

# Mikrowellen In-Fass Trocknung

## Effektives Eindampfen von radioaktiven Flüssigabfällen

Dipl.-Ing. Horst Linn, Dipl.-Phys. Roland Waitz, Dipl.-Ing. Hans Windsheimer, Linn High Therm GmbH, Eschenfelden, Deutschland

### 1 Einleitung

Flüssige radioaktive Abfälle, wie beispielsweise Salzlösungen oder Sägeschlämme, fallen sowohl während des regulären Betriebs, der Stilllegungsphase und dem Rückbau von Kernreaktoren als auch in medizinischen Einrichtungen, Forschung, Rüstungsindustrie etc. an. In den meisten Kernkraftwerken werden die entstehenden Flüssigabfälle bereits auf ca. 20 Gew.-% eingedickt/getrocknet. Allerdings müssen diese konzentrierten Flüssigabfälle weiter getrocknet werden, um die Bedingungen für die Endlagerung zu erfüllen.

Die Konzentrate müssen in einer separaten Trocknungsanlage inertisiert und in einen endlagerfähigen Behälter (z.B. 200-l Fass) gefüllt werden. Hierzu werden verschiedene Techniken angewandt wie Dünnschichtverdampfer, Vakuumverdampfer etc. Da die Endlagerbestimmungen im Falle des Eintrocknens von Salzlösungen einen festen Salzblock mit einem Restfeuchtigkeitsgehalt  $< 1$  Gew.-% fordern, muss das getrocknete Produkt direkt in den Behälter gefüllt bzw. direkt in diesem Behälter getrocknet werden. Grund hierfür ist das Aushärten des Produkts beim Abkühlen. Dabei bildet die im Fass enthaltene Salzlösung (Wassergehalt ca. 20 Gew.-%) einen festen kristallinen Salzblock. Zusätzlich ist eine Behandlung des Flüssigabfalls direkt in einem Endlagergebäude sicherer und ökonomisch günstiger.

Eine häufig angewandte Methode ist die widerstandsbeheizte Erwärmung der Behälterwand. Mit dem Erhitzen der Behälterwand entsteht ein Temperaturgradient zwischen dem äußeren Bereich und dem Kern des Behälters. Da die Temperatur an der Behälterwand am größten ist, beginnt hier die Verdampfungskristallisation. Dadurch entsteht außen eine trockenere Salzschrift, wodurch der thermische Widerstand zum Kern (zum feuchten bzw. flüssigen Medium) hin stetig steigt. Deswegen kristallisiert die Substanz im Inneren meist nur unvollständig, wodurch sowohl die Prozessdauer stark

verlängert als auch die Außentemperatur erhöht werden muss. Da jedoch die Außentemperatur durch den thermischen Widerstand des Materials und die Prozessbedingungen limitiert ist, muss die Prozessdauer erhöht werden. Die typische Prozessdauer dieser Methode liegt bei ca. 80 Tagen. Zudem darf die Beschichtung der Fässer zu Gewährleistung des Korrosionsschutzes nicht mehr als 120 °C erreichen.

## **2 Ein neuer Lösungsansatz**

Als Ergebnis einer langen Zusammenarbeit mit der deutschen Nuklearindustrie hat Linn High Therm einen Prozess patentiert, der Flüssigabfälle mittels Mikrowellen eindampft. Der Mikrowellen-In-Fass-Trocknungsprozess (Microwave In Drum Drying - MIDD-Prozess) ist ein durch Verdampfung gesteuerter Kristallisationsprozess.

Zusammen mit einem Partner aus der Nuklearindustrie wurde eine MIDD-Pilotanlage entwickelt und gebaut, mit der diverse Tests mit verschiedenen nicht radioaktiven Testflüssigkeiten erfolgreich durchgeführt wurden. Die Ergebnisse dieser Tests werden nachstehend detailliert beschrieben.

Die wichtigsten Eigenschaften und Vorteile des MIDD-Prozesses verglichen mit widerstandsbeheizten Systemen sind:

- Die Wärme wird direkt in der Lösung über das komplette Volumen erzeugt
- Dabei entstehen nur minimale Temperaturgradienten und somit eine möglichst homogene Kristallisation
- Die Prozessdauer ist im Vergleich zu widerstandsbeheizten Systemen um den Faktor 8-10 kürzer (siehe Abb. 1)

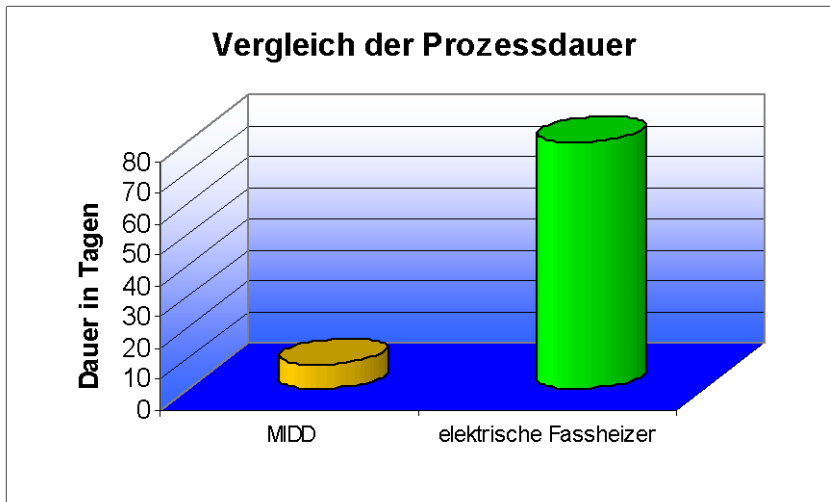


Abb. 1: Vergleich der Prozessdauer zwischen konventioneller elektrischer Fasseheizung und dem MIDD-Prozess.

## 2.1 Die Mikrowellen In-Fass Trocknung

Die MIDD-Anlage wird semikontinuierlich betrieben. Zu Beginn wird eine definierte Menge an Flüssigabfall in den Endlagerbehälter gepumpt, während eine induktive Heizung (unter dem Fassboden) diesen vorwärmt. Anschließend beginnt die Mikrowellenerwärmung und Flüssigabfall wird über eine Schlauchpumpe kontinuierlich zugeführt. Der Endlagerbehälter und der Mikrowellenapplikator werden auf einem Absolutdruck von ca. 900 mbar gehalten. Der entstehende Dampf wird mit einem Gebläse abgesogen. Ein Tröpfchenabscheider filtert Staubpartikel und mitgerissene Wassertropfen aus dem Dampfstrom, bevor dieser in einem Plattenwärmetauscher auskondensiert wird. Das Kondensat wird in einem separaten Behälter aufgefangen. Am Ende des Prozesses wird die Zufuhr von Flüssigabfall gestoppt und die restliche Flüssigkeit im Endlagerbehälter mit angepasster Mikrowellenleistung verdampft. Nach dem Abkühlen des Behälters wird dieser durch ein neues Endlagergebinde ersetzt und der Zyklus beginnt von Neuem.

Das Kondensat kann weiterverwendet oder recycelt werden und der feste, trockene Rückstand in dem Behälter kann endgelagert werden. Während des Prozesses sorgt ein Kühlwasserrückkühler dafür, dass die Kühlflüssigkeit des Plattenwärmetauschers unter einer definierten Temperaturgrenze liegt, um eine vollständige Kondensation sicherzustellen.

Die MIDD-Anlage wird über eine SPS (Simatic S-7) betrieben. Im Handbetrieb werden die einzelnen Komponenten über ein Touchpanel am Steuerpult angesteuert. Neben allen Massenströmen werden Temperaturen, Füllstände sowie Differenzdrücke überwacht und gemessen, um über eine Gesamtmassenbilanz auf die Dicke der flüssigen Schicht oberhalb des bereits getrockneten Materials rückzuschließen. Diese Schicht ist bedeutend für den automatisierten Betrieb der Anlage. Alle gemessenen Daten werden über einen separaten Datenschreiber visualisiert und dokumentiert. Der Prozess wird über das Touchpanel visualisiert, alle Meldungen werden dokumentiert.

## 2.2 Technische Details

Der MIDD-Prozess ist ein semikontinuierlicher Kristallisationsprozess (siehe Abb. 2). Bevor die Mikrowellenerwärmung beginnt, muss eine definierte Menge an Flüssigabfall bereits in dem Behälter als Vorlage vorhanden sein.

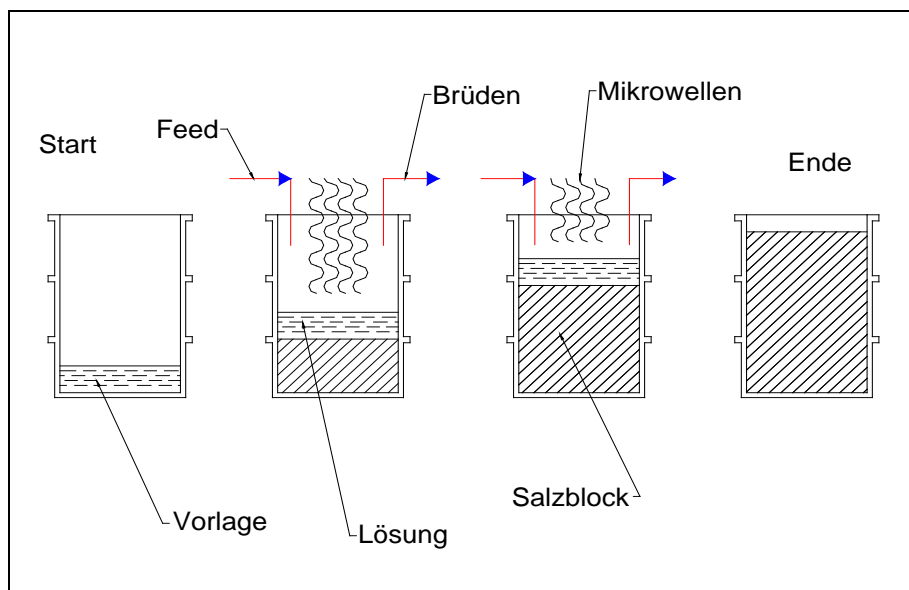


Abb. 2: Schematische Darstellung des MIDD-Prozesses.

Erst dann wird die Lösung durch die Mikrowellenstrahlung erwärmt. Zusätzlich kann der Fassboden induktiv vorgewärmt werden. Die Mikrowellenleistung muss kontinuierlich überwacht und gegebenenfalls angepasst werden, da sich auf Grund des steigenden Salzgehalts in der

Flüssigkeitsschicht der Siedepunkt verschiebt. Bei einem Trocknungsgrad von 20 Gew.-% ist die Lösung gesättigt, und die Konzentration sowie der Siedepunkt bleiben konstant. In diesem Bereich wird die MIDD-Anlage betrieben, um das Kristallwachstum möglichst konstant zu halten. Das Gleichgewicht stellt sich bei ca. 105 °C und ca. 950 mbar (abs.) ein. Wenn die Flüssigkeitszufuhr gegen Ende eines Zykluses gestoppt wird, kommt es zur Störung der homogenen Flüssigkeitsschicht im Behälter, dies führt zu örtlichen Übersättigungen. Auf Grund der geringeren Wärmeleitfähigkeit und -kapazität überhitzt hier die Produktoberfläche. Um dies zu verhindern, wird die Produktoberflächentemperatur und Fasswandtemperatur kontinuierlich über Pyrometer überwacht. Der Temperaturverlauf des Prozesses ist in Abb. 3 zu sehen.

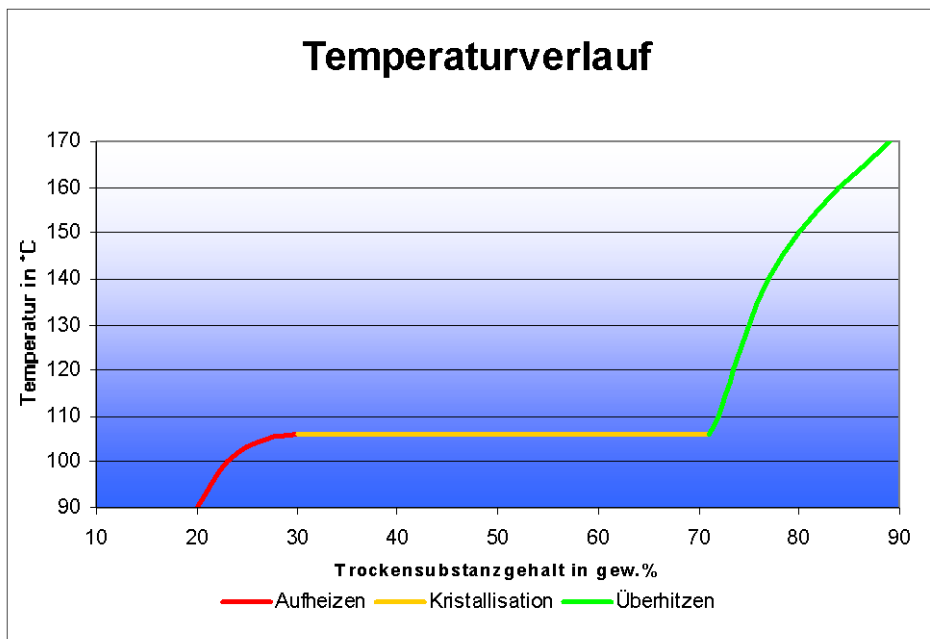


Abb. 3: Temperaturverlauf während des MIDD-Prozesses.

Das Maximum von ca. 70 Gew.-% an Trockensubstanz wurde aus der Massenbilanz ermittelt. Der restliche Wassergehalt wird beim Abkühlen als Kristallwasser gebunden, Der Restfeuchtigkeitsgehalt des Salzblockes beträgt ca. 0,2 Gew.-%.

Die prozessbestimmenden und kontrollierenden Parameter sind die Mikrowellenleistung sowie der Zufluss an Medium (Flüssigkeit). Der Trocknungsgrad ist dabei abhängig von einer genauen Prozesssteuerung. Die in dem Medium gelösten Additive (z. B. 17 Gew.-%  $\text{Na}_2\text{SO}_4$ ) bilden Kristallkomplexe aus, wenn die Temperatur unter einen definierten Wert sinkt. Dabei fällt Natriumsulfat

bei Temperaturen unter ca. 32 °C als hydrierter Komplex (Glaubersalz ( $\text{Na}_2\text{SO}_4 \cdot 10\text{H}_2\text{O}$ )) aus. Um einen bestmöglichen Trocknungsgrad zu erreichen, muss die Mediumtemperatur während des Prozesses stets über dieser Temperaturschwelle gehalten werden. Die Verdampfungskristallisation erfolgt kontinuierlich bis der Behälter vollständig mit getrocknetem Produkt gefüllt ist. Ähnliches gilt für Sägeschlämme, welche Betonreste, Metallspäne, Farbreste usw. enthalten können.

### 2.3 Versuchsergebnisse

Mit der MIDD-Laboranlage wurden diverse Tests durchgeführt, um die Prozessparameter zu optimieren. Die wichtigsten Ergebnisse lieferten Tests mit definierten Simulaten, die anhand von Proben echter Flüssigabfälle ermittelt wurden. Diese bestanden zu ca. 82 %  $\text{H}_2\text{O}$ , 16 %  $\text{Na}_2\text{SO}_4$ , 1 %  $\text{Fe}_2(\text{SO}_4)$  und ca. 1 % Verunreinigungen (Waschmittel, etc.).

Dabei kamen zwei verschiedene Mikrowellengeneratoren (Magnetrons) zum Einsatz, eines mit 6 kW Leistung und eines mit 20 kW Leistung. Mit dem 6-kW-Magnetron wurden in ca. 200 h etwa 1750 kg dieser Lösung eingedampft. Dabei erhielt man ca. 345 kg festes trocknes Salz und ca. 1045 kg an Kondensat. Dabei wurde jeweils kontinuierlich mit 12 kg bis 25 kg Chargen getestet. Mit dem 20-kW-Magnetron wurden in ca. 123 h 1280 kg der Testlösung in 363 kg trockenes Salz und 917 kg Kondensat eingedampft (siehe Abb. 4).

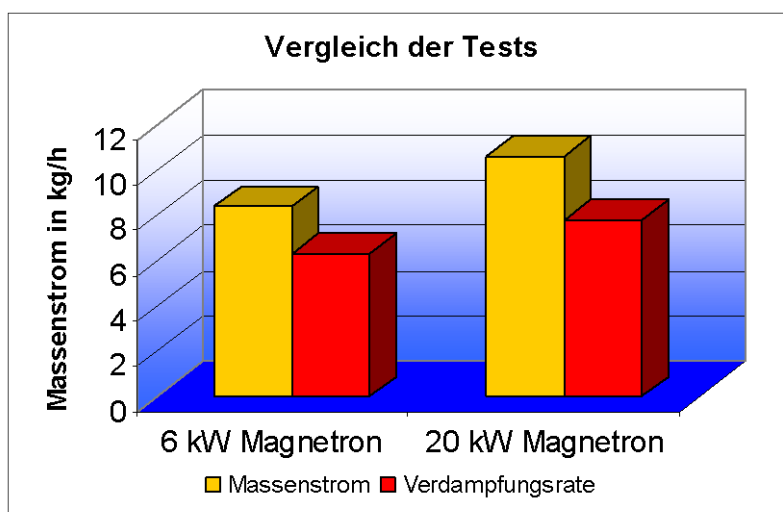


Abb. 4: Vergleich der Ergebnisse bei unterschiedlichen Mikrowellenleistungen.

Anhand der Testergebnisse lässt sich erkennen, dass bei einer Erhöhung der Leistung auch eine Erhöhung des Durchsatzes erzielt wurde. Dabei stieg die Verdampfungsrate von 6,3 kg/h auf 7,8 kg/h. Dass von der ca. 2,5-fachen Magnetronleistung nur ca. 25 % zur Erhöhung der Abdampfleistung beitragen, lässt sich durch die stark erhöhten Reflexionsverluste erklären, welche wiederum durch das begrenzte Volumen (200-l Fass) begründet werden können. Bei weiteren Tests wurde die Feedzufuhr semi- bzw. diskontinuierlich betrieben. Dabei wurde festgestellt, dass eine kontinuierliche Zufuhr die Verdampfungsrate um ca. 20 % verbessert.

Ein weiterer Vorteil der leistungsärmeren Variante war der höhere erzielte Trocknungsgrad, da die Versuche mit dem 20 kW Magnetron nicht kontinuierlich gefahren werden konnten. Während dieser Unterbrechungen sank die Temperatur örtlich unter 32 °C. Dabei wurde unverdampftes Wasser in Kristallkomplexen (Glaubersalz) gebunden. Der mit den 6 kW durchschnittlich erreichte Trocknungsgrad lag bei ca. 82 %.

In späteren Versuchen wurde das 20 kW Magnetron leistungsvariabel eingesetzt, um die Leistung mit der größten Wirkungsgrad zu ermitteln. Die höchsten Verdampfungsraten und der höchste Wirkungsgrad wurden im Bereich des Siedegleichgewichtes ermittelt. Dieses liegt bei ca. 105 °C und einem leichtem Unterdruck von ca. 950 mbar (abs.). Der höchst erzielte Applikatorwirkungsgrad lag bei 77,3 % bei einer Leistung von ca. 9 kW (Behälter: 200-l Fass). Erhöht oder verringert man die Leistung, reduziert sich der Wirkungsgrad um ca. 10 %. Die Abhängigkeit der Verdampfungsrate von der Leistung und damit vom Wirkungsgrad ist in Abb. 5 zu sehen.

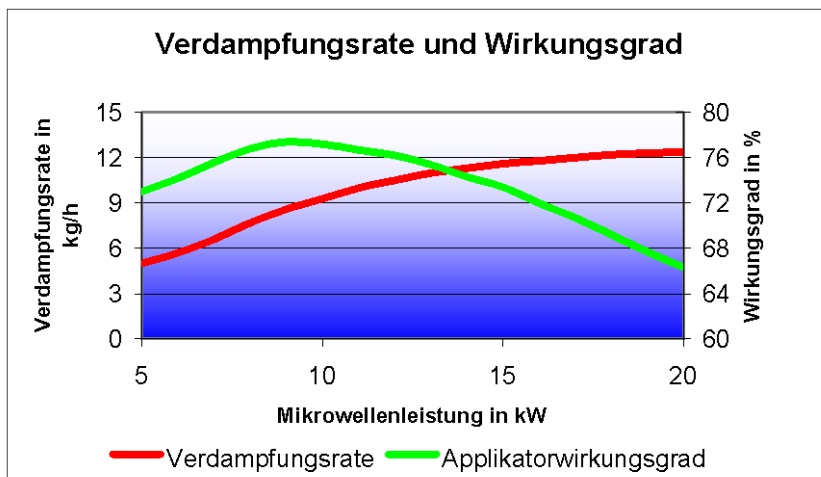


Abb. 5: Verdampfungsrate und Wirkungsgrad in Abhängigkeit der applizierten Mikrowellenleistung.

## 2.4 Entwicklung eines serienreifen Prototyps

Als Ergebnis dieser Tests und weiterer Entwicklungsarbeiten an diesem Prozess hat Linn High Therm einen neuen serienreifen Prototypen einer MIDD-Anlage gebaut (siehe Abbildung 6). Die neue Anlage ist für einen dauerhaften industriellen Einsatz entwickelt und gebaut worden. Die von der Nuklearindustrie geforderten sicherheitstechnischen Einrichtungen wurden in Zusammenarbeit mit einem Partner der deutschen Nuklearindustrie umgesetzt.



Abb. 6: Neuer MIDD-Prototyp

Für den Prozess ist es wichtig, einen möglichst guten Applikatorwirkungsgrad sowie ein möglichst homogenes elektromagnetisches Feld zu erzielen. Dazu wurden in der neuen Anlage das bisher einzelne Magnetron durch neun 900 W Standardmagnetrons ersetzt, welche neben deutlich geringeren Anschaffungskosten gleichzeitig wesentlich höhere Lebensdauer aufweisen. Alle medienberührende Komponenten bestehen aus Edelstahl, Teflon oder Silikon. Bei der Entwicklung wurde ebenfalls darauf geachtet, dass alle Komponenten (siehe Auflistung unten) leicht zu reinigen, zu warten und zu wechseln sind.



### **3 Technische Daten**

Mikrowellenleistung: 9 x 900 W

Induktive Leistung: ca. 1,5 kW (Bodenheizung)

Mikrowellenkammer: entspricht Behältervolumen (z.B. 200-l Fass)

Verdampfungsrate: ca. 8 l/h

Weitere Komponenten:

- Mikrowellenapplikator
- Diverse Fassadapter (z.B. 200-l Fass, 400-l Fass)
- Separates Bedienpult
- SPS System Simatic S7 zur Prozesssteuerung
- Universelle Dosieradapter (z.B. für 200-l Fässer)
- Autarke Stromversorgung (optional).
- 20' Transport-Container (optional).
- Geschlossener Kühlwasserkreislauf

## Mikrowellen-In-Fass-Trocknung (MIDD)

### *Effektives Eindampfen von radioaktiven und toxischen Flüssigabfällen*

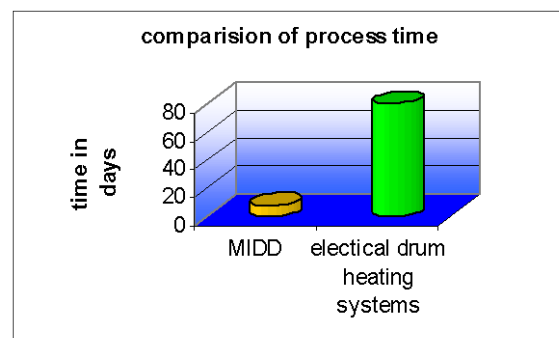
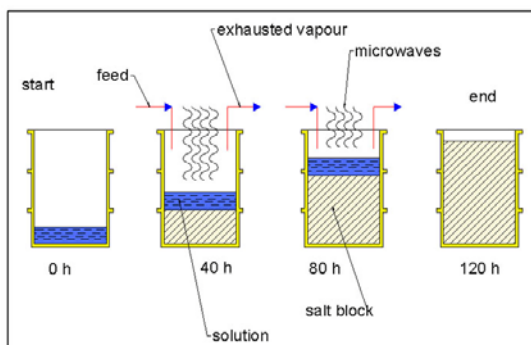
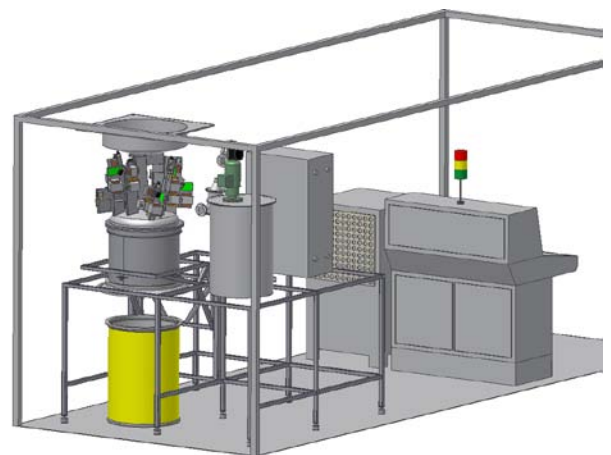
Die „Mikrowellen-In-Fass-Trocknung“ (MIDD) ist ein neuartiges patentiertes Verfahren zum Eindampfen von Flüssigabfällen. Es vereint verschiedene Vorteile, wie z. B. hohe Effizienz, geringen Energieverbrauch, verschiedenste Anwendungsbereiche, gekapselten Betrieb etc. in einer kompakten und mobilen Anlage. Der Flüssigabfall wird direkt in einem passenden Endlagergebinde (z. B. 200 l Fass, 400 l Fass etc.) eingedampft. Das trockene Produkt fällt je nach Prozesssteuerung und Abfallzusammensetzung als fester Salzblock oder loses Pulver an.

#### Technische Daten:

Mikrowellen Leistung:	9 x 900 W
MW-Kammervolumen:	entspricht Fassvolumen
Induktive Leistung:	ca. 1,5 kW
Verdampfungsrate:	ca. 12 l/h

#### MIT Komponenten:

- Mikrowellenapplikator
- Diverse Fass Adaptionen (z.B. 200 l Fass, 400 l Fass, rechteckige Container, Betoncontainer)
- Induktive Fassheizung
- Diverse Adapter für Vorlagebehälter (z.B. 200 l Fass, 400 l Fass)
- Geschlossener Kühlwasserkreislauf
- Prozesssteuerung über SPS
- 20“ Transportcontainer (optional)
- Autarke Stromversorgung (optional)



Die MIDD-Anlage wird semikontinuierlich betrieben. Zu Beginn wird eine definierte Menge an Flüssigabfall in den Endlagerbehälter gepumpt, während eine induktive Heizung diesen vorwärmt. Anschließend beginnt die Mikrowellenerwärmung und Flüssigabfall wird über eine Schlauchpumpe kontinuierlich zugeführt. Der Endlagerbehälter und der Mikrowellenapplikator werden auf ca. 900 mbar evakuiert. Der Dampf wird mit einem Gebläse abgesogen. Ein Tröpfchenabscheider filtert Staubpartikel und mitgerissene Wassertropfen aus dem Dampfstrom, bevor dieser in einem kundenseitigen Plattenwärmetauscher auskondensiert. Am Ende des Prozesses wird die Zufuhr von Flüssigabfall gestoppt und die restliche Flüssigkeit im Endlagerbehälter mit angepasster Mikrowellenleistung verdampft. Je nach Flüssigabfall kann das gesammelte Kondensat weiter verwendet oder recycelt werden. Das Gebinde mit dem festen Abfall kann direkt endgelagert oder zusätzlichen Maßnahmen zur Inertisierung unterzogen werden.

