

Trenndüsenentmischung der Uranisotope bei Verwendung leichter Zusatzgase

Von E. W. BECKER, K. BIER, W. BIER und R. SCHÜTTE

Aus dem Kernforschungszentrum Karlsruhe, Institut für Kernverfahrenstechnik
der Technischen Hochschule

(Z. Naturforsch. **18 a**, 246—250 [1963]; eingegangen am 21. Dezember 1962)

Herrn Professor Dr. KLAUS CLUSIUS zum 60. Geburtstag gewidmet

Bei der Entmischung der Uranisotope in einer mit freier Expansion arbeitenden schlitzförmigen Trenndüsenanordnung kann durch einen Zusatz von 400 Mol-Proz. He zum UF_6 das spezifische Ansaugvolumen auf $1/4$ und die spezifische Schlitzlänge auf $1/5$ der mit reinem UF_6 erreichten Optimalwerte gesenkt werden. Gleichzeitig steigt jedoch die spezifische Kompressionsarbeit auf das Vierfache des früheren Optimalwertes an.

Dagegen wird bei einem Trenndüsenystem, in dem der Strahl mechanisch um 180° umgelenkt wird, mit einem Gemisch aus 5 Mol-Proz. UF_6 und 95 Mol-Proz. He dieselbe Verminderung des spezifischen Ansaugvolumens und eine Verminderung der spezifischen Schlitzlänge auf $1/30$ erzielt, während die spezifische Kompressionsarbeit gleichzeitig nur um 20% ansteigt. Durch die bei dem Umlensystem erreichte starke Abnahme der für die Investitionskosten maßgeblichen spezifischen Aufwandsgrößen wird die wirtschaftliche Situation des Trenndüsenverfahrens erheblich verbessert. Dennoch dürfte das Trenndüsenverfahren im augenblicklichen Stand der Entwicklung gegenüber dem Diffusionsverfahren nur bei der Hochanreicherung von U^{235} Vorteile bieten, bei der die geringere Stufenzahl, der Fortfall der feinporeigen Membranen und die zu erwartende kleinere Einstellzeit besonders stark ins Gewicht fallen.

In einer früheren Arbeit haben wir gezeigt, daß sich die Wirtschaftlichkeit des Trenndüsenverfahrens im Fall der Argonisotope durch ein leichtes Zusatzgas beträchtlich verbessern läßt¹. Durch einen Zusatz von 400 Mol-Proz. Helium konnte beispielsweise das spezifische Ansaugvolumen der Kompressoren auf etwa $1/4$, die spezifische Schlitzlänge der Trennelemente auf etwa $1/5$ und die spezifische Kompressionsarbeit auf etwa $3/4$ der Werte für reines Argon gesenkt werden. Da das Trenndüsenverfahren hauptsächlich für die Anreicherung der Uranisotope von praktischem Interesse ist, interessiert die Frage, ob sich auch in diesem Fall durch leichte Zusatzgase wirtschaftliche Erfolge erzielen lassen.

Da das für die Uranisotopentrennung allein in Frage kommende Uranhexafluorid ein fast 9-mal so großes Molekulargewicht wie Argon hat, läßt sich beim Uran ein entsprechend größeres Verhältnis der Molekulargewichte von Isotopengemisch und leichtem Zusatzgas realisieren. Es war jedoch offen, ob eine Vergrößerung dieses Verhältnisses Vorteile bringt, da unter den interessierenden Bedingungen mit einer entsprechend stärkeren Trennung zwischen Isotopengemisch und leichtem Zusatzgas gerechnet werden muß.

Im folgenden werden daher in einer mit freier Expansion arbeitenden Schlitzdüsenanordnung zunächst die Wirkungen von Helium und Argon als Zusatzgase zum Uranhexafluorid bei der Entmischung der Uranisotope verglichen. Es zeigt sich, daß bei diesem Trennsystem Helium keine wesentlich besseren Ergebnisse liefert als Argon und daß mit beiden Zusatzgasen keine eindeutigen wirtschaftlichen Vorteile gegenüber dem Fall des reinen Uranhexafluorids zu erzielen sind.

Anschließend wird die Wirkung von Helium als Zusatz zum UF_6 bei einer mit künstlicher Strahlumlenkung arbeitenden Trenndüsenanordnung untersucht, wie sie früher schon für reine Gase erprobt wurde². Durch die Kombination von leichtem Zusatzgas und künstlicher Strahlumlenkung gelingt es, die Wirtschaftlichkeit des Trenndüsenverfahrens bei der Entmischung der Uranisotope erheblich zu verbessern.

Apparatur und Auswertung der Versuche

Die Versuche wurden in der früher beschriebenen ausheizbaren Apparatur aus rostfreiem Stahl durchgeführt³, in der die beiden UF_6 -Fraktionen auf Kühlfallen ausgefroren werden. Abb. 1 zeigt Schnitte durch

¹ E. W. BECKER, K. BIER u. W. BIER, Z. Naturforsch. **17 a**, 778 [1962].

² E. W. BECKER, H. BURGHOF u. J. GSPANN, Z. Naturforsch. **16 a**, 955 [1961].

³ E. W. BECKER u. R. SCHÜTTE, Z. Naturforsch. **15 a**, 336 [1960].



die verwendeten Trenndüsen-Systeme. Bei der mit freier Expansion arbeitenden Anordnung a betrug die Mündungsweite der konvergenten Düse 0,05 mm. Der Abstand zwischen Düse und Abschäler war gleich der einfachen, die Weite des Abschälers gleich der doppelten Düsenweite. Bei dem mit 180° Umlenkung arbeitenden System b wurde eine LAVAL-Düse verwendet, deren Weite an der engsten Stelle 0,13 mm und an der Mündung 0,25 mm betrug. Das Umlenkprofil hatte einen Radius von 0,75 mm, der Abschäler war 0,13 mm weit. Die Trennsysteme hatten senkrecht zur Zeichenebene der Abb. 1 eine wirksame Länge von 5 bzw. 10 mm.

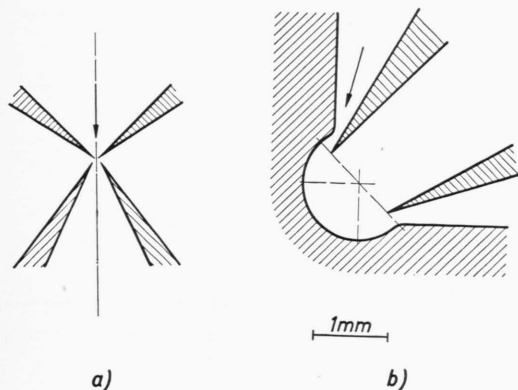


Abb. 1. Querschnitte durch die verwendeten Trenndüsen-Systeme. a) Schlitzsystem für freie Strahlexpansion: Düsenweite 0,05 mm, Abschälerweite 0,1 mm, Abstand 0,05 mm, Schlitzlänge 5 mm. b) Schlitzsystem mit mechanischer Strahlumlenkung um 180°: engste Düsenweite 0,13 mm, Abschälerweite 0,13 mm, Krümmungsradius der Umlenk wand 0,75 mm, Schlitzlänge 10 mm.

Das Abschälverhältnis des UF_6 -Anteils, $\vartheta(\text{UF}_6)$, wurde durch Auswiegen der beiden auf den Kühlfallen gesammelten und in Pipetten übergefrorenen Fraktionen gewonnen. Das Abschälverhältnis des Zusatzgases, $\vartheta(\text{Ar})$ bzw. $\vartheta(\text{He})$, wurde auf der Druckseite der Vorpumpen volumetrisch bestimmt. Aus beiden Messungen ergibt sich als Abschälverhältnis des gesamten Strahlgases beispielsweise

$$\vartheta = (1 - N_0) \vartheta(\text{He}) + N_0 \vartheta(\text{UF}_6)$$

(N_0 = Molenbruch des UF_6 im Ausgangsgemisch). Das Isotopenmischungsverhältnis der Uranhexafluoridfraktionen wurde massenspektrometrisch bestimmt³.

Aus den Molenbrüchen n_M und n_K des leichten Uranisotops in der Mantel- bzw. Kerngasfraktion des UF_6 wurde der Elementareffekt der Trennung

$$\varepsilon_A(\text{UF}_6) = \frac{n_M(1 - n_K)}{(1 - n_M) n_K} - 1$$

gebildet. Daneben wird noch der Trennfaktor zwischen Zusatzgas und UF_6 , z. B.

$$A(\text{He}/\text{UF}_6) = \frac{\vartheta(\text{He}) [1 - \vartheta(\text{UF}_6)]}{[1 - \vartheta(\text{He})] \vartheta(\text{UF}_6)}$$

angegeben. Die Gesamtdrucke in der Düsenzuleitung, im Mantel- und Kerngasraum werden mit p_0 , p_M und p_K bezeichnet.

Zur Beurteilung der wirtschaftlichen Auswirkungen der verschiedenen Maßnahmen werden mit den experimentell ermittelten Daten, wie in den früheren Arbeiten, die spezifische Kompressionsarbeit E_s , das spezifische Ansaugvolumen V_s und die spezifische Schlitzlänge l_s gebildet. Sie stellen Maße für den Energieverbrauch sowie die Investitionskosten der Kompressoren und Trennelemente dar. Wegen der Definition dieser Größen und der Voraussetzungen für ihre Verwendung im Fall der Zusatzgasmethode verweisen wir auf die in Anm. ¹ zitierte Arbeit.

Freie Expansion

In den Abb. 2 und 3 sind die bei freier Expansion mit Gemischen aus 20 Mol-Proz. UF_6 und 80 Mol-Proz. Ar bzw. He erzielten experimentellen Ergebnisse dargestellt. Bei den Versuchen wurde der Einlaßdruck p_0 und das Expansionsverhältnis p_0/p_K des Kerngases variiert. Das Expansionsverhältnis p_0/p_M des Mantelgases wurde auf Grund von Vorversuchen im Fall des Argons gleich 20 und im Fall des Heliums gleich 10 gewählt.

Aus den Abbildungen geht hervor, daß beim Übergang vom Argon zum Helium als Zusatzgas nur der Trennfaktor zwischen UF_6 und Zusatzgas stark ansteigt. Die Elementareffekte der Trennung und die Abschälverhältnisse der Uranisotope stimmen dagegen für die beiden Zusatzgase unter vergleichbaren Bedingungen nahezu überein.

Die mit den verschiedenen Einlaßdrücken bei der Variation von p_K/p_0 erzielten Minimalwerte der spezifischen Aufwandsgrößen für die Uranisotopentrennung sind in Abb. 4 dargestellt. Bei Versuchen mit reinem UF_6 wurden früher die Minimalwerte $E_s = 3,35 \cdot 10^6 \text{ RT}$, $V_s = 0,55 \cdot 10^6 \text{ RT/Torr}$ und $l_s = 1,05 \cdot 10^5 \text{ mh/Mol}$ erreicht⁴. Nach Abb. 4 ergibt

⁴ Vgl. Tab. 3 der in Anm. ³ zitierten Arbeit. Zum Vergleich wurden die Optimalwerte für kleinstes Ansaugvolumen herangezogen, da die verhältnismäßig großen Investitionskosten für die Kompressoren bisher in wirtschaftlicher Hinsicht am kritischsten waren.

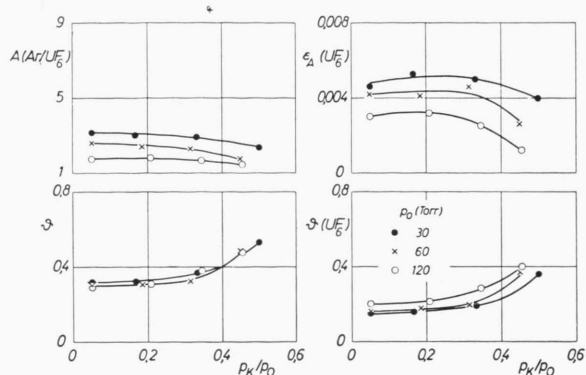


Abb. 2. Der Gemischtrennfaktor $A(\text{Ar}/\text{UF}_6)$, das Gesamtabschälverhältnis ϑ , der Elementareffekt der Isotopentrennung $\varepsilon_A(\text{UF}_6)$ und das UF_6 -Abschälverhältnis $\vartheta(\text{UF}_6)$ für verschiedene Einlaßdrücke p_0 eines Gemisches mit 20 Mol-Proz. UF_6 und 80 Mol-Proz. Ar in Abhängigkeit vom Druckverhältnis p_K/p_0 bei dem mit freier Strahlexpansion arbeitenden Trenndüsenystem a. Das Expansionsverhältnis des Mantelgases, p_0/p_M , betrug bei diesen Versuchen 20.

sich bei dem höchsten untersuchten Einlaßdruck von 300 Torr mit dem Helium- UF_6 -Gemisch ein fast viermal kleineres spezifisches Ansaugvolumen und eine etwa fünfmal kleinere spezifische Schlitzlänge als beim reinen UF_6 unter optimalen Bedingungen. Gleichzeitig beobachtet man jedoch eine etwa viermal höhere Kompressionsarbeit. Bei einer Verminderung des Einlaßdruckes nähern sich die spezifischen Kompressionsarbeiten für beide Gemische zwar dem Optimalwert für reines UF_6 . Dabei gehen jedoch die Vorteile bezüglich V_s und I_s weitgehend verloren.

Umgelenkter Strahl

Nach der für ein binäres Gemisch mit kleiner relativer Massendifferenz entwickelten gasdynamischen Theorie des Trenndüseneffektes nimmt die Entmischung stark mit der MACH-Zahl längs der zur Abschälerschneide führenden Stromfläche und mit dem gesamten Umlenkwinkel dieser Stromfläche im Raum zwischen Düse und Abschäler zu⁵. Die Hoffnung auf eine positive Wirkung des leichten Zusatzgases gründet sich vor allem darauf, daß bei einer

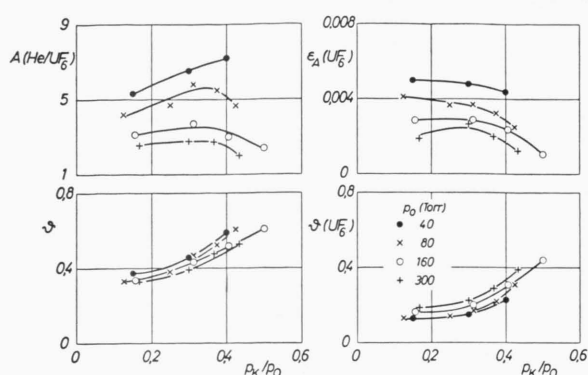


Abb. 3. Der Gemischtrennfaktor $A(\text{He}/\text{UF}_6)$, das Gesamtabschälverhältnis ϑ , der Elementareffekt der Isotopentrennung $\varepsilon_A(\text{UF}_6)$ und das UF_6 -Abschälverhältnis $\vartheta(\text{UF}_6)$ für verschiedene Einlaßdrücke p_0 eines Gemisches mit 20 Mol-Proz. UF_6 und 80 Mol-Proz. He in Abhängigkeit vom Druckverhältnis p_K/p_0 bei dem mit freier Strahlexpansion arbeitenden Trenndüsenystem a. Das Expansionsverhältnis des Mantelgases, p_0/p_M , betrug bei diesen Versuchen 10.

Verminderung des mittleren Molekulargewichtes des gesamten Gemisches die MACH-Zahl des Isotopenteils steigt⁶. Bei einer starken Trennung zwischen Isotopengemisch und leichtem Zusatzgas ergibt sich jedoch gleichzeitig eine Verminderung des Umlenkwinkels der zu einem bestimmten Abschälverhältnis des Isotopengemisches gehörenden Stromfläche⁷. Da der zweite Effekt den Entmischungsvorgang der Isotope beeinträchtigt, erschien es aussichtsreich, den fraglichen Winkel durch eine künstliche Umlenkung des Strahls im Raum zwischen Düse und Abschäler wieder zu vergrößern.

Beim reinen Argonisotopengemisch hatte die künstliche Strahlumlenkung keine eindeutigen wirtschaftlichen Vorteile gebracht². Das kann damit erklärt werden, daß in diesem Fall die erreichbare relative Steigerung des Umlenkwinkels der Stromflächen verhältnismäßig gering, die relative Verminderung der MACH-Zahl durch die mit der Umlenkung verbundenen Entropie-erzeugenden Effekte dagegen verhältnismäßig stark ist.

Da beim He/UF_6 -Gemisch im freien Strahl wegen der starken Trennung von He und UF_6 nur ver-

⁵ F. ZIGAN, Z. Naturforsch. 17a, 772 [1962], Gl. (5).

⁶ In der in Anm. ¹ zitierten Arbeit haben wir die positive Wirkung des Zusatzgases durch die Vergrößerung der auf das gesamte Gemisch bezogenen relativen Massendifferenz der Isotope sowie die Vergrößerung des Produktes aus Teilchendichte und Diffusionskonstante beschrieben. Bei dieser, vor allem bei kleiner Trennung zwischen Zusatzgas und Isotopengemisch zweckmäßigen Betrachtungsweise hat man in der Gleichung für den Elementareffekt die MACH-Zahl

des gesamten Gemisches einzusetzen, die sich allenfalls auf Grund des Einflusses des Adiabatenexponenten von der des reinen Isotopengemisches unterscheidet. Bei der hier benutzten, im Fall einer starken Trennung von Isotopengemisch und Zusatzgas vorzuziehenden Beschreibung hat man dagegen die relative Massendifferenz und das Produkt aus Teilchendichte und Diffusionskonstante des Isotopenteils einzusetzen.

⁷ Vgl. Abb. 1 und 2 der in Anm. ¹ zitierten Arbeit.

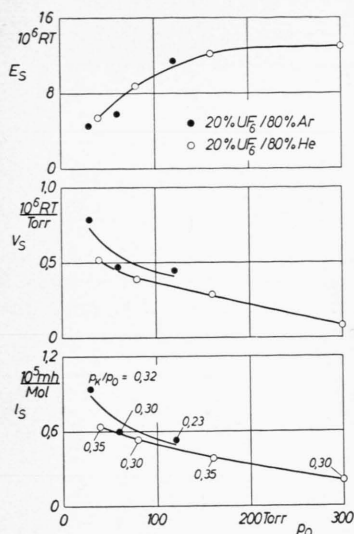


Abb. 4. Die aus den Abb. 2 und 3 für das Trenndüsen-system a folgende Abhängigkeit der spezifischen Aufwandsgrößen vom Einlaßdruck p_0 bei konstantem Expansionsverhältnis des Mantelgases ($p_0/p_M=20$ bzw. 10) und jeweils optimalem Druckverhältnis p_K/p_0 . Die bei I_s angegebenen Werte von p_K/p_0 gelten auch für die übrigen spezifischen Aufwandsgrößen.

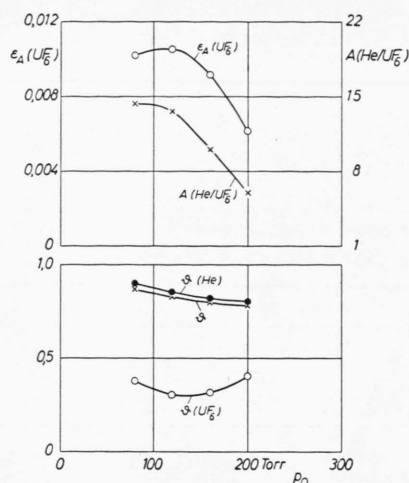


Abb. 5. Der Gemischtrennfaktor A (He/UF_6), der Elementareffekt der Isotopentrennung $\varepsilon_A(\text{UF}_6)$, sowie die Abschälverhältnisse des gesamten Strahl-gases, ϑ , des Heliums, $\vartheta(\text{He})$, und des UF_6 , $\vartheta(\text{UF}_6)$, für ein Gemisch mit 5 Mol-Proz. UF_6 und 95 Mol-Proz. Helium in Abhängigkeit vom Einlaßdruck p_0 bei dem mit mechanischer Strahl-umlenkung arbeitenden Trenndüsen-system b. Die Expansionsverhältnisse des Mantel- und Kern-gases p_0/p_M bzw. p_0/p_K betragen bei diesen Versuchen 10.

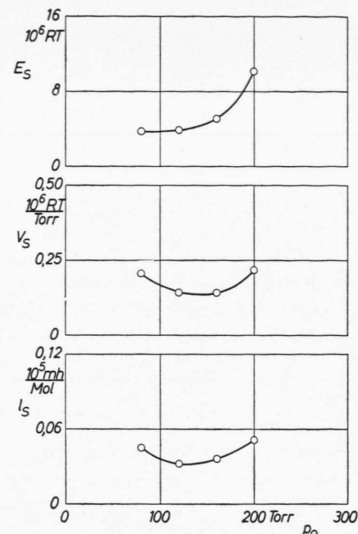


Abb. 6. Die aus Abb. 5 für das Trenndüsen-system b folgenden spezifischen Aufwandsgrößen in Abhängigkeit vom Einlaßdruck p_0 .

hältnismäßig kleine Umlenkwinkel der interessierenden UF_6 -Stromflächen auftreten, war in diesem Falle eine günstigere Wirkung der künstlichen Strahlumlenkung nicht ausgeschlossen.

Die bisher vorliegenden Versuche mit dem in Abb. 1 dargestellten Umlenk-system wurden mit einem Gemisch aus 5 Mol-Proz. UF_6 und 95 Mol-Proz. He bei Expansionsverhältnissen $p_0/p_M = p_0/p_K = 10$ unter Variation von p_0 durchgeführt⁸. Abb. 5 zeigt die experimentellen Ergebnisse, Abb. 6 die daraus berechneten spezifischen Aufwandsgrößen.

Die günstigsten wirtschaftlichen Bedingungen ergeben sich nach Abb. 6 bei $p_0 = 120$ Torr. Ein Vergleich mit den oben angegebenen Optimalwerten für reines UF_6 ergibt, daß bei diesem Einlaßdruck durch die Kombination von leichtem Zusatzgas und künstlicher Strahlumlenkung die spezifische Schlitzlänge auf etwa 1/30 und das spezifische Ansaugvolumen

auf etwa 1/4 der mit reinem UF_6 bei freier Strahl-expansion erzielten Optimalwerte sinkt. Trotz der Notwendigkeit zur Mitkompression des 19-fachen Heliumüberschusses steigt die spezifische Kompressionsarbeit gleichzeitig nur um etwa 20%.

Die mit reinem UF_6 bei freier Strahl-expansion und mit dem Gemisch aus 5% UF_6 und 95% He bei 180° Strahlumlenkung erzielten Aufwandsgrößen sind mit den zugehörigen Betriebsbedingungen in Tab. 1 gegenübergestellt⁹.

Setzt man die Einstellzeit der zur Vervielfachung des Elementareffektes erforderlichen Trennkaskade proportional zur spezifischen Schlitzlänge und zum mittleren Partialdruck des UF_6 , so würde sich durch die Kombination von Zusatzgas und Strahlumlenkung eine Verminderung der Einstellzeit um mehr als 2 Größenordnungen ergeben. Da durch die neuen Maßnahmen der UF_6 -Inhalt der Kompressoren und

⁸ Mit reinem UF_6 lieferte das Umlenk-system bei orientierenden Versuchen wesentlich schlechtere Ergebnisse als das mit freier Strahl-expansion arbeitende System.

⁹ Bei dem Übergang von RT auf kWh/Mol und RT/Torr auf m^3/Mol wurde eine mittlere Kompressortemperatur von

293 °K angenommen. Zur Ermittlung des tatsächlichen Energieverbrauches ist die spezifische Kompressionsarbeit durch den isothermen Wirkungsgrad des Kompressors zu teilen.

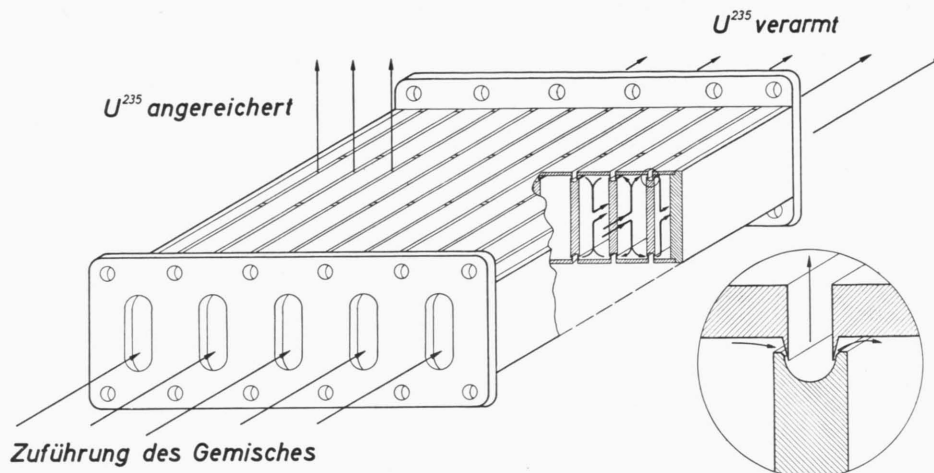


Abb. 7. Eine für halbertechnische Trennversuche geeignete Ausführungsform des mit 180° Strahlumlenkung arbeitenden Trenndüsen-Strahlumlenkungs-Systems. Bei einer Länge des Einzelschlitzes von 20 cm würde sich für das gesamte System bei den in Tab. 1 angegebenen Betriebsbedingungen ein UF_6 -Durchsatz von etwa 38 kg pro Stunde ergeben.

	5% UF_6 95% He 180° Um- lenkung	reines UF_6 freier Strahl
engste Düsenweite (mm)	0,13	0,05
Einlaßdruck p_0 (Torr)	120	30
Expansionsverhältnis für das Mantelgas p_0/p_M	10	30
für das Kerngas p_0/p_K	10	7
UF_6 -Abschälverhältnis $\theta(\text{UF}_6)$	0,31	0,23
Gesamtabschälverhältnis θ	0,83	—
Elementareffekt der Trennung $\varepsilon_A(\text{UF}_6) \cdot 10^3$	10,6	2,8
UF_6 -Durchsatz (Mol/h · m)	26,6	14,1
Gesamtdurchsatz (Mol/h · m)	530	—
spezif. Kompressions- arbeit E_s (10^2 kWh/Mol)	26,6	22,7
spezif. Ansaugvolumen V_s (10^6 m ³ /Mol)	2,61	10,0
spezif. Schlitzlänge l_s (10^4 mh/Mol)	0,32	10,5

Tab. 1. Die mit Helium als Zusatzgas bei künstlicher Strahlumlenkung erreichten spezifischen Aufwandsgrößen für die Entmischung der Uranisotope im Vergleich zu den früher für reines UF_6 ohne Strahlumlenkung unter der Forderung nach kleinstem spezifischem Ansaugvolumen ermittelten Minimalwerten ⁴ (Mol=Gramm Mol, h=Stunde, m=Meter).

Rohrleitungen jedoch weniger stark abnimmt als der der Trennelemente, wird der erreichbare Fortschritt in Wirklichkeit geringer sein. Es dürfte sich jedoch eine Verminderung der Einstellzeit um mindestens eine Größenordnung erzielen lassen.

Durch die erreichte starke Verminderung des spezifischen Ansaugvolumens und der spezifischen Schlitzlänge wird die wirtschaftliche Situation des Trenndüsenverfahrens erheblich verbessert. Dennoch dürfte das Trenndüsenverfahren im augenblicklichen Stand der Entwicklung gegenüber dem Diffusionsverfahren nur bei der Hochanreicherung von U^{235} Vorteile bieten, bei der die geringere Stufenzahl, der Fortfall der feinporigen Membranen und die zu erwartende kleinere Einstellzeit besonders stark ins Gewicht fallen.

Eine für halbertechnische Trennversuche geeignete Ausführungsform des mit 180° Strahlumlenkung arbeitenden Trenndüsen-Strahlumlenkungs-Systems ist in Abb. 7 dargestellt.

Für die Hilfe bei der Durchführung der Versuche und bei den massenspektrometrischen Messungen danken wir Fräulein B. GEBAUER, Herrn Dipl.-Phys. P. KIRCH und Herrn G. SCHÜLER.