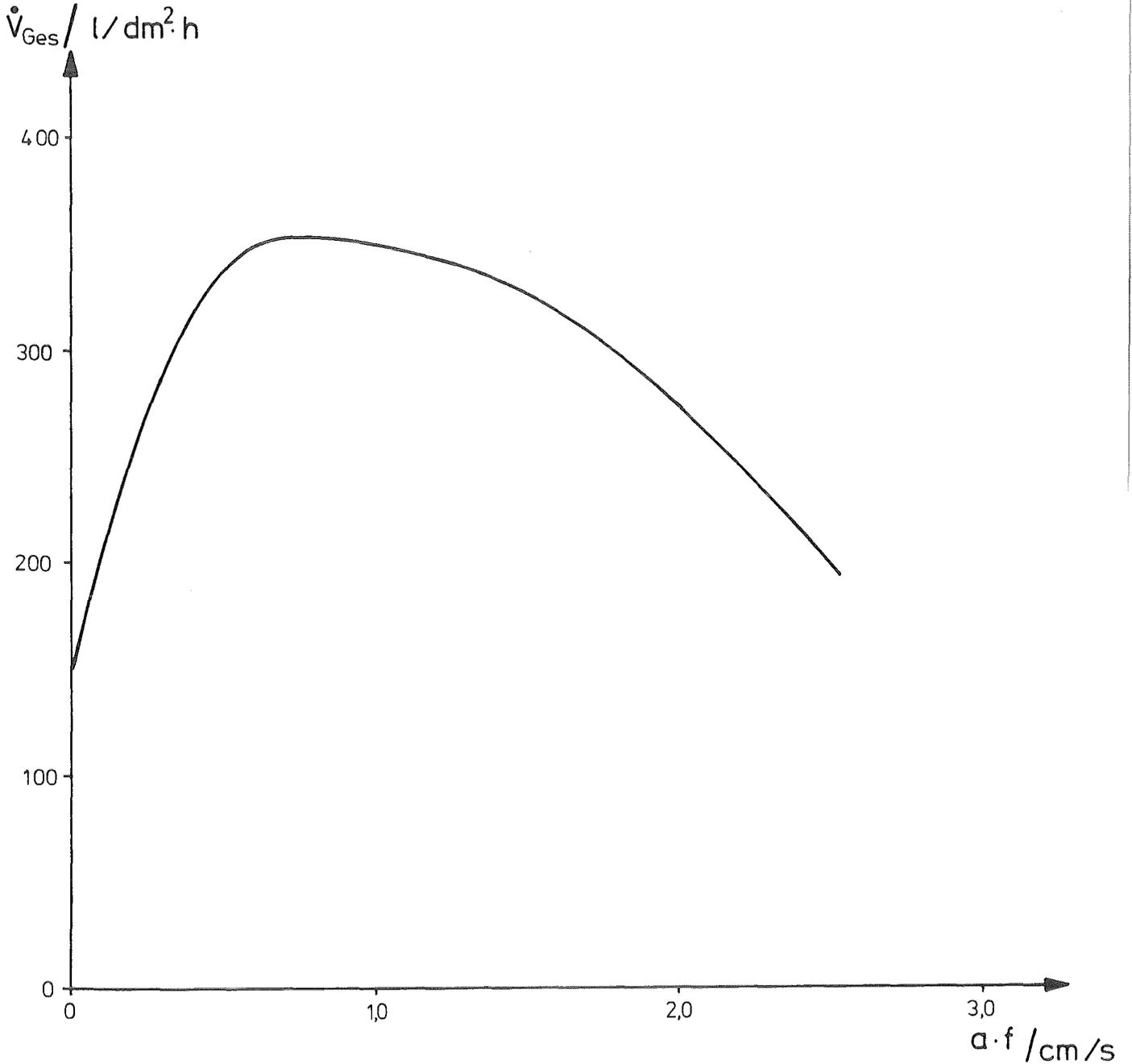
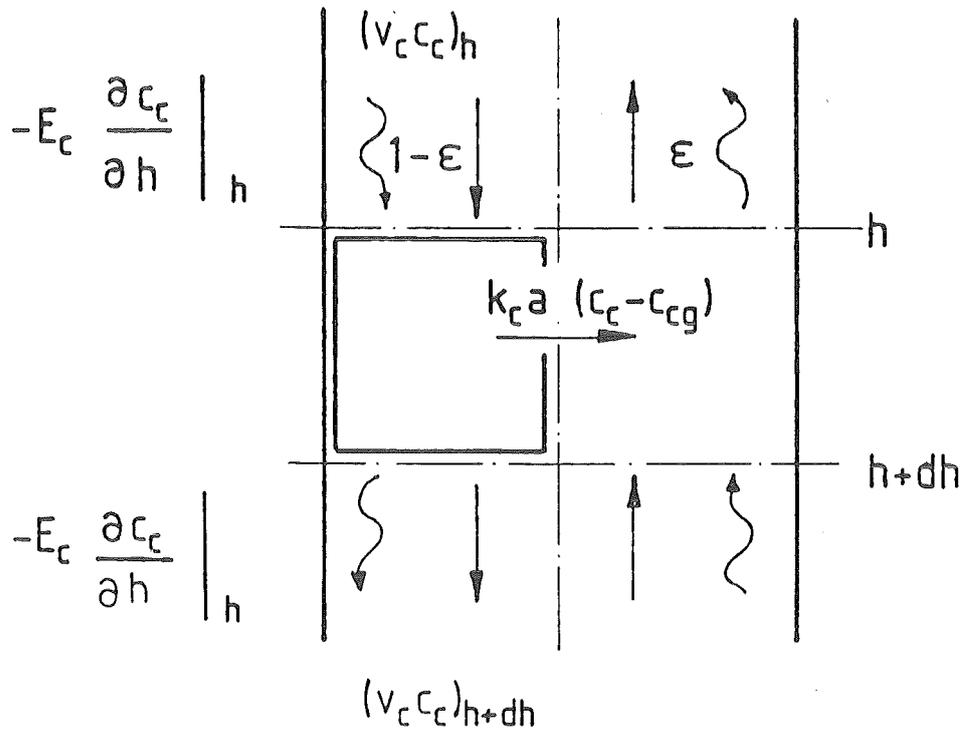


Abb.: 19 Flutpunktskurve (uranbeladene Phasen)



$$\frac{\partial c_c}{\partial t} = E_c \frac{\partial^2 c_c}{\partial h^2} - v_c \frac{\partial c_c}{\partial h} - \frac{k_c a}{1-\epsilon} (c_c - c_{cg})$$

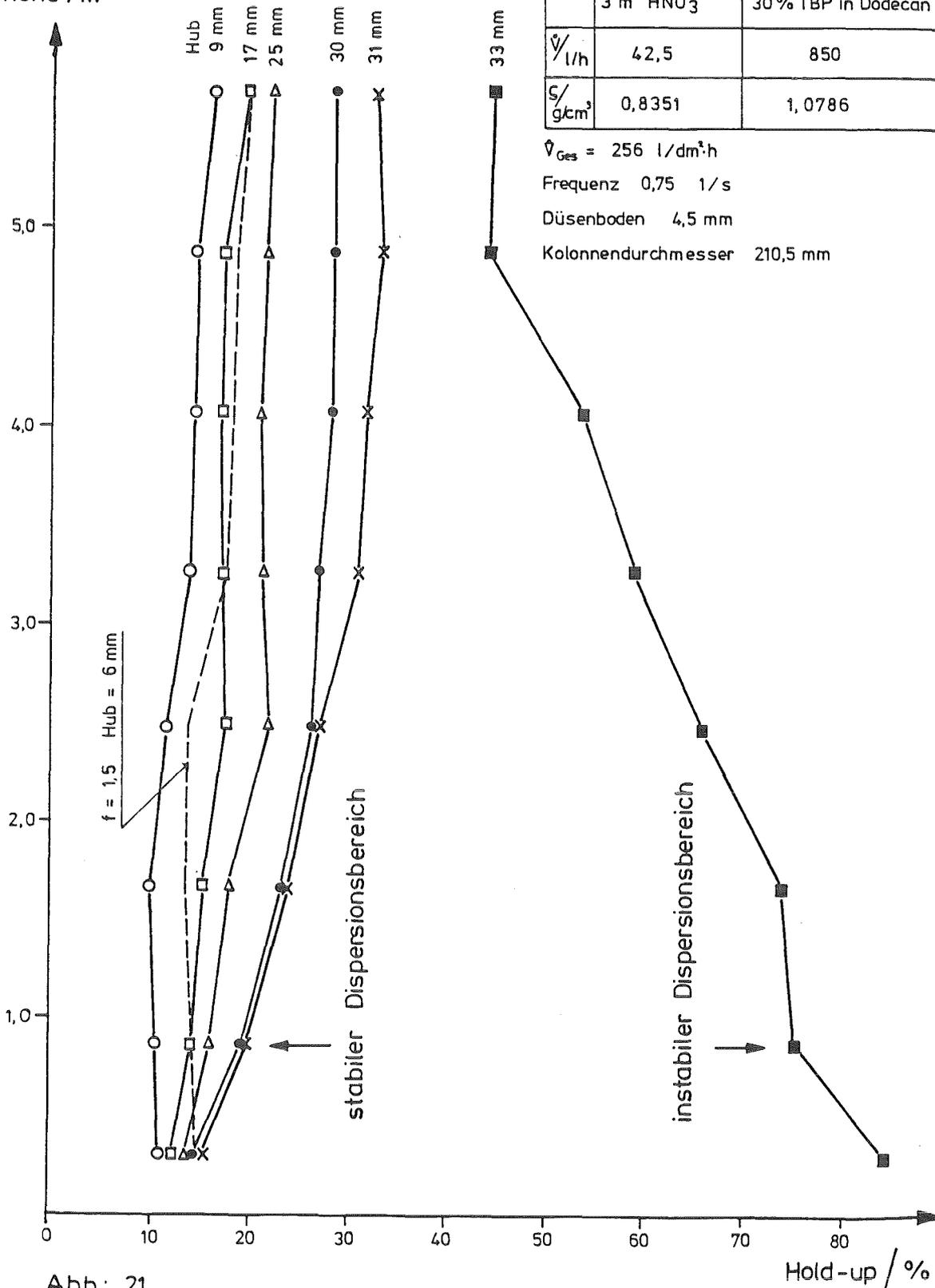
k [cm/s] Stoffdurchgangszahl

$a = 6\epsilon / d_{32}$ [cm²/cm³] spez. Tauschfläche

E [cm²/s] Dispersionskoeffizient

Abb.: 20 Dispersionsmodell

Kolonnen-
höhe / m



	kont. Phase	disp. Phase
	3 m HNO ₃	30% TBP in Dodecan
$\dot{V}/l/h$	42,5	850
$S/g/cm^3$	0,8351	1,0786

$\dot{V}_{Ges} = 256 \text{ l/dm}^3 \cdot h$

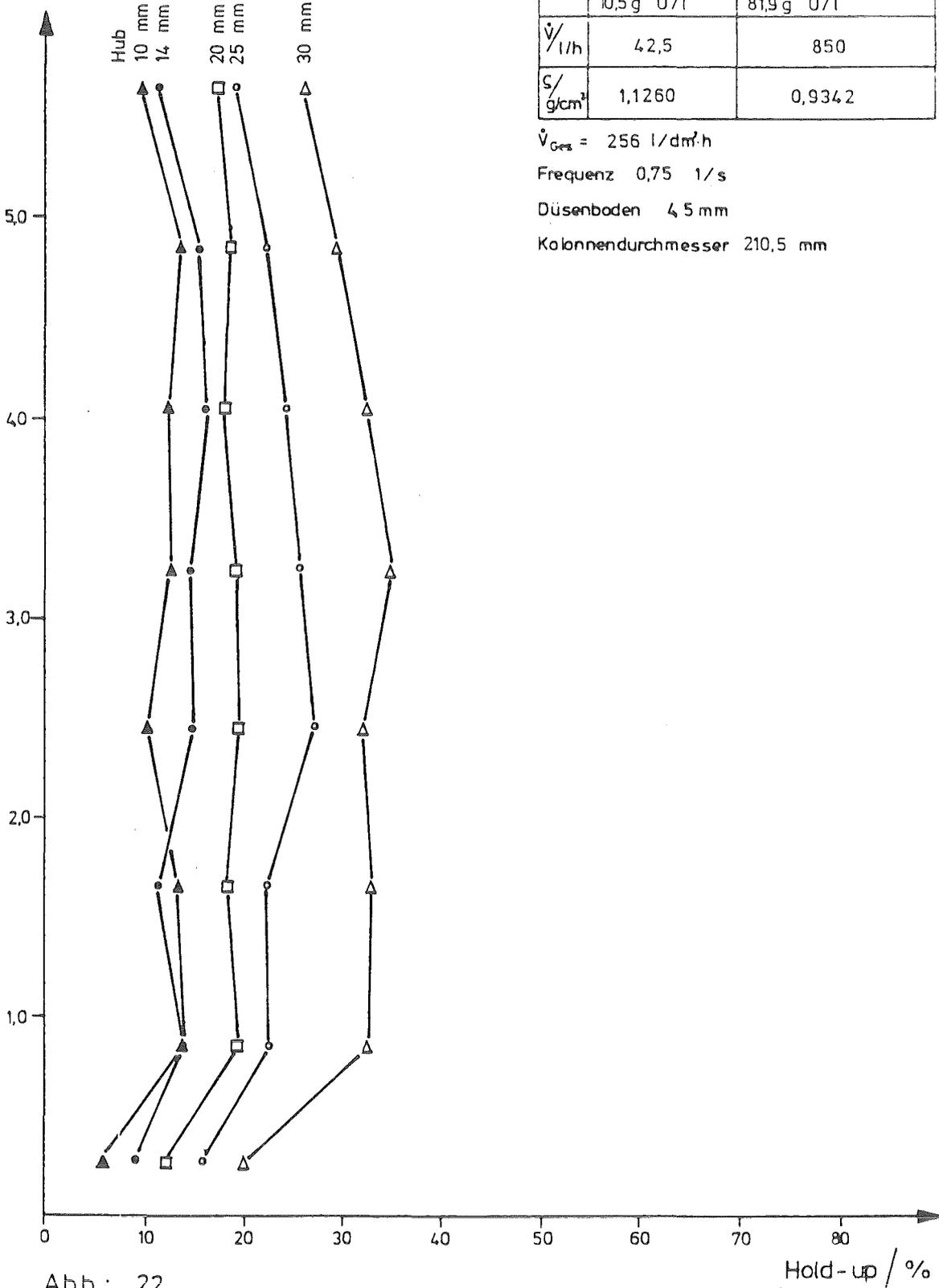
Frequenz 0,75 1/s

Düsenboden 4,5 mm

Kolonnen Durchmesser 210,5 mm

Abb.: 21

Kolonnen-
höhe / m



	kont. Phase	disp. Phase
	3,4 m HNO ₃ 10,5 g U/l	30% TBP in Dodecan 81,9 g U/l
$\dot{V}/l/h$	42,5	850
$\rho/g/cm^3$	1,1260	0,9342

$\dot{V}_{Ges} = 256 l/dm^2 \cdot h$

Frequenz 0,75 1/s

Düsenboden 4,5 mm

Kolonnendurchmesser 210,5 mm

Abb.: 22

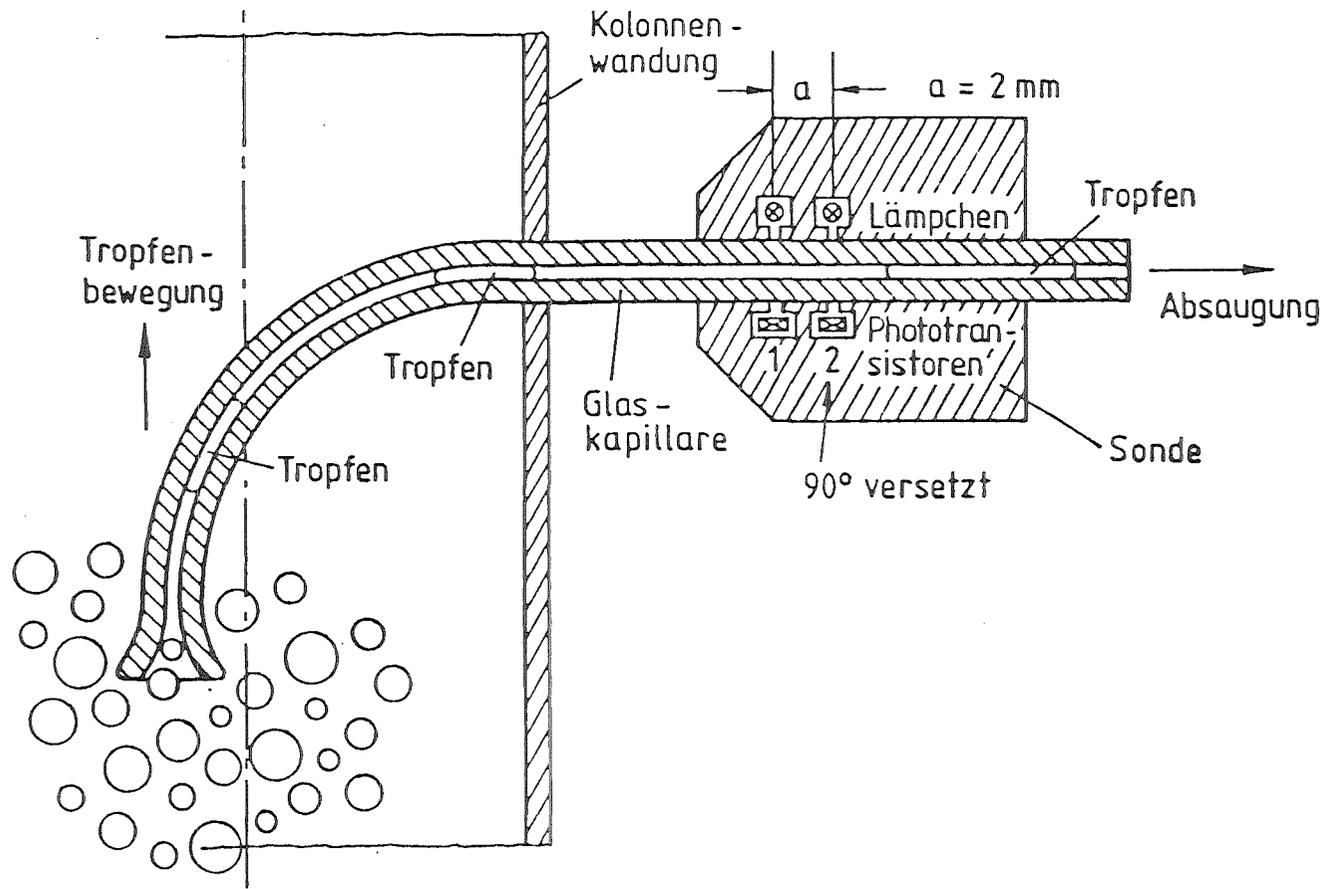


Abb.: 23

TROPFENGROESSENVERTEILUNG

VERS.NR.	TAG	MONAT	JAHR	STUNDE	MINUTE
50	4	7	84	14	20
DMIN	DMAX	SAUTER-D.	ABS.GESCHW.	KAP.-D.	
0.86	3.50	2.02	20.65	1.20	

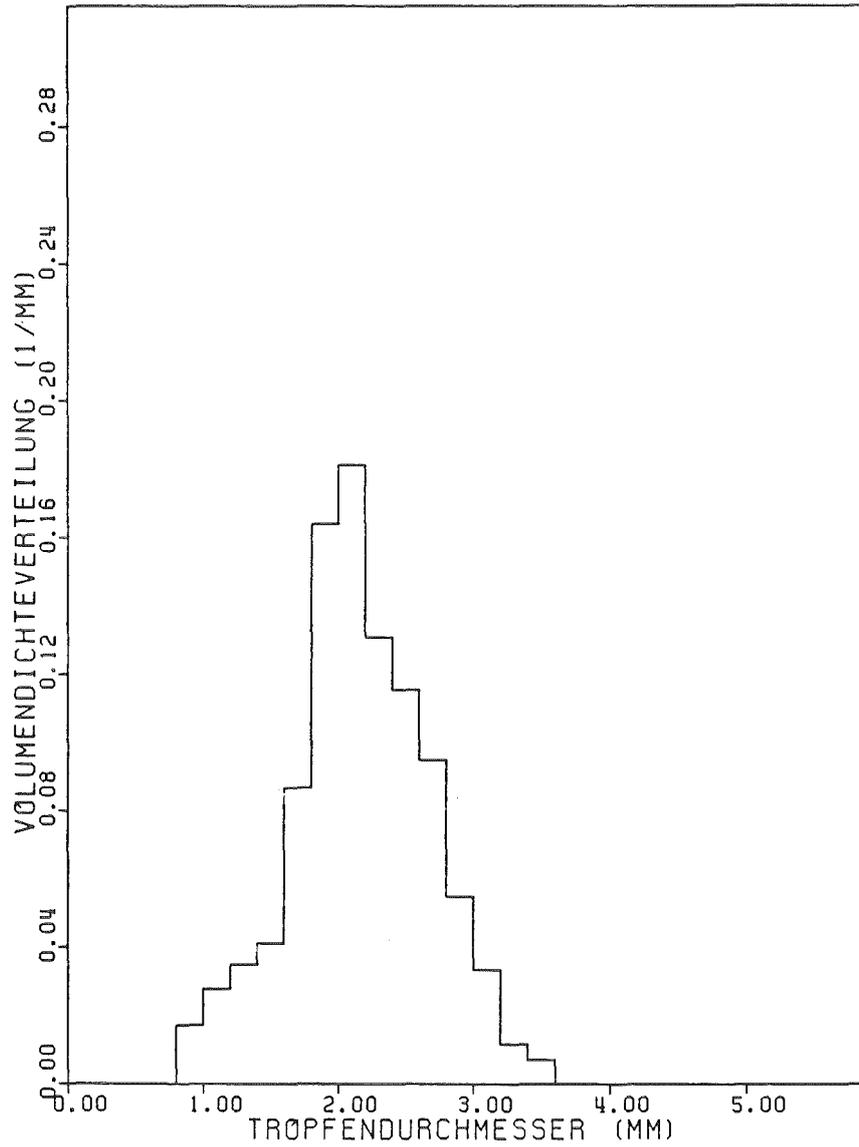


Abb.: 24

Sauterdurchmesser

	kont. Phase	disp. Phase
U g/l	12	
\dot{V} l/h	42,5	850
S g/cm ³	1,118	0,931

$\dot{V}_{Ges} = 256 \text{ l/dm}^2 \cdot \text{h}$

Frequenz 0,75 1/s

Düsenboden 4,5 mm

Kolonnen-durchmesser 210,5 mm

Kolonnen-
höhe / m

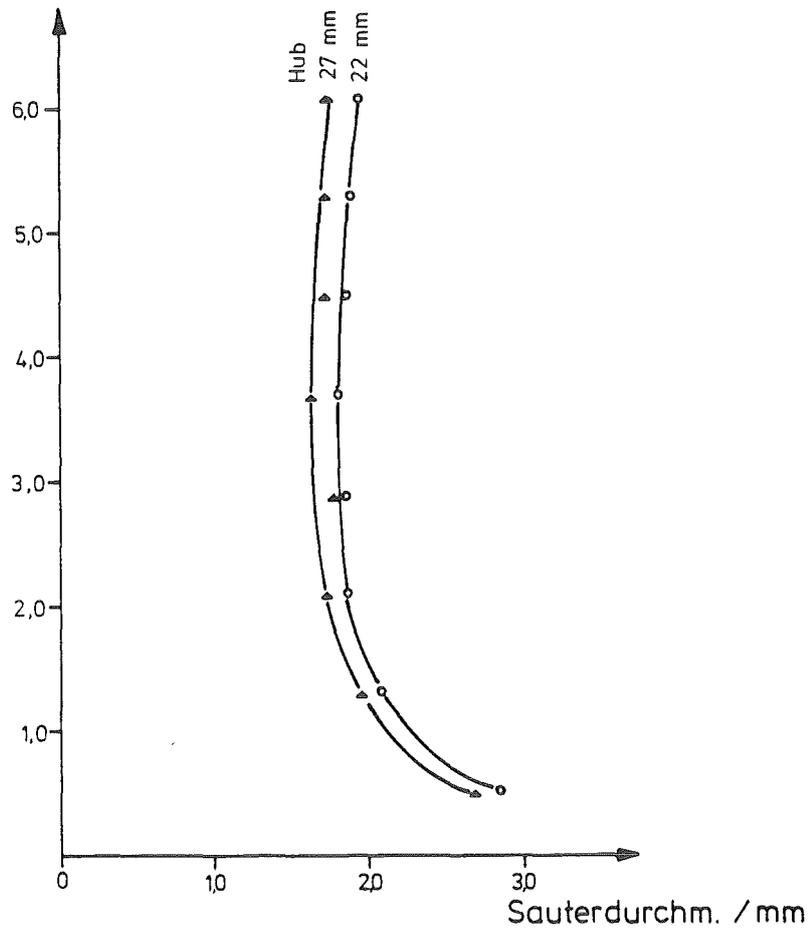
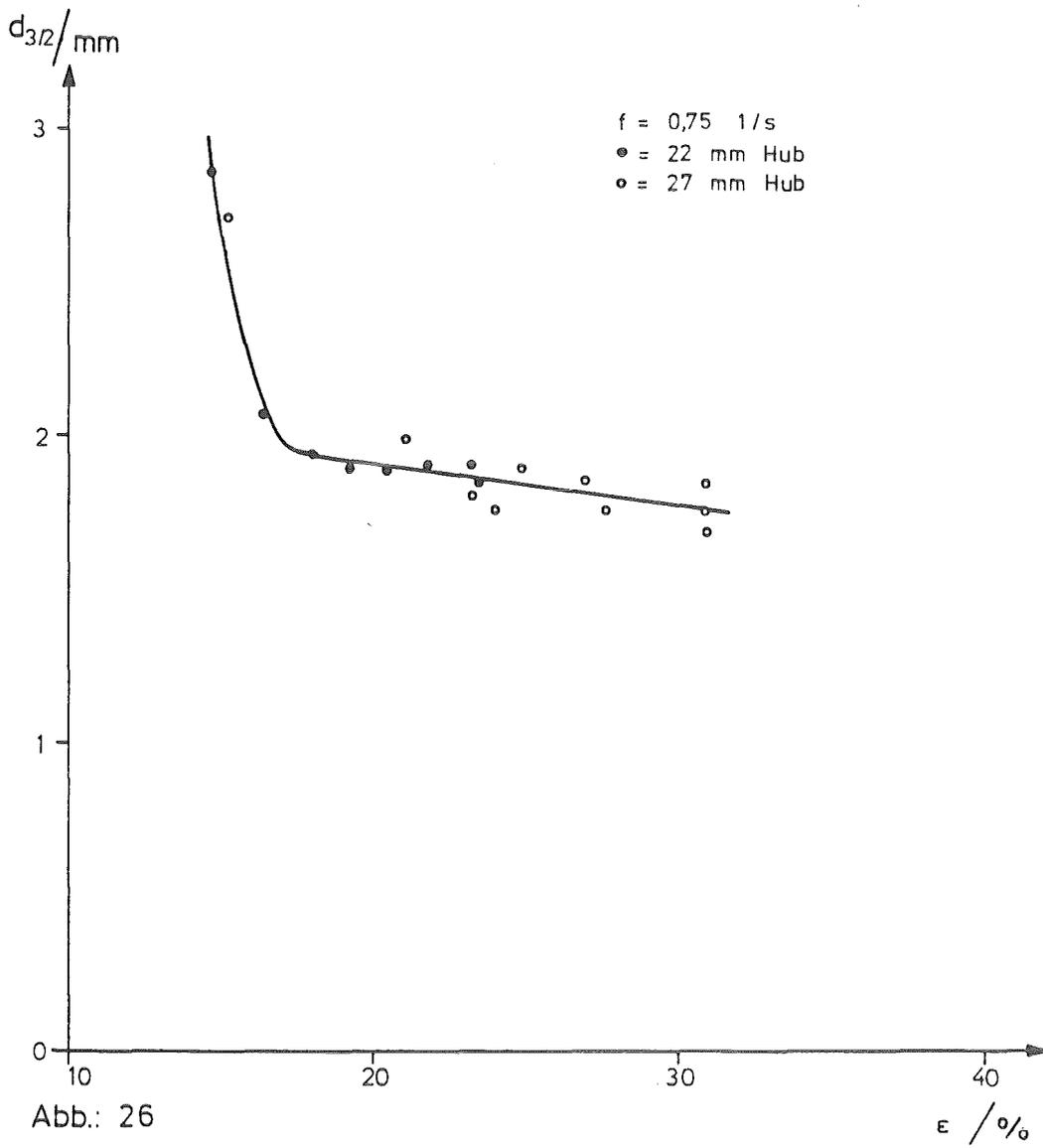


Abb.: 25

Sauterdurchmesser - Hold-up

	kont. Phase	disp. Phase
	3 m HNO ₃ /U	30% TBP/Dodecan/U
\dot{V} l/h	42,5	850



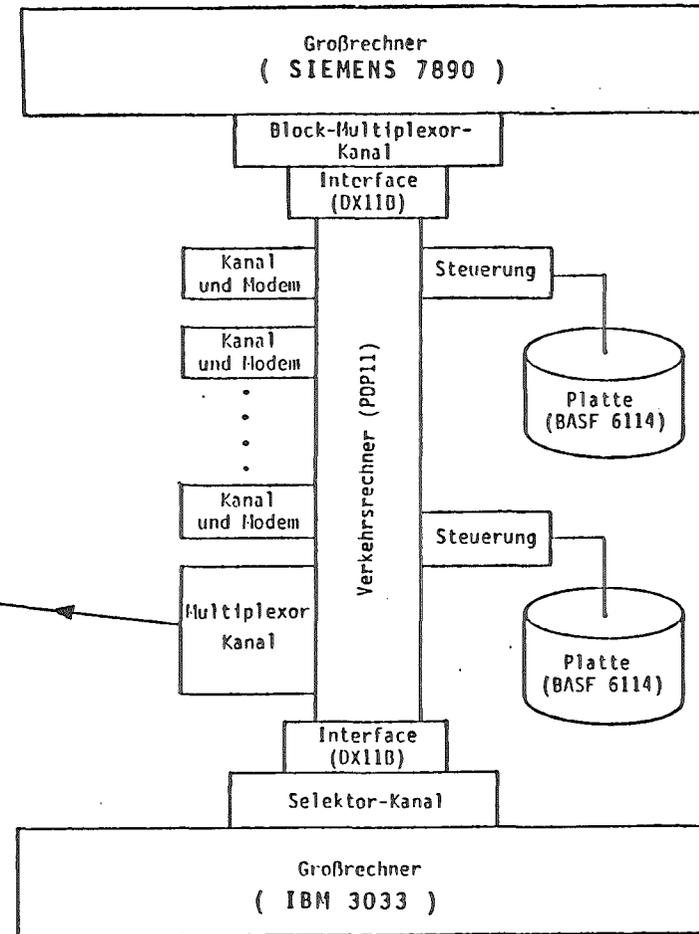
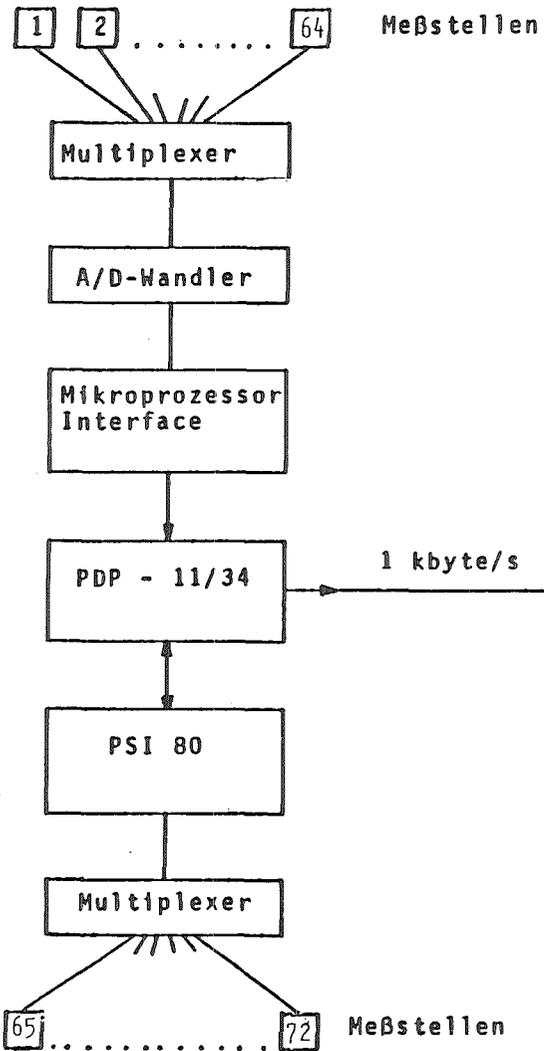


Abb.: 27 Rechnerkopplung