

Das Trenndüsenverfahren

II. Die physikalischen Grundlagen des Trenneffektes und die spezifischen Aufwandsgrößen des Verfahrens

Von E. W. BECKER, W. BEYRICH *, K. BIER, H. BURGHOFF und F. ZIGAN

Aus dem Physikalischen Institut der Universität Marburg (Lahn)

(Z. Naturforschg. **12 a**, 609—621 [1957]; eingegangen am 13. Juni 1957)

Im Anschluß an eine frühere Arbeit wird mit dem natürlichen $\text{Ar}^{36}/\text{Ar}^{40}$ -Gemisch zunächst der Einfluß der Düsenform und der Gasdrucke auf die Isotopentrennung in einer expandierten Überschallströmung untersucht. Dabei zeigt sich, daß die wesentlichen Züge des Trenneffektes durch das Zusammenwirken von Druckdiffusion und gewöhnlicher Diffusion zu erklären sind. Im zweiten Teil werden mit dem gleichen Isotopengemisch durch systematische Bestimmung der spezifischen Aufwandsgrößen die günstigsten Betriebsbedingungen einer Trennkaskade ermittelt. Aus dem Ergebnis lassen sich die spezifischen Aufwandsgrößen einer mit Uranhexafluorid arbeitenden Anlage abschätzen. Es stellt sich heraus, daß das Trenndüsenverfahren als wirtschaftliche Methode zur Entmischung der Uranisotope in Frage kommt.

Vor einiger Zeit haben wir über ein neues Gas- und Isotopentrennverfahren berichtet, das auf der teilweisen räumlichen Entmischung verschieden schwerer Gase in einer expandierenden Überschallströmung beruht¹. Die Methode ist vor allem für die Uranisotope von Interesse, da ein Ersatz der in den Diffusions-Anlagen verwendeten feinporigen Wände durch „Trenndüsen“ betriebstechnische Vorteile verspricht.

Im Teil A der vorliegenden Arbeit werden die früheren qualitativen Untersuchungen über den Mechanismus des Trenneffektes durch Versuchsreihen ergänzt, bei denen der Einfluß der Düsenform und der Gasdrucke auf die Strahlausbreitung sowie die Größe und den räumlichen Verlauf der Entmischung bestimmt werden. Es zeigt sich, daß die wesentlichen Züge des Trenneffektes durch das Zusammenwirken von Druckdiffusion und gewöhnlicher Diffusion zu erklären sind. Im Teil B werden die günstigsten Betriebsbedingungen einer mit Trenndüsen arbeitenden Kaskade durch systematische Bestimmung der spezifischen Aufwandsgrößen des Verfahrens ermittelt.

Die Versuche wurden mit dem natürlichen Gemisch der Argonisotope Ar^{36} und Ar^{40} durchgeführt, deren Häufigkeitsverhältnis sich massenspektrometrisch besonders schnell und genau bestimmen läßt². Für eine spezielle Kombination der Versuchsbedingungen konnte die Übertragbarkeit der mit den

leichten Isotopen erzielten Ergebnisse auf den Fall des Urans durch Entmischungsversuche mit Uranhexafluorid experimentell nachgewiesen werden³. Die Resultate der vorliegenden Arbeit lassen sich daher unter bestimmten Voraussetzungen zur Abschätzung der spezifischen Aufwandsgrößen einer mit Uranhexafluorid arbeitenden Trennanlage verwenden.

Teil A. Die physikalischen Grundlagen des Trenneffektes

In Abb. 1 ist das Prinzip der Trennanordnung mit den benutzten Symbolen wiedergegeben: das zu zerlegende Gemisch wird mit einer Stromstärke L

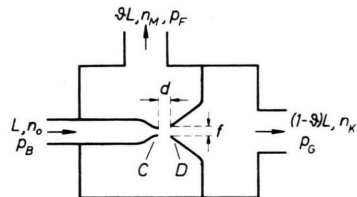


Abb. 1. Schema des Trenndüsen-Elementes mit den verwendeten Bezeichnungen.

unter einem Druck p_B einer Düse C zugeführt, aus der es als Gasstrahl austritt. Eine Abschäblende D zerlegt den Strahl in einen Mantel- und einen Kernteil, die mit den Stromstärken ϑL und $(1 - \vartheta) L$

* Max-Planck-Institut für Kohlenforschung, Mülheim/Ruhr.

¹ E. W. BECKER, K. BIER u. H. BURGHOFF, Z. Naturforschg. **10 a**, 565 [1955]; Die Trenndüse I. Im folgenden als I zitiert.

² Die Isotopen-Analysen wurden mit den im Max-Planck-Institut für Kohlenforschung und im Physikalischen In-

stitut der Universität Marburg stehenden Massenspektrometern der Consolidated-Electrodynamics Corp., Typ 21-103 C ausgeführt. Für die Hilfe bei der Durchführung der Versuche und für die massenspektrometrischen Analysen danken wir Fräulein U. BUSSE und Fräulein D. LAMPE.

³ E. W. BECKER u. R. SCHÜTTE, Z. Naturforschg. **11 a**, 679 [1956].



unter den Drucken p_F und p_G getrennt abgesaugt werden. Wir bezeichnen den Molenbruch der leichten Komponente im Ausgangsgas mit n_0 , im Mantelgas mit n_M und im Kerngas mit n_K und definieren als „Anreicherungsfaktor“ eines binären Gemisches

$$\alpha = n_M(1 - n_0)/n_0(1 - n_M) \quad (1)$$

sowie als „Trennfaktor“

$$A = n_M(1 - n_K)/n_K(1 - n_M). \quad (2)$$

Da α und A bei Isotopengemischen nur wenig von 1 abweichen, ist es zweckmäßig, die Größen

$$\varepsilon_\alpha = \alpha - 1 \quad \text{und} \quad \varepsilon_A = A - 1 \quad (3)$$

einzuführen, die Elementareffekt der Anreicherung und Elementareffekt der Trennung genannt werden.

Für die qualitativen Untersuchungen wurden *runde* Düsen und Abschäler verwendet, die sich leichter mit verschiedenen Formen herstellen lassen als die im Teil B wegen ihres höheren Gasdurchsatzes benutzten Schlitz-Anordnungen. Die untersuchten Düsenformen und der verwendete Abschäler sind in Abb. 2 dargestellt.

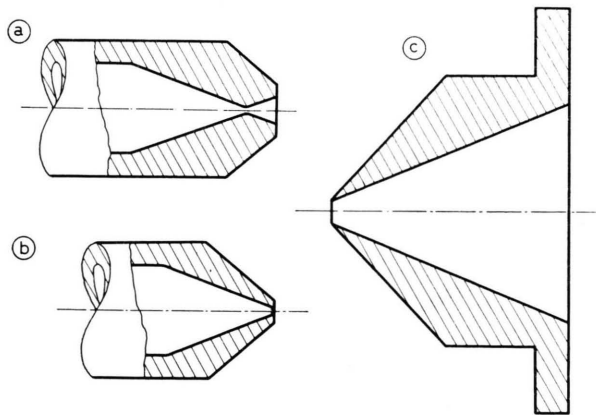


Abb. 2. Die im Teil A der vorliegenden Arbeit benutzten runden Düsen und Abschäler. a) LAVAL-Düse: Mündungsdurchmesser=1,2 mm, engster Durchmesser=0,3 mm, Länge des LAVAL-Kegels = 1,4 mm; b) konvergente Düse: Mündungsdurchmesser=0,3 mm; c) Abschäler: Öffnungsdurchmesser f zwischen 0,3 mm und 2,2 mm, halber Öffnungswinkel: innen 25° , außen 35° .

1. Vergleich des räumlichen Verlaufes der Entmischung bei einer LAVAL-Düse und einer konvergenten Düse

Einen Hinweis auf den Mechanismus des Trenneffektes gewinnt man durch Vergleich des räumlichen Verlaufes der Entmischung bei einer LAVAL-Düse

und einer konvergenten Düse. Der Einlaßdruck betrug bei diesen Versuchen 30 Torr. Die Gegendrucke p_F und p_G wurden so niedrig gewählt ($< 2 \cdot 10^{-2}$ Torr), daß ihre Veränderung keinen merklichen Einfluß auf die Entmischung mehr hatte. Die Versuche wurden unter Variation des Abstandes d zwischen Düse und Abschäleröffnung und des Durchmessers f der Abschäleröffnung so durchgeführt, daß durch Interpolation der Meßwerte die Entfernungsabhängigkeit von ε_A für $\vartheta = \text{const} = 0,2$ ermittelt werden konnte.

Nach Abb. 3 a steigt die Entmischung mit zunehmender Entfernung von der Düsenmündung bei der

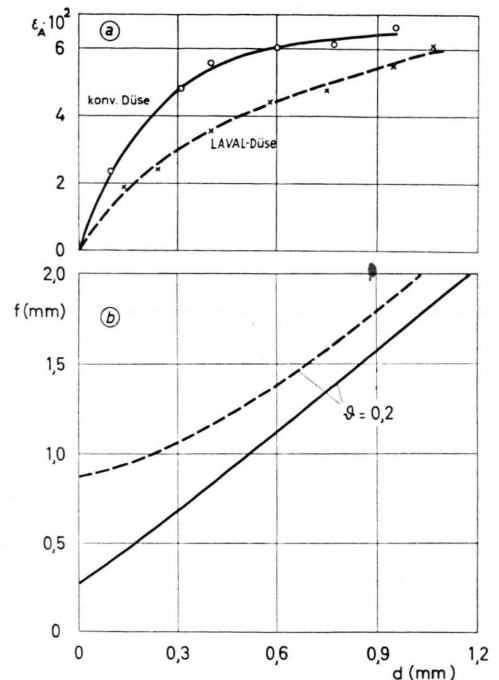


Abb. 3. a) Der räumliche Verlauf der elementaren Entmischung für ein konstantes Abschälverhältnis, $\vartheta=0,2$, bei der konvergenten Düse und der LAVAL-Düse. b) Der für $\vartheta=0,2$ erforderliche Abschälerdurchmesser f in Abhängigkeit vom Abstand d zwischen Düsenmündung und Abschäleröffnung (Strahlausbreitung). Einlaßdruck $p_B=30$ Torr, Gegendrucke p_F und $p_G < 2 \cdot 10^{-2}$ Torr. Der Gasdurchsatz betrug bei beiden Düsen $\approx 1,5$ nl Argon/h.

konvergenten Düse wesentlich steiler an als bei der LAVAL-Düse. Da der mit der konvergenten Düse erzeugte Strahl nach Abb. 3 in kleinen Entfernungen von der Düsenmündung eine stärkere relative Querverexpansion zeigt, liegt es nahe, die mit der Querverexpansion verbundene *Druckdiffusion* als Ursache

des Trenneffektes anzusehen⁴. Da der Druckdiffusionsstrom mit fortschreitender Entmischung schließlich durch den gewöhnlichen Diffusionsstrom kompensiert wird, kann die Entmischung wie in Abb. 3 einen Grenzwert erreichen, noch bevor die Expansion vollständig abgelaufen ist. Eine Überschreitung der für die maximale Entmischung erforderlichen „Grenz-Expansion“ ist demnach für den gewünschten Effekt nutzlos.

Nach Abb. 3 a verläßt der Strahl nicht nur die konvergente Düse, sondern auch die LAVAL-Düse praktisch ohne Entmischung, obwohl in dem Kegel der LAVAL-Düse bereits eine erhebliche Expansion stattgefunden hat. Das Fehlen der Anfangsentmischung bei der LAVAL-Düse ist darauf zurückzuführen, daß der Kegel während der Expansion das Auftreten des für die Entmischung maßgeblichen Druckgefälles in der zur Düsenachse senkrechten Richtung weitgehend verhindert. Daß die mit der LAVAL-Düse erzielte Entmischung in dem betrachteten Fall, trotz der nutzlosen VorexpanSION, den Grenzwert der konvergenten Düse erreicht, beruht auf den sehr niedrigen Gegendruck p_G und p_F , die eine genügende Nachexpansion des freien Strahls ermöglichen. Durch die wesentlich größere MACH-Zahl, mit der der Strahl die LAVAL-Düse verläßt, verläuft die freie Expansion und damit die Entmischung bei dieser Düse aber räumlich gedehnter als bei der konvergenten⁵.

2. Einfluß des vorderen Gegendruckes

Bei einer praktischen Anwendung des Verfahrens sind die Gegendrucke p_F und p_G , zur Verminderung des Ansaugvolumens und der Kompressionsarbeit der Pumpen, so hoch wie möglich zu wählen. Es soll zunächst der Einfluß von p_F untersucht werden.

⁴ In I haben wir den Trenneffekt auf die schnellere ungeordnete Molekularbewegung des leichteren Partners zurückgeführt, wobei vorausgesetzt wurde, daß die Teilchen weitgehend unabhängig voneinander ausscheiden können. Aus der vorliegenden Untersuchung geht hervor, daß ein erheblicher Trenneffekt auch noch unter Druckbedingungen zu beobachten ist, bei denen Mehrfachstöße auftreten (vgl. dazu I, Anm. 6). Die entsprechenden Effekte lassen sich qualitativ auf den in der allgemeinen Diffusionsgleichung vorkommenden Term der „Druckdiffusion“ zurückführen, wie in Abs. 5 näher erläutert wird. Nach den dort entwickelten theoretischen Vorstellungen hängt die für die Entmischung maßgebliche Komponente des Druckdiffusionsstromes mit der Krümmung der Stromlinien zusammen. Da durch den Abschälvorgang die Strahlausbreitung möglicherweise gestört wird, bleibt es offen, inwieweit die

Durch eine Erhöhung des vorderen Gegendruckes p_F wird das Expansionsgebiet räumlich eingeschränkt, da die Expansion des Strahls aufhört, sobald seine Dichte die der Umgebung erreicht hat. Der Effekt ist in Abb. 4 b zu erkennen, in der Kurven mit konstantem Abschälverhältnis ϑ für einen Strahl wiedergegeben sind, der mit der konvergenten Düse bei einem Einlaßdruck $p_B = 30$ Torr und einem vorderen Gegendruck $p_F = 0,5$ Torr erzeugt wurde. Aus Abb. 4 a geht hervor, daß die Entmischung beim

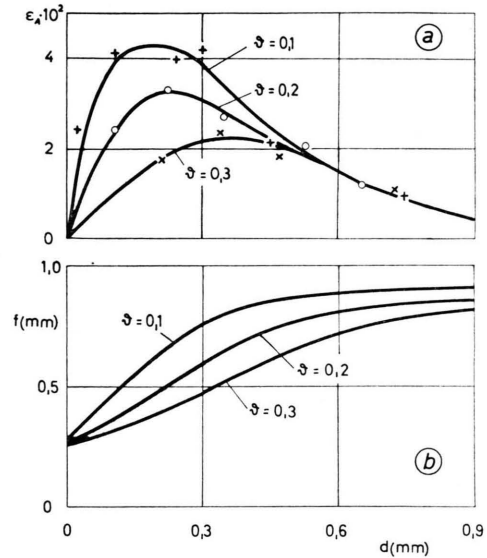


Abb. 4. Der räumliche Verlauf der Entmischung (a) und die Strahlausbreitung (b) bei einem Gegendruck $p_F = 0,5$ Torr für die Abschälverhältnisse $\vartheta = 0,1, 0,2$ und $0,3$. (Konvergente Düse bei einem Einlaßdruck $p_B = 30$ Torr, $p_G = p_F$.)

Nachlassen der Expansion sofort abgebaut wird. Ein Vergleich der Kurven mit verschiedenem ϑ zeigt, daß die Expansion in den Randzonen des Strahls schneller verläuft als in den Kernzonen und zu höheren Werten der Entmischung führt. Da die Expan-

in Abb. 3 b sowie 4 b und 7 c dargestellte Entfernungsabhängigkeit des für ein bestimmtes Abschälverhältnis erforderlichen Abschälerdurchmessers mit den Stromlinien identisch ist.

⁵ Eine Düse, deren Mündung als zylindrischer Kanal ausgebildet ist („Kanal Düse“), liefert innerhalb der Fehlergrenze dieselben Ergebnisse wie die in Abb. 2 gezeigte konvergente Düse, sofern sie bei gleichem Mündungsdurchmesser mit demselben Gasdurchsatz betrieben wird. Da hierzu ein höherer Einlaßdruck erforderlich ist, stellt der Kanal wirtschaftlich gesehen einen Nachteil dar. Für die Praxis kann jedoch ein kurzer Kanal, durch den der erforderliche Einlaßdruck noch nicht wesentlich erhöht wird, deshalb vorteilhaft sein, weil er einfachere Herstellungsverfahren für die Düse ermöglicht.

sion der Randzonen früher abgeschlossen ist, erreichen die Entmischungskurven mit kleinem ϑ ihr Maximum in geringerer Entfernung von der Düsenmündung als die mit großen Werten des Abschälverhältnisses (vgl. auch Abb. 7).

Eine Erhöhung des vorderen Gegendruckes muß sich bei der LAVAL-Düse wesentlich früher bemerkbar machen als bei der konvergenten Düse, da die für die Entmischung maßgebliche Expansion bei der LAVAL-Düse in einem erheblich niedrigeren Druckbereich vor sich geht. Abb. 5 zeigt die Wirkung einer

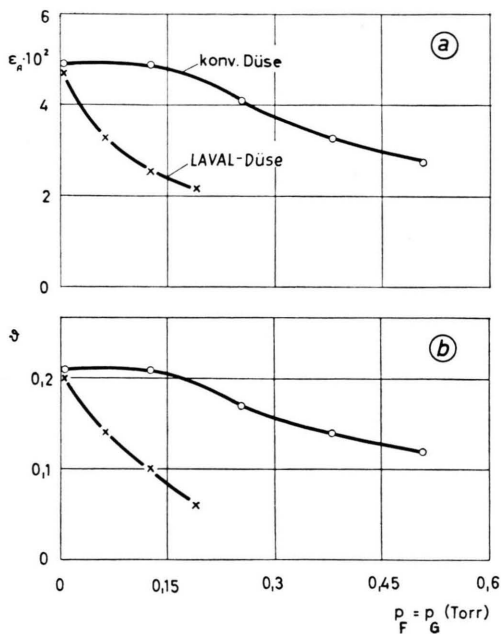


Abb. 5. Der Einfluß des vorderen Gegendruckes p_F auf die Entmischung (a) und das Abschälverhältnis ϑ (b) für die konvergente Düse und die LAVAL-Düse bei konstanter Abschäl-Geometrie ($p_B=30$ Torr, $p_G=p_F$).

Erhöhung des vorderen Gegendruckes für beide Düsen bei konstanter Abschäl-Geometrie. Der Abstand d und die Abschälerweite f wurden so gewählt, daß sich für beide Düsen bei niedrigen Werten von p_F annähernd gleiche Entmischungen und gleiche Abschälverhältnisse ergaben. Man bemerkt, daß die Trennwirkung der LAVAL-Düse durch eine Erhöhung von p_F erwartungsgemäß wesentlich stärker beeinträchtigt wird als die der konvergenten Düse. Aus dem unteren Teil der Abbildung geht hervor, daß die Abnahme der Entmischung wieder mit einer Einschränkung der Strahlausbreitung parallel geht, die sich bei konstanter Abschäl-Geometrie in einer Verminderung des Abschälverhältnisses äußert.

3. Einfluß des hinteren Gegendruckes

Gegen eine Erhöhung des hinteren Gegendruckes p_G ist die Entmischung wesentlich unempfindlicher als gegen eine Erhöhung von p_F , da das Schicksal des Gases, welches den Abschäler bereits passiert hat, für die Entmischung nicht mehr von Bedeutung ist. Eine Erhöhung von p_G gegenüber p_F ist in dem Umfang möglich, wie auf Grund der kinetischen Energie des Strahls noch ein genügender Durchtritt des Gases durch den Abschäler gegen das aufgebaute Druckgefälle erfolgt.

Aus den in Abb. 6 dargestellten Versuchsreihen geht hervor, daß der mögliche Rückstau bei der konvergenten Düse bedeutend größer ist als bei der

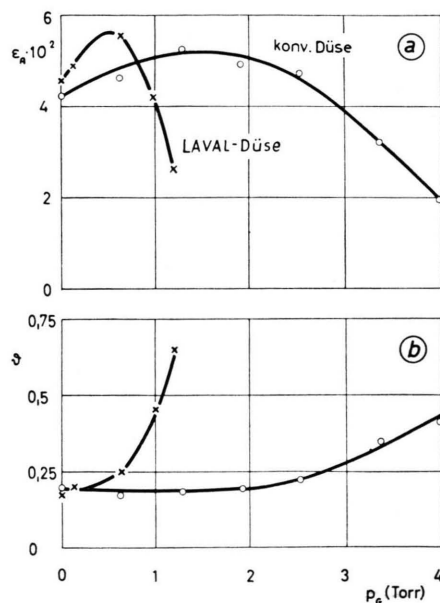


Abb. 6. Die Abhängigkeit der Entmischung (a) und des Abschälverhältnisses (b) vom hinteren Gegendruck p_G für die konvergente Düse und die LAVAL-Düse bei konstanter Abschäl-Geometrie ($p_B=30$ Torr, $p_F < 2 \cdot 10^{-2}$ Torr).

LAVAL-Düse, was auf der größeren Stromdichte des mit der konvergenten Düse erzeugten Strahls am Ort des Abschälers beruht. Bemerkenswert ist, daß die Erhöhung von p_G zunächst keine Verschlechterung, sondern eine Verbesserung der Trennung zur Folge hat. Der Effekt ist auf die Druckdiffusion zurückzuführen, die in der negativen Strahlrichtung als Folge des Rückstaus auftritt. Der mit dem Rückstau des Kerngases verbundene zusätzliche Trenneffekt ist für die praktische Anwendung des Verfahrens von erheblicher Bedeutung.

4. Einfluß des Einlaßdruckes

Bei den bisher beschriebenen Versuchen wurde der Einlaßdruck p_B konstant gehalten. Dabei ergab sich für jedes Abschälverhältnis ein maximaler Grenzwert der Entmischung, für dessen Erreichung bestimmte Expansionsverhältnisse p_B/p_F und p_B/p_G erforderlich waren. Es ist nun zu untersuchen, wie die Grenzwerte der Entmischung vom Einlaßdruck p_B abhängen.

Bei den in Abb. 7 dargestellten Versuchen, die mit Einlaßdrücken von 30 und 80 Torr durchgeführt wurden, lagen die Gegendrucke p_G und p_F wieder so niedrig, daß ihre Variation keinen merklichen Einfluß auf die Entmischung hatte. Aus den Teilen a und b der Abbildung geht hervor, daß die Entmischung durch die Druckerhöhung etwa halbiert wird, obwohl sich die Strahlausbreitung nach Teil c nur wenig ändert. Der Effekt ist damit zu erklären, daß der Einstrom des ungetrennten Gases mit steigendem Einlaßdruck etwa linear zunimmt, während das für den Druckdiffusionsstrom maßgebliche relative Druckgefälle (vgl. Abs. 5) annähernd vom Einlaßdruck unabhängig ist⁶).

Die Grenzentmischung für ein festes Abschälverhältnis läßt sich demnach bei einer Erhöhung des Einlaßdruckes nur dann aufrechterhalten, wenn durch Verminderung der Düsenweite der Gasdurchsatz ungefähr konstant gehalten wird⁷. Eine untere Grenze für die Düsenweite und damit eine obere Grenze für den Einlaßdruck ist in der Praxis durch mechanische Probleme und durch den Einfluß der Gasreibung gegeben, der wegen des resultierenden zusätzlichen Druckabfalls die erforderlichen Expansionsverhältnisse erhöht.

5. Möglichkeiten zur quantitativen Beschreibung des Trenneffektes

Da ein wesentlicher Teil der Entmischung unter Druckbedingungen stattfindet, bei denen die mittlere freie Weglänge im Strahl erheblich kleiner als die Strahlbreite ist, liegt es nahe, zur quantitativen Beschreibung des Trenneffektes den allgemeinen Dif-

⁶ Wenn durch die Wahl eines höheren Gegendruckes p_F das Expansionsverhältnis p_B/p_F merklich kleiner gemacht wird als das Grenzexpansionsverhältnis (vgl. Abschn. 1), ist die relative Abnahme der Entmischung bei einer Erhöhung von p_B naturgemäß kleiner als in dem oben für sehr niedrige Gegendrucke diskutierten Fall.

⁷ Wie aus den früheren Untersuchungen¹ hervorgeht, läßt sich die Entmischung durch Verminderung des Einlaßdruckes bei konstanter Düsenweite nicht beliebig steigern.

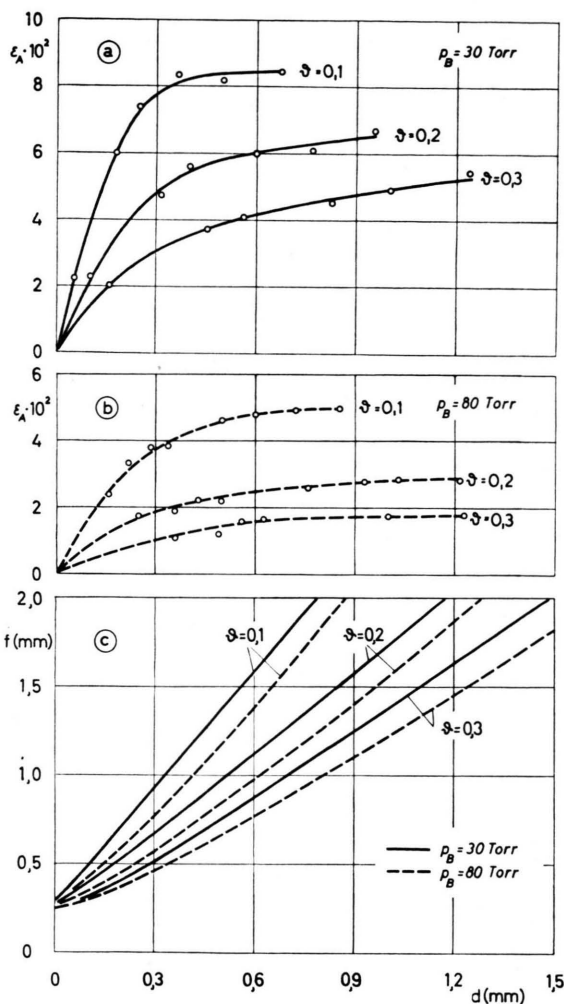


Abb. 7. Der räumliche Verlauf der Entmischung für konstantes Abschälverhältnis θ bei verschiedenen Einlaßdrücken: a) $p_B = 30$ Torr, b) $p_B = 80$ Torr. Teil c enthält für beide Einlaßdrücke die zugehörigen Kurven der Strahlausbreitung. (Konvergente Düse, p_F und $p_G < 2 \cdot 10^{-2}$ Torr, Argon-Durchsatz bei $p_B = 30$ Torr: 1,5₅ nl/h, bei $p_B = 80$ Torr: 4,3₅ nl/h.)

fusionsansatz der kinetischen Gastheorie heranzuziehen. Für die Diffusionsstromdichte b in einem binären Gasmisch erhält man in erster Näherung den Ausdruck⁸

Die Wiederabnahme der Entmischung bei kleinen Einlaßdrücken ist auf den allmählichen Übergang der gasdynamischen in eine molekulare Strömung zurückzuführen.

⁸ S. CHAPMAN u. T. G. COWLING, The Mathematical Theory of Non-Uniform Gases, Cambridge University Press, London 1952 (2nd edition), Gl. 14.1.1. Der dort noch einbezogene Einfluß von äußeren Kräften, die nicht zur Masse proportional sind, braucht hier nicht berücksichtigt zu werden. Es ist noch offen, inwieweit die erste Näherung zur Beschreibung der vorliegenden Verhältnisse ausreicht.

$$b = \nu n_1 n_2 (\bar{c}_1 - \bar{c}_2) = -\nu D_{12} \left\{ \text{grad } n_1 + n_1 n_2 \cdot \frac{m_2 - m_1}{n_1 m_1 + n_2 m_2} \frac{1}{p} \text{grad } p + \frac{k_T}{T} \text{grad } T \right\}. \quad (4)$$

wobei \bar{c}_1 und \bar{c}_2 die mittleren Molekelgeschwindigkeiten, m_1 und m_2 die Molekelmassen und n_1 und n_2 die Molenbrüche der Gaskomponenten 1 und 2 bedeuten; ν ist die Gesamt-Teilchendichte, D_{12} die gegenseitige Diffusionskonstante, k_T das Thermodiffusionsverhältnis, p der Druck und T die absolute Temperatur⁹. Die drei Terme der Diffusionsstromdichte entsprechen der gewöhnlichen Diffusion, der Druckdiffusion und der Thermodiffusion. Während die gewöhnliche Diffusion den Ausgleich eines vorhandenen Konzentrationsgefälles anstrebt, wird durch die Druckdiffusion und die Thermodiffusion ein Konzentrationsgefälle aufgebaut, wenn ein Druck- bzw. Temperaturgradient vorhanden ist. Das Vorzeichen der Thermodiffusion hängt über k_T außer von der relativen Massendifferenz von den zwischenmolekularen Kräften ab. Dagegen liegt das Vorzeichen der Druckdiffusion in dem Sinne fest, daß die leichteren Molekeln bevorzugt in Richtung des niedrigeren Druckes wandern. Da νD_{12} nicht vom Absolutdruck abhängt, ist der Druckdiffusionsstrom nach Gl. (4) proportional zum relativen Druckgefälle.

Beim Trenndüseneffekt ist neben der Druckdiffusion im Prinzip auch die Thermodiffusion zu berücksichtigen, da beim Expansionsprozeß beträchtliche Temperaturniedrigungen stattfinden können¹⁰. Dabei wirkt die Thermodiffusion im allgemeinen der Druckdiffusion entgegen, weil durch die Thermodiffusion gewöhnlich die *schwerere* Komponente eine Vorzugsgeschwindigkeit in Richtung fallender Temperatur, bei der Strahlexpansion also in Richtung des Druckgefälles, erhält. Ein Vergleich von Druckdiffusionsstrom und Thermodiffusionsstrom ist möglich, wenn die bei dem Expansionsprozeß vorliegende Koppelung zwischen dem Druck- und dem Temperaturgradienten in Gl. (4) eingeführt wird. Nimmt man für eine Abschätzung an, daß der Expansionsvorgang isentropisch mit konstanter spezifischer Wärme verläuft, so ergibt sich durch Kombination der Adiabaten Gleichung mit der Beziehung $p = \nu k T$

$$\frac{1}{T} \text{grad } T = \frac{\kappa - 1}{\kappa} \frac{1}{p} \text{grad } p \quad (5)$$

(κ = Adiabatenexponent).

Führt man außerdem an Stelle von k_T den bei Isotopen vom Molenbruch praktisch unabhängigen Thermodiffusionsfaktor $\sigma = k_T/n_1 n_2$ ein, so erhält man

$$b = -\nu D_{12} \left\{ \text{grad } n_1 + n_1 n_2 \left[\frac{m_2 - m_1}{n_1 m_1 + n_2 m_2} + \frac{\sigma(\kappa - 1)}{\kappa} \right] \frac{1}{p} \text{grad } p \right\}. \quad (6)$$

Aus dieser Gleichung folgt für das natürliche Gemisch der Argonisotope Ar^{36} und Ar^{40} mit dem Wert¹¹ $\sigma(\text{Ar}^{36}/\text{Ar}^{40}) \approx -0,015$, daß der Thermodiffusionsstrom ungefähr 17-mal kleiner ist als der Druckdiffusionsstrom. Nach dieser Abschätzung kann also die Thermodiffusion im Vergleich zur Druckdiffusion beim Argon vernachlässigt werden. Der Trenneffekt ist damit im wesentlichen durch die Konkurrenz zwischen dem entmischenden Druckdiffusionsstrom und dem vermischenden, gewöhnlichen Diffusionsstrom zu beschreiben.

Bei einer Berechnung der elementaren Entmischung muß der integrale Diffusionsstrom B bestimmt werden, der durch eine zwischen der Düsenmündung und dem Abschälerrand liegende Fläche $\vartheta = \text{const}$ hindurchtritt. Mit den Molenbrüchen der leichten bzw. schweren Komponente im Ausgangsgemisch,

$$n_{10} \equiv n_0 \quad \text{bzw.} \quad n_{20} \equiv 1 - n_0,$$

erhält man für das Mischungsverhältnis der beiden Komponenten im Raum außerhalb der Fläche $\vartheta = \text{const}$

$$\frac{n_M}{1 - n_M} = \frac{n_0 \vartheta L + B}{(1 - n_0) \vartheta L - B}. \quad (7)$$

Im Fall kleiner Konzentrationsverschiebungen, wie er bei Isotopen mit kleiner relativer Massendifferenz vorliegt, folgt als Elementareffekt der Trennung:

$$\varepsilon_A \approx \frac{B}{n_0(1 - n_0) \vartheta(1 - \vartheta) L}. \quad (8)$$

Für eine numerische Berechnung von B müssen der Druck und die Temperatur sowie die Gradienten dieser Größen längs der Fläche $\vartheta = \text{const}$ bekannt

⁹ Bei dem Näherungsverfahren sind der Druck und die Temperatur einheitlich durch die Mittelwerte $p = (\nu/3) \cdot m \bar{c}^2$ und $T = (1/3 k) \cdot m \bar{c}^2$ definiert (\bar{c} = Teilchengeschwindigkeit relativ zur Schwerpunktschwindigkeit des Gemisches).

¹⁰ Beispielsweise sinkt die absolute Temperatur beim Argon bei einer adiabatischen Expansion um den Faktor 100 etwa auf $\frac{1}{3}$ des Anfangswertes.

¹¹ S. CHAPMAN u. T. G. COWLING, I. c. ⁸, S. 417.

sein. Die entsprechenden Werte lassen sich im Prinzip durch eine theoretische Behandlung der freien Expansion eines Überschallstrahles gewinnen.

Eine Abschätzung der auf Grund der Druckdiffusion zu erwartenden Entmischungseffekte ist ohne die schwierige Berechnung der Strahlausbreitung möglich, wenn man aus dem empirisch gewonnenen Verlauf der Flächen $\vartheta = \text{const}^4$ (vgl. die Abb. 3, 4 und 7) mit plausiblen Annahmen über die Strömungsgeschwindigkeit den relativen Gradienten der Teilchendichte ermittelt. Bei einer solchen Abschätzung ergibt sich zwar eine größenordnungsmäßige Übereinstimmung des Ergebnisses mit den beobachteten Entmischungseffekten, doch reicht die Genauigkeit für eine theoretische Bestimmung der optimalen Betriebsbedingungen einer Kaskade nicht aus. Man ist daher bei der Lösung des Optimalproblems auf experimentelle Untersuchungen angewiesen.

Teil B. Die günstigsten Betriebsbedingungen

Bei einer praktischen Anwendung des Verfahrens muß der elementare Trenneffekt durch Hintereinanderschalten einer großen Zahl von Trennelementen in einer Trennkaskade vervielfacht werden. Aufgabe der Kaskade ist es, einen Molenstrom F des Ausgangsmaterials in einen Produktstrom P mit dem Molenbruch n_p , und einen Abfallstrom W mit dem Molenbruch n_w zu zerlegen. Es ist festzustellen, unter welchen Betriebsbedingungen und durch welche Zusammenschaltung der Trennelemente die Trennaufgabe mit dem kleinstmöglichen Gesamtaufwand gelöst werden kann.

1. Anwendung der Kaskadentheorie auf das Trenndüsenverfahren

Die analytischen Voraussetzungen zur Ermittlung der günstigsten Betriebsbedingungen und zur Berechnung der spezifischen Aufwandsgrößen des Verfahrens ergeben sich im Rahmen der von COHEN, BENEDICT, DIRAC u. a. entwickelten Kaskadentheorie ohne Spezialisierung auf eine bestimmte Trennaufgabe¹². Unter der Voraussetzung, daß die Elemente so zusammengeschaltet sind, daß nur Ströme mit

gleicher Isotopenzusammensetzung vermischt werden, gilt

$$\frac{\text{Trennaufwand der Kaskade}}{P V_{\text{ges.}}} = \frac{\text{Trennaufwand des Elementes}}{\delta U} \quad (9)$$

Darin bedeutet $V_{\text{ges.}}$ die „Wertfunktion“ der Kaskade, die die Abhängigkeit des Trennaufwandes zur Erzeugung einer bestimmten Molmenge Isotopengemisch von der Produktionskonzentration n_p , der Ausgangskonzentration n_0 und der Abfallkonzentration n_w angibt. δU ist die „Werterzeugung“ des Einzelelementes, die auch „Trennpotential“ oder „Separative Power“ genannt wird. Für δU liefert die Theorie

$$\delta U = \frac{L}{2} \varepsilon_a^2 \frac{\vartheta}{1-\vartheta} = \frac{L}{2} \varepsilon_A^2 \vartheta (1-\vartheta) \quad (10)$$

Da die „Werterzeugung der Kaskade“, $P V_{\text{ges.}}$, definitionsgemäß von den Betriebsbedingungen unabhängig ist, spiegelt sich der Einfluß der Betriebsbedingungen auf den Trennaufwand der Kaskade vollständig in dem Verhältnis von Trennaufwand und Werterzeugung des Einzelelementes wider, das im folgenden „spezifischer Aufwand“ genannt wird¹³.

Der Trennaufwand des Elementes setzt sich hauptsächlich zusammen aus

1. den Kosten für elektrische Energie,
2. dem Kapitaldienst und den laufenden Reparaturkosten für die Kompressoren, Ventile und Rohrleitungen,
3. dem Kapitaldienst und den laufenden Reparaturkosten für die Schlitzdüsen nebst ihren Gehäusen und Steuereinrichtungen.

Die drei Anteile sind im wesentlichen zu folgenden physikalisch erfaßbaren Größen proportional:

1. der idealen isothermen Kompressionsarbeit,
2. dem Ansaugvolumen der Kompressoren,
3. der Schlitzlänge.

Für den spezifischen Aufwand ergibt sich daher aus (9) und (10):

$$\begin{aligned} \text{spezifischer Aufwand} &= \frac{2}{L \varepsilon_A^2 \vartheta (1-\vartheta)} \\ &\cdot [c_1 \cdot \text{id. isotherm. Kompr.-Arbeit} \quad (11) \\ &+ c_2 \cdot \text{Ansaugvol.} + c_3 \cdot \text{Schlitzlänge}]. \end{aligned}$$

düseneffekt trifft diese Voraussetzung, nach dem Modell der Druckdiffusion, nur für Isotopengemische mit kleiner relativer Massendifferenz zu.

¹³ Vgl. dazu E. W. BECKER, Die Anreicherung des leichten Uranisotops nach dem Diffusionsverfahren, Chemie Ing. Technik, 29, 365 [1957].

¹² Vgl. z. B. K. COHEN, The Theory of Isotope Separation as applied to the large Scale Production of U^{235} , McGraw Hill, New York 1951. Die Kaskadentheorie basiert auf der Voraussetzung, daß der durch Gl. (1) definierte Anreicherungsfaktor und der Trennaufwand des Elementes von der Stellung des Elementes in der Kaskade, d. h. vom mittleren Molenbruch n unabhängig sind. Beim Trenn-

Die Konstante c_1 enthält neben dem Strompreis den Wirkungsgrad der Kompressoren, während c_2 und c_3 außer von den Apparatkosten von der geforderten Verzinsungs- und Amortisierungsrate des Kapitals abhängen. Da die Konstanten nicht allgemein anzugeben sind, ist es notwendig, die 3 Summanden des spezifischen Aufwandes *getrennt* in Abhängigkeit von den Betriebsbedingungen zu untersuchen. Bei Einführung der unmittelbar zugänglichen Meßgrößen erhält man

$$\text{Spezifische Kompr.-Arbeit} = \frac{2 R T}{\varepsilon_A^2 \vartheta (1-\vartheta)} \left[\vartheta \ln \left(\frac{P_B}{P_F} \right) + (1-\vartheta) \ln \left(\frac{P_B}{P_G} \right) \right] \quad (12)$$

$$\text{Spezifisches Ansaugvolumen} = \frac{2 R T}{\varepsilon_A^2 \vartheta (1-\vartheta)} \left[\frac{\vartheta}{P_F} + \frac{1-\vartheta}{P_G} \right], \quad (13)$$

$$\text{Spezifische Schlitzlänge} = \frac{2}{\varepsilon_A^2 \vartheta (1-\vartheta)} \frac{\text{Schlitzlänge}}{L}, \quad (14)$$

Die spezifische Kompressionsarbeit (z. B. in kWh/Mol des Produktes) gibt bei einem Kompressorwirkungsgrad 1 den Stromverbrauch einer mit der Wertfunktion 1 arbeitenden idealen Trennkaskade bei der Herstellung von 1 Mol des Produktes an. Die Wertfunktion ist beispielsweise gleich 1 für eine Anlage, deren Anreicherungsanteil den U^{235} -Gehalt von der natürlichen Häufigkeit (0,714%) auf 1,65% erhöht, während der Abstreifanteil den U^{235} -Gehalt auf die Hälfte des Ausgangswertes erniedrigt. Das spezifische Ansaugvolumen (z. B. in m^3/Mol) gibt das von den Kompressoren dieser Anlage während der Produktion von 1 Mol insgesamt anzuzugende Gasvolumen an. Die spezifische Schlitzlänge (z. B. in $\text{m}/\text{Mol}/\text{Stde.}$) gibt die Gesamtlänge aller Düsenschlitzte einer mit der Wertfunktion 1 arbeitenden Anlage an, die 1 Mol Produkt pro Stunde erzeugt.

2. Der Variationsbereich der Betriebsbedingungen

Die willkürlich veränderlichen Betriebsbedingungen sind:

1. Die Form und die Weite der Düse.
2. Die Form und die Weite des Abschälers sowie der Abstand zwischen Düse und Abschäler.
3. Die Einlaßtemperatur T des Gases.
4. Die Drucke p_B , p_F und p_G .

Als abhängige Meßgrößen ergeben sich: der Durchfluß L durch die Düse, das Abschälverhältnis ϑ und der Elementareffekt der Trennung, ε_A .

Bei der großen Zahl der Parameter, die zur Lösung des Optimalproblems variiert werden müssen, war es notwendig, den erforderlichen Variationsbereich soweit als möglich einzuschränken. Dabei waren folgende Überlegungen maßgeblich:

1. Die Untersuchungen über den Einfluß der *Düsenform* haben gezeigt, daß eine *konvergente* Düse einer LAVAL-Düse bei der praktischen Anwendung mit Sicherheit überlegen ist, da im LAVAL-Kegel eine für die Trennung nutzlose Vorexpanansion abläuft, die das spezifische Ansaugvolumen und die spezifische Kompressionsarbeit beträchtlich erhöht. Die *Düsenweite* soll möglichst klein sein, da das für die Trennung maßgebliche Verhältnis von Druckdiffusionsstrom und Einstrom des ungetrennten Gases, bei vorgegebenem Einlaßdruck, mit abnehmender Düsenweite ansteigt. Eine untere Grenze für die Düsenweite ist dabei durch den Einfluß der Gasreibung gegeben. Die Untersuchungen wurden in der vorliegenden Arbeit auf eine 0,1 mm weite konvergente Schlitzdüse beschränkt, die mit Argon im untersuchten Bereich des Einlaßdruckes etwa die Hälfte des für eine reibungsfreie Strömung berechneten Durchflusses liefert.

2. Der Abschäler wurde dachförmig ausgebildet, damit die Expansion des Strahls möglichst wenig durch die von der Außenseite des Abschälers ausgehenden Verdichtungsstöße gestört wird. Eingehendere Untersuchungen über den Einfluß der äußeren und inneren Form des Abschälers auf die spezifischen Aufwandsgrößen sind noch im Gange. In der vorliegenden Arbeit wurde lediglich die Abschälerweite f und der Abstand d zwischen Düse und Abschäler variiert, die zusammen die Abschäl-Geometrie bestimmen. Der Variationsbereich der Abschäl-Geometrie wurde so gewählt, daß sich ohne Rückstau des Kerngases Abschälverhältnisse zwischen 0,1 und 0,5 ergaben. ϑ -Werte unter 0,5 sind deshalb vorteilhaft, weil das Kerngas bei Ausnützung des Rückstaus unter wesentlich höheren Drucken als das Mantelgas anfällt. Abschäl-Geometrien, die Abschälverhältnisse unter 0,1 liefern, sind andererseits problematisch, weil sie, infolge der unvollständigen Ausfüllung des Abschälers durch den Strahl, eine schlechte Rückstaufähigkeit des Kerngases liefern. Die gewünschten Abschälverhältnisse wurden mit Abständen d unter 0,3 mm realisiert, da sich nach den Vorversuchen in *kurzen* Entfernungen von der Düsenmündung besonders günstige Verhältnisse von Entmischung und notwendiger Expansion des Strahls ergeben (vgl. Abb. 4).

3. Die Entmischungsversuche wurden auf Zimmertemperatur beschränkt, da nach den theoretischen Vorstellungen über den Trenneffekt von einer Tem-

peraturänderung beim Argon keine wesentlichen Vorteile zu erwarten sind.

4. Die Wirkungen der Drücke p_B , p_F und p_G auf die spezifischen Aufwandsgrößen sind besonders komplex, da sie sich in starkem Maße gegenseitig bedingen. Nach den Vorversuchen war zu erwarten, daß die günstigsten Werte von p_B bei der benutzten Düse zwischen 10 und 100 Torr, die von p_F zwischen 0,3 und 3 Torr und die von p_G zwischen 1 und 10 Torr liegen.

Selbst wenn der Optimalwert eines Parameters im Mittel mit jeweils nur 4 Versuchen hätte erfaßt werden können, wären für eine *vollständige* Variation von f , d , p_B , p_F und p_G über 1000 Entmischungsversuche erforderlich gewesen. Zur Verminderung des experimentellen Aufwandes mußte daher ein Iterationsverfahren angewendet werden. Dazu wurden bei einer auf Grund der Vorversuche aussichtsreich erscheinenden Abschäl-Geometrie zunächst die Drücke variiert. Unter Konstanzhaltung der optimalen Drücke wurde dann die Abschäl-Geometrie verändert. Den Abschluß bildete eine Überprüfung der Drücke bei der optimalen Abschäl-Geometrie.

3. Variation der Drücke bei konstanter Abschäl-Geometrie

Bei dieser Versuchsserie betrug die Abschälweite 0,30 mm und der Abschälerrabstand 0,15 mm. Die Experimente wurden in der Weise durchgeführt, daß die Größen ε_A und ϑ , jeweils bei konstantem Einlaßdruck p_B und konstantem vorderen Gegen-
druck p_F , in Abhängigkeit vom hinteren Gegen-
druck p_G gemessen wurden. Abb. 8 zeigt das Ergebnis einer vollständigen Variation von p_F und p_G bei $p_B = 18$ Torr. In Abb. 9 sind die aus den experimentellen Kurven mit den Gln. (12) bis (14) berechneten spezifischen Aufwandsgrößen wiedergegeben. Aus der Tatsache, daß alle Kurven ein Minimum durchlaufen, geht hervor, daß der untersuchte Bereich des hinteren Gegen-
druckes genügend groß war.

Beim spezifischen Ansaugvolumen und bei der spezifischen Kompressionsarbeit zeigt die gestrichelt eingetragene Verbindung der Minima selber wieder ein Minimum, was bedeutet, daß für diese Aufwandsgrößen bei der Variation auch der günstigste Wert des vorderen Gegen-
druckes überstrichen wurde. Man entnimmt für das spezifische Ansaugvolumen einen Tiefstwert von $3,4 \cdot 10^3$ RT/Torr, der bei $p_G = 2,4$ Torr und $p_F = 0,75$ Torr erreicht wird. Der niedrig-

ste Wert der spezifischen Kompressionsarbeit ergibt sich für $p_G = 2,0$ Torr und $p_F = 0,35$ Torr zu $9,1 \cdot 10^3$ RT.

Bei der spezifischen Schlitzlänge fällt die Verbindungskurve der Minima mit kleiner werdendem vorderen Gegen-
druck kontinuierlich ab. Dies beruht darauf, daß der in (14) vorkommende Durchsatz L der Düse von den Gegen-
drücken unabhängig ist, während die elementare Werterzeugung, entsprechend dem Anstieg von ε_A und ϑ , mit kleiner werdendem vorderen Gegen-
druck monoton zunimmt.

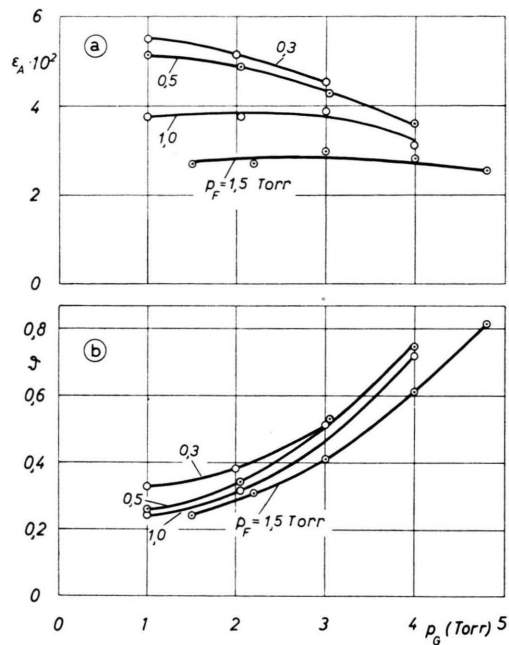


Abb. 8. Der Elementareffekt der Trennung ε_A und das Abschälverhältnis ϑ in Abhängigkeit vom hinteren Gegen-
druck p_G bei einem Einlaßdruck $p_B = 10$ Torr für verschiedene vordere Gegen-
drücke p_F (vgl. die an die Kurven angeschriebenen Zahlen). Die Versuche wurden mit einer 20 mm langen, 0,1 mm weiten, konvergenten Schlitzdüse bei konstanter Abschäl-Geometrie durchgeführt: $d = 0,15$ mm, $f = 0,3$ mm. Der Argon-Durchsatz betrug 0,50 Mol/h.

Als übersichtliche Zusammenfassung der Ergebnisse und für Interpolationszwecke ist die in Abb. 10 für den Fall des spezifischen Ansaugvolumens wiedergegebene Darstellung besonders geeignet. Sie zeigt in einem $p_F - p_G$ -Diagramm gleichzeitig Kurven mit konstanter spezifischer Aufwandsgröße und Kurven mit konstantem Abschälverhältnis ϑ . Während sich für das spezifische Ansaugvolumen und die spezifische Kompressionsarbeit *geschlossene* Kurven ergeben, sind die entsprechenden Darstellungen

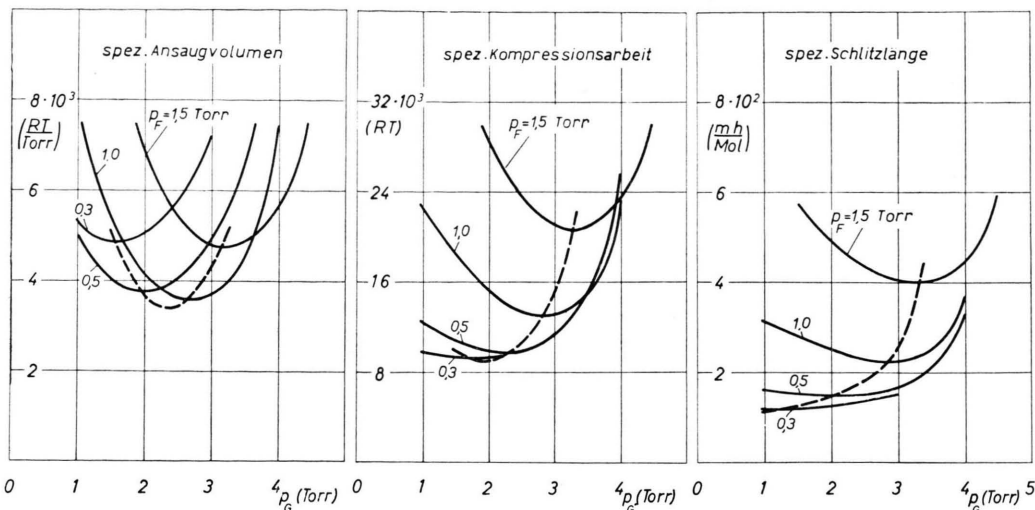


Abb. 9. Das spez. Ansaugvolumen, die spez. Kompressionsarbeit und die spez. Schlitzlänge für die in Abb. 8 wiedergegebenen Meßreihen. Die gestrichelten Kurven verbinden die zu den verschiedenen Gegendrücken p_F gehörenden Minimalwerte der spez. Aufwandsgrößen.

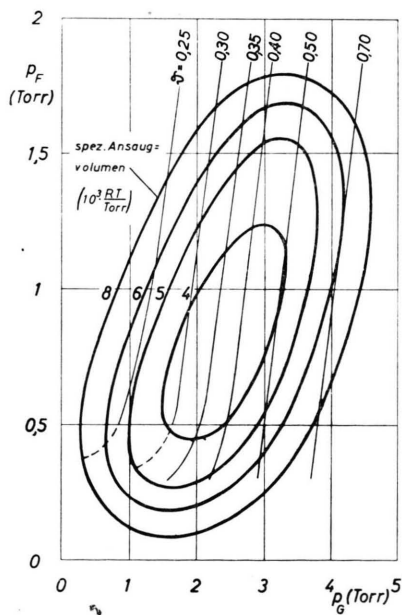


Abb. 10. Kurven für konstantes spez. Ansaugvolumen und konstantes Abschälverhältnis ϕ in einem p_F — p_G -Diagramm. Wegen der Versuchsbedingungen vgl. Abb. 8.

der spezifischen Schlitzlänge zum Ursprung des Koordinatensystems hin geöffnet.

Abb. 11 a zeigt die durch vollständige Variation der Gegendrücke gewonnenen *Tiefstwerte* des spezifischen Ansaugvolumens und der spezifischen Kompressionsarbeit in Abhängigkeit vom Einlaßdruck. Abb. 11 b gibt die dazugehörigen Betriebsbedingungen wieder. Man bemerkt, daß das spezifische Ansaugvolumen im untersuchten Bereich innerhalb der Fehlergrenze vom Einlaßdruck unabhängig ist, während die spezifische Kompressionsarbeit mit steigendem p_B zunimmt. Für die spezifische Schlitzlänge lassen sich Optimalwerte aus dem oben erwähnten Grund nur durch Extrapolation der Ergebnisse auf verschwindend kleinen vorderen Gegendruck gewinnen. Die Extrapolation liefert einen vom Einlaßdruck innerhalb der Fehlergrenze unabhängigen Wert von etwa $1 \cdot 10^2$ mh/Mol (Abb. 11 a).

4. Variation der Abschäl-Geometrie¹⁴

Die nachträgliche Variation der Abschäl-Geometrie ergab bei einem Einlaßdruck von 18 Torr keine

¹⁴ Bei der Variation der Abschäl-Geometrie wurde eine Düse verwendet, die aus herstellungstechnischen Gründen einen etwa 1 mm langen Mündungskanal besaß. Zur Erzielung desselben Gasdurchsatzes wie bei der konvergenten Düse mußten daher etwas höhere Einlaßdrücke benutzt werden (43 an Stelle von 36 Torr, und 23 an Stelle von 18 Torr).

Da der Mündungskanal bei gleichem Gasdurchsatz die Entmischungseigenschaften nicht ändert (vgl. Anm. ⁵), sind im Interesse der einheitlichen Darstellung die korrespondierenden Einlaßdrücke, Kompressionsarbeiten und Durchsätze der konvergenten Düse angegeben.

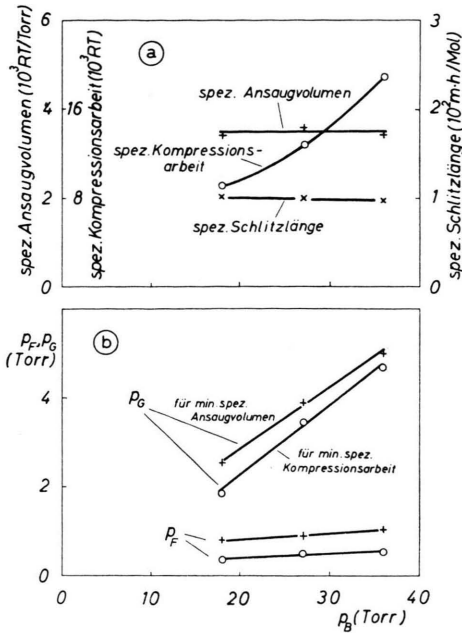


Abb. 11. Die bei vollständiger Variation von p_F und p_G erzielten Minimalwerte des spez. Ansaugvolumens und der spez. Kompressionsarbeit (a), sowie die zugehörigen optimalen Gegendrucke p_F und p_G (b) in Abhängigkeit vom Einlaßdruck p_B . Bei der spez. Schlitzlänge wurden die für verschwindenden vorderen Gegendruck p_F durch Extrapolation gewonnenen Werte eingetragen. Die Versuche wurden mit konstanter Abschäl-Geometrie durchgeführt ($d = 0,15$ mm, $f = 0,3$ mm); bei den verwendeten Einlaßdrücken $p_B = 18, 27$ bzw. 36 Torr betrug der Argon-Durchsatz der $0,1$ mm weiten, 20 mm langen konvergenten Schlitzdüse $0,50, 0,90$ bzw. $1,29$ Mol/h.

außerhalb der Fehlergrenze liegenden Verbesserungen. Dagegen war bei $p_B = 36$ Torr durch Verkleinerung des Abstandes d von $0,15$ auf $0,05$ mm eine Verminderung des spezifischen Ansaugvolumens um 25% und eine Verminderung der spezifischen Kompressionsarbeit um 16% zu erreichen (Abb. 12). Eine Variation der Abschälerweite und eine nochmalige Veränderung der Gegendrucke bei dem kleineren Abstand brachten keinen zusätzlichen Erfolg.

5. Umrechnung der Ergebnisse auf UF_6

Für kleine Gegendrucke konnte die Übertragbarkeit der mit leichten Isotopengemischen erzielten Ergebnisse auf den Fall des Urans durch Entmischungsversuche mit Uranhexafluorid unmittelbar nachgewiesen werden³. Bei einer Umrechnung der in der

vorliegenden Arbeit erhaltenen Resultate ist jedoch zu berücksichtigen, daß sich bei den verwendeten, relativ hohen Gegendruckten Unterschiede in der spezifischen Wärme und im Wirkungsquerschnitt anders bemerkbar machen können. Da sich die Verhältnisse theoretisch nicht genügend genau übersehen lassen und umfangreichere Entmischungsversuche mit UF_6 noch fehlen, ist eine Abschätzung der spezifischen Aufwandsgrößen beim Uran z. Zt. nur unter der Annahme möglich, daß die optimalen Betriebsbedingungen von Ar und UF_6 dieselben seien, während sich die Elementareffekte der Entmischung wie die relativen Massendifferenzen verhalten¹⁵.

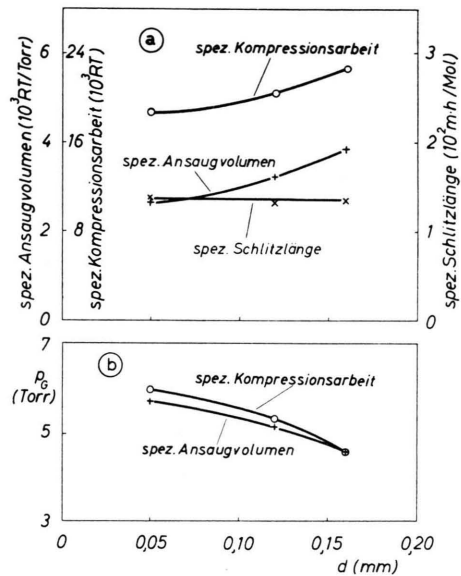


Abb. 12. a) Die spez. Aufwandsgrößen in Abhängigkeit von der Entfernung d zwischen Düse und Abschäler ($f = 0,3$ mm, $p_B = 36$ Torr, $p_F = 1$ Torr). b) Die zugehörigen Optimalwerte des hinteren Gegendruckes p_G . Für die spez. Schlitzlänge konnten keine optimalen Gegendrucke p_G eingetragen werden, da diese Größe im untersuchten Bereich von p_G weitgehend unabhängig ist.

Da ϵ_A in die spezifischen Aufwandsgrößen quadratisch eingeht [Gln. (12) bis (14)], hat man das spezifische Ansaugvolumen und die spezifische Kompressionsarbeit beim Übergang vom Ar zum UF_6 unter diesen Voraussetzungen mit 138 zu multiplizieren, während bei der spezifischen Schlitzlänge

¹⁵ Als relative Massendifferenz ist dabei nach dem Modell der Druckdiffusion der Ausdruck $(m_2 - m_1)/(n_1 m_1 + n_2 m_2)$ einzusetzen [Gl. (4)].

		I (kleinste Kompressions- arbeit)	II (kleinstes Ansaug- volumen)
A) Argon	Abstand zwischen Düse und Ab- schäler (d)	0,15 mm	0,05 mm
	Abschälerweite (f)	0,30 mm	0,30 mm
	Einlaßdruck (p_B)	18 Torr	36 Torr
	Vorderer Gegendruck (p_F)	0,35 Torr	1,0 Torr
	hinterer Gegendruck (p_G)	2,0 Torr	5,6 Torr
	Abschälverhältnis (ϑ)	0,38	0,14
	Argon-Durchsatz (L)	25,2 Mol/h · m	64,3 Mol/h · m
	Elementareffekt der Trennung (ε_A)	$5,2 \cdot 10^{-2}$	$4,3 \cdot 10^{-2}$
	spez. Kompressionsarbeit	6,1 ₅ kWh/Mol	12,6 kWh/Mol
	spez. Ansaugvolumen	$8,1 \cdot 10^4$ m ³ /Mol	$4,8 \cdot 10^4$ m ³ /Mol
B) UF ₆	spez. Schlitzlänge	$1,3 \cdot 10^2$ m · h/Mol	$1,4 \cdot 10^2$ m · h/Mol
	UF ₆ -Durchsatz	12,6 Mol/h · m	28,6 Mol/h · m
	Elementareffekt der Trennung (ε_A)	$4,4 \cdot 10^{-3}$	$3,6_5 \cdot 10^{-3}$
	spez. Kompressionsarbeit	$8,5 \cdot 10^2$ kWh/Mol	$17,4 \cdot 10^2$ kWh/Mol
	spez. Ansaugvolumen	$11,2 \cdot 10^6$ m ³ /Mol	$6,6_5 \cdot 10^6$ m ³ /Mol
	spez. Schlitzlänge	$3,5 \cdot 10^4$ m · h/Mol	$4,3 \cdot 10^4$ m · h/Mol

Tab. 1. A) Die optimalen Betriebsbedingungen und die zugehörigen spez. Aufwandsgrößen einer mit Argon arbeitenden, idealen Trennkaskade: I. für kleinste Kompressionsarbeit, II. für kleinstes Ansaugvolumen der Kompressoren. — B) Die entsprechenden Daten einer mit UF₆ arbeitenden Kaskade, wie sie sich durch Umrechnung der mit Argon erzielten Resultate ergeben.

zusätzlich noch der geringere Moldurchsatz L der Düse zu berücksichtigen ist¹⁶.

In Tab. 1 sind die auf diese Weise abgeschätzten spezifischen Aufwandsgrößen für UF₆ zusammen mit den entsprechenden Größen für Argon wiedergegeben, wobei die Betriebsbedingungen einmal für kleinste spezifische Kompressionsarbeit und einmal für kleinstes spezifisches Ansaugvolumen ausgewählt wurden¹⁷.

Der Wert von $8,5 \cdot 10^2$ kWh/Mol der spezifischen, idealen isothermen Kompressionsarbeit stimmt größenordnungsmäßig mit dem entsprechenden, für das Diffusionsverfahren abgeschätzten Wert von $5,4 \cdot 10^2$ kWh/Mol überein¹³. Hinsichtlich des spezifischen Ansaugvolumens ist ein Vergleich schwieriger, da die Absolutdrucke, mit denen die Diffusionsanlagen arbeiten, nicht bekannt sind. Sie dürften jedoch rund um eine Größenordnung höher liegen als die optimalen Drucke bei der Trenndüse. Da der entsprechend größere Pumpenbedarf des Trenndüsen-

verfahrens durch die kleineren spezifischen Kosten der bei niedrigerem Druck arbeitenden Gebläse¹⁸ sicher nur zum Teil ausgeglichen wird, hat sich das

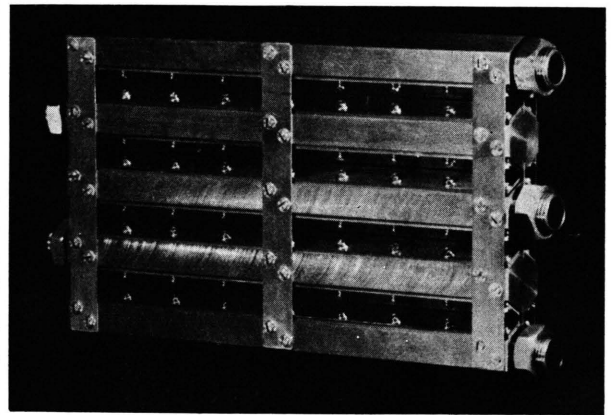


Abb. 13. Eine bei halbtechnischen Versuchen benutzte Trenndüsen-Anordnung aus hohlen Sechskant-Körpern mit aufgeschraubten Düsen- und Abschälerblechen. Länge 22 cm, Durchsatz bei $p_B = 36$ Torr: 8,0 kg UF₆/Stunde.

¹⁶ Bei einer reibungsfreien Düsenströmung würde sich für UF₆ auf Grund der größeren Masse und der größeren spezif. Wärme [$\kappa(\text{UF}_6) = C_p/C_v = 1,06_5$] ein um den Faktor 3,5 kleinerer Moldurchsatz der Düse als beim Argon ergeben [vgl. z. B. E. SCHMIDT, Thermodynamik, 5. Aufl., Springer-Verlag Berlin/Göttingen/Heidelberg 1953, S. 267, Gl. (297)]. Dieser Faktor erniedrigt sich auf $\approx 2,2$, wenn man den Reibungseinfluß berücksichtigt.

¹⁷ Bei der Auswahl der Betriebsbedingungen ist in der Praxis noch zu berücksichtigen, daß sich die Nicht-Vermischungsbedingung (vgl. Teil B, Abs. 1) beim Zusammenschalten der Elemente wirtschaftlich nur mit Abschälverhältnissen realisieren läßt, die sich als Verhältnis kleiner ganzer Zahlen ergeben, z. B. $\vartheta = 1/2, 2/5, 1/3, 1/4$.

¹⁸ Bei den Versuchen wurden Rootsgebläse FG 500 der Fa. Leybold, Köln, und VP-R 152 der Fa. W. C. Heraeus, Hanau, verwendet, für deren kostenlose Bereitstellung wir diesen Firmen zu großem Dank verpflichtet sind.

Hauptinteresse bei einer weiteren Entwicklung auf eine Verminderung des spezifischen Ansaugvolumens zu richten. Es scheint, daß sich in dieser Richtung

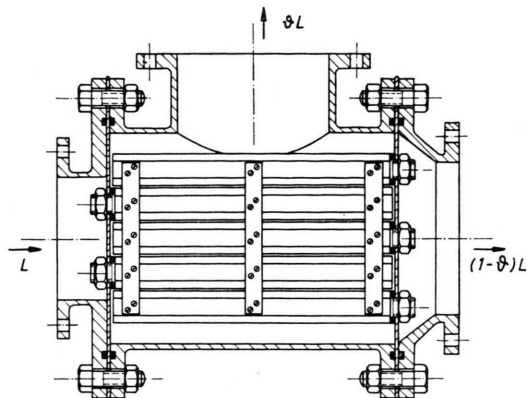


Abb. 14. Einbau der in Abb. 13 gezeigten Trenndüsen-Anordnung.

Fortschritte durch leichte Zusatzgase erzielen lassen, durch die der elementare Trenneffekt des schweren Isotopengemisches gesteigert werden kann. Entsprechende Versuche sind noch im Gange.

Die erforderlichen Schlitzlängen lassen sich durch Spezialkonstruktionen mit verhältnismäßig geringem Aufwand realisieren. Eine für halbertechnische Versuche benutzte Trenndüsenanordnung, bei der die Düsen und Abschäler aus hohlen Sechskantkörpern mit aufgeschraubten Profilblechen bestehen, ist in Abb. 13 und 14 wiedergegeben.

Ein Teil der Versuche wurde von den Herren cand. phys. P. LOHSE und cand. phys. P. TUROWSKI durchgeführt. Herrn Prof. Dr. W. WALCHER danken wir für das der Arbeit entgegengebrachte Interesse. Die Arbeit wurde von der Deutschen Forschungsgemeinschaft, dem Bundesministerium für Atomfragen und der Firma Degussa, Frankfurt/M., unterstützt, wofür wir auch an dieser Stelle unseren Dank aussprechen möchten.

Das Trennrohr

XX. Vergleich der Thermodiffusionskonstanten

von $^{14}\text{N}^{15}\text{N}/^{14}\text{N}_2$ und $^{15}\text{NO}/^{14}\text{NO}$. Paradoxon des Temperatureinflusses im Trennrohr¹

Von KLAUS CLUSIUS und PAOLO FRANZOSINI

Aus dem Physikalisch-Chemischen Institut der Universität Zürich

(Z. Naturforsch. 12 a, 621—629 [1957]; eingegangen am 6. Juni 1957)

In einem drahtgeheizten Glastrennrohr werden die Trennfaktoren der Systeme $^{14}\text{N}^{15}\text{N}/^{14}\text{N}_2$ und $^{15}\text{NO}/^{14}\text{NO}$ bei verschiedenen Temperaturen bis zu Drucken von 2 Atm. miteinander verglichen. Bei der Anreicherung von ^{15}N würde Stickoxyd gegenüber Stickstoff verschiedene Vorteile bieten. Man könnte gleichzeitig die schweren Sauerstoffisotope gewinnen und hätte zur Isolierung von hochprozentigem ^{15}N nicht das Gleichgewicht zwischen den Molekelarten $^{14}\text{N}_2$, $^{14}\text{N}^{15}\text{N}$ und $^{15}\text{N}_2$ einzustellen. Der Vergleich beider Gase zeigt jedoch, daß der Thermodiffusionsfaktor von $^{15}\text{NO}/^{14}\text{NO}$ bei 350 °K nur etwa 80% desjenigen von $^{14}\text{N}^{15}\text{N}/^{14}\text{N}_2$ beträgt. Infolgedessen beansprucht eine mit Stickoxyd betriebene Trennanlage einen 1,5-mal größeren Leistungsaufwand für die gleiche ^{15}N -Menge als eine mit Stickstoff betriebene. Steigert man die Temperatur, so werden die Verhältnisse für Stickoxyd relativ günstiger, doch setzt sein beginnender Zerfall dieser Möglichkeit sehr bald eine Schranke.

Beim Paradoxon wird der Trenneffekt in gewissen Druckbereichen durch eine Erhöhung der Temperatur der heißen Wand so verschlechtert, daß die Trennkurven sich schneiden. Diese Erscheinung läßt sich an Hand der Trennrohrtheorie quantitativ erklären. Sie tritt auf, wenn die Diffusion in der Längsrichtung des Trennrohrs den konvektiven Transport weit überwiegt. Dies ist bei Drucken der Fall, die etwa halb so groß sind wie der Druck, für den der Trennfaktor sein Maximum erreicht. Isothermen, die unterhalb einer gewissen Minimaltemperatur \bar{T}_{\min} liegen, die für Stickstoff bei unseren Versuchsbedingungen 416 °K beträgt, schneiden sich untereinander nie. Dagegen können sich Isothermen, die oberhalb \bar{T}_{\min} verlaufen, sowohl untereinander als auch mit unterhalb von \bar{T}_{\min} gelegenen Isothermen schneiden. Die theoretischen Aussagen stimmen gut mit den experimentellen Beobachtungen im System $^{14}\text{N}^{15}\text{N}/^{14}\text{N}_2$ überein.

Die folgende Arbeit befaßt sich mit Messungen des Trennfaktors in den Systemen $^{14}\text{N}^{15}\text{N}/^{14}\text{N}_2$ und

$^{15}\text{NO}/^{14}\text{NO}$. Es wird einmal untersucht, ob Stickstoff oder Stickstoffmonoxyd für die Anreicherung des schweren Isotops vorteilhafter ist, zum anderen wird einem Paradoxon nachgegangen, das schon bei den ersten Versuchen mit dem Trennrohr auffiel, aber

¹ Das Trennrohr XIX. Scheidung der Isotope ^{79}Br und ^{81}Br . Tagung über Isotopentrennung in Amsterdam, 23.—27. April 1957.