

**KERNFORSCHUNGSZENTRUM**

**KARLSRUHE**

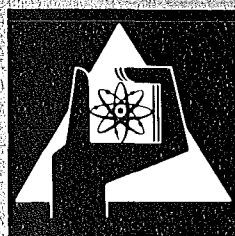
April 1977

KFK 2428

Institut für Kernverfahrenstechnik

**Experimentelle Untersuchung der Tieftemperatur-  
Desublimation von Uranhexafluorid aus  
Gemischen mit Wasserstoff in Gegenstrom-  
Kompaktwärmetauschern**

J. Schmid, R. Schütte



**GESELLSCHAFT  
FÜR  
KERNFORSCHUNG M.B.H.**

**KARLSRUHE**

Als Manuskript vervielfältigt

Für diesen Bericht behalten wir uns alle Rechte vor

GESELLSCHAFT FÜR KERNFORSCHUNG M. B. H.  
KARLSRUHE

KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE

KFK 2428

Institut für Kernverfahrenstechnik

EXPERIMENTELLE UNTERSUCHUNG DER TIEFTEMPERATUR-DESUBLIMATION  
VON URANHEXAFLUORID AUS GEMISCHEN MIT WASSERSTOFF  
IN GEGENSTROM-KOMPAKTWÄRMETAUSCHERN

von

J. Schmid<sup>+</sup>)

R. Schütte

Gesellschaft für Kernforschung m.b.H., Karlsruhe

+) Dissertation; Universität Karlsruhe (T.H.)



## Zusammenfassung:

In Trenndüsenkaskaden, die mit einem Gemisch von  $UF_6$  und Wasserstoff als Verfahrensgas arbeiten, entsteht ein Netto-Aufwärtstransport an leichtem Zusatzgas. Um eine Anreicherung des leichten Zusatzgases in der Kaskade zu verhindern, wird dieser Aufwärtstransport am Kaskadenkopf entnommen und an den Kaskadenfuß zurückgeführt. In  $UF_6$ -Abstreifanlagen muß der  $UF_6$ -Gehalt aus dem rückgeführten Wasserstoff weitgehend abgestreift werden. Dies geschieht durch Hintereinanderschaltung einer Vorabscheidungstrenndüse mit einer nachgeschalteten Tieftemperatur-Abscheidung, in welcher der  $UF_6$ -Gehalt von ca. 0,3 % auf Werte unter 1 ppm herabgesetzt wird.

Bei der Tieftemperatur-Desublimation von  $UF_6$  aus Gemischen mit Lewis-Zahlen  $Le > 1$  besteht wegen der unvermeidlichen Übersättigung stets die Gefahr der Schnee- und Eiseildung und einer Beeinträchtigung des Abscheidewirkungsgrades durch das Mitführen von Schnee im Reingasstrom. Mit einer Versuchsanlage, die ungefähr 1/7 des Querschnitts eines industriellen Abscheiderblocks besitzt, wurde der Abscheidvorgang untersucht und die Beladungsweise des Abscheiders optimiert. Durch Verwendung abgesetzter Rippen wird die Strömung in den Abscheidpassagen im laminaren und thermischen Anlaufbereich gehalten. Die Versuche haben gezeigt, daß hierbei die erwartete Verbesserung von Stoff- zu Wärmetransport im Verhältnis  $Le/Le^{2/3}$  erreicht wird, und daß bei allen auftretenden Übersättigungswerten von bis zu 1000 keine Schnee- und Eiseildung störend in Erscheinung tritt. Die auftretenden Übersättigungen werden im Bereich des Endkühlers in isothermen Strömungsbereichen mit ausreichend kurzen Diffusionslängen praktisch vollständig abgebaut, so daß bei allen Abscheideversuchen mit Ausgangskonzentrationen von 0.1...0.5 Mol-%  $UF_6$  und einer Endtemperatur von  $-120^\circ C$  die  $UF_6$ -Konzentration im Reingas stets unter der Nachweisgrenze des verwendeten Infrarotspektrometers von 0,1 ppm  $UF_6$  lag.

Durch gesteuerte Verschiebung des Temperaturprofils während des Abscheidvorganges konnte stets die gleiche optimale Beladung des Abscheiders mit einer  $UF_6$ -Schicht nahezu konstanter Dicke erreicht werden, die über 60 % des freien Querschnitts der Abscheidpassage ausfüllt. Die damit verbundene Zunahme des Druckverlustes kann bei geeigneter Wahl der Abscheiderdimensionen und der Abscheidegeschwindigkeit durch die Druckverlustabnahme kompensiert werden, die aufgrund der Temperaturabsenkung in den übrigen Passagen des Abscheiders auftreten. Damit ergibt sich eine Betriebsweise, bei der der Druckabfall am Abscheider während der gesamten Abscheidedauer praktisch konstant bleibt und die den Parallelbetrieb und das zyklische Umschalten einzelner Abscheiderblöcke in einer industriellen Abscheidungsanlage außerordentlich erleichtert.

## Experimental Investigation of Low Temperature Desublimation of Uranium Hexafluoride from Mixtures with Hydrogen Using Compact Counter-Current Heat Exchangers

### Summary:

In separation nozzle cascades processing a mixture of  $UF_6$  and hydrogen a net upward transport of the light auxiliary gas is produced. To prevent enrichment of the light gas in the cascade, this upward flow has to be extracted from the top and fed back to the bottom of the cascade. In recycle facilities, the  $UF_6$  content has to be stripped with high efficiency from the recycled hydrogen. This is done by using a special separation nozzle stage backed by a low temperature freeze-out heat exchanger system, which reduces the  $UF_6$  content of the hydrogen from about 0.3 % to values below  $1^6$  ppm.

In freeze-out systems for  $UF_6$  mixtures with Lewis numbers higher than 1, snow formation as a result of inevitable supersaturation may severely reduce the efficiency of  $UF_6$  stripping. With an experimental setup one seventh the cross-section of an industrial unit, the freeze-out process in a compact counter-current heat exchanger has been investigated to optimize the operation of the system. The desublimator passages are provided with serrated fins which maintain the gas flow in the initial stretch of the laminar and thermal transition zone. The experiments have shown that the theoretically expected improvement of mass to heat transfer by the ratio  $Le/Le^{2/3}$ , as compared to stabilized laminar flow, is actually obtained and no perturbations by snow formation are observed for supersaturation factors up to 1000. The measured supersaturations of  $UF_6$  are almost completely eliminated in the end cooler section within isothermal flow regions presenting sufficiently short diffusion distances. In all experiments starting with initial  $UF_6$ -concentrations in the range of 0.1...0.5 mol-% and with an end cooler temperature of  $-120^{\circ}C$ , the  $UF_6$  content in the hydrogen processed always ranged below the detection limit of 0.1 ppm  $UF_6$  of the infrared spectrometer used.

By controlled shifting of the temperature profile during freeze-out operation, the same optimal charge of the desublimator was obtained for all experiments, presenting a  $UF_6$ -layer of nearly constant thickness which filled more than 60 % of the free passage cross-section. The increased pressure drop induced by this obstruction can be compensated for by the decrease of the pressure drop induced by the simultaneous temperature drop in the remaining passages of the heat exchanger, if dimensions and freeze-out velocity are chosen conveniently. This results in desublimator operation with nearly constant pressure drop during the freeze-out period; this smooth operation facilitates paralleling and cyclic switch-over of desublimator units in industrial plants.

## Inhaltsverzeichnis

	<u>Seite</u>
1. Einleitung und Zusammenfassung	4
2. Die Aufgabenstellungen für den Tieftemperaturteil einer Anlage zur Abtrennung von Uranhexafluorid aus Gemischen mit hohem Wasserstoffüberschuß	9
2.1 Die Arbeitsweise der UF <sub>6</sub> -Abscheidungsanlagen	9
2.2 Die Betriebsbedingungen der Tieftemperatur-Abscheidung	12
2.2.1 Das Druck- und Konzentrationsniveau der Tieftemperatur-Abscheidung	13
2.2.2 Die Anforderungen an den Reinheitsgrad des rückgespeisten Wasserstoffs	14
2.2.3 Die Strömungsbedingungen im Desublimator	14
2.3 Der Wärme- und Stofftransport beim Ausfriervorgang in H <sub>2</sub> /UF <sub>6</sub> -Gemischen	16
2.3.1 Der Einfluß des Wärme- und Stoffübergangskoeffizienten auf die Zustandsänderung beim Abkühlvorgang	17
2.3.2 Die Beziehungen zwischen den Koeffizienten des Wärme- und Stoffübergangs und den molekularen Transportgrößen für eine Laminarströmung im Anlaufgebiet	19
2.3.3 Absolutberechnung der Transportkoeffizienten für das H <sub>2</sub> /UF <sub>6</sub> -Gemisch unter Benutzung des modifizierten Buckingham-Potentials	21
3. Die Versuchsanlage und die Versuchstechnik	25
3.1 Der Aufbau der Versuchsanlage	25
3.1.1 Der UF <sub>6</sub> -Abscheider	28
3.1.2 Der Vorkühler	31
3.1.3 Das Filter	31
3.1.4 Das UF <sub>6</sub> -Einspeisesystem	32
3.1.5 Die Kälteversorgung der Hilfspassagen	33

	<u>Seite</u>
3.2 Der Betrieb der Versuchsanlage	33
3.2.1 Vorbereitung des Abscheidebetriebs	33
3.2.2 Die Austragung des UF <sub>6</sub> aus dem Abscheider	34
3.2.3 Das Überfrieren des UF <sub>6</sub> in den Kollektor W6	34
3.2.4 Die Rückspeisung des UF <sub>6</sub> in den Vorratsbehälter	35
3.2.5 Sicherheitsvorkehrungen beim Umgang mit UF <sub>6</sub>	35
3.3 Instrumentierung und Meßwerterfassung	36
3.3.1 Druckmessung	36
3.3.2 Temperaturmessung	37
3.3.3 Durchflußmessung	37
3.3.4 Messung der UF <sub>6</sub> -Konzentration im Rohgas	38
3.3.5 Nachweis von UF <sub>6</sub> -Spuren im Reingas	38
3.4 Meßwertverarbeitung	41
4. Experimentelle Ergebnisse	44
4.1 Der Übersättigungsgrad des UF <sub>6</sub> in Abhängigkeit vom Temperaturprofil im Abscheider	48
4.2 Der Abbau der UF <sub>6</sub> -Übersättigung in der isothermen Laminärströmung	52
4.3 Die Berechnung des Druckverlustes bei Beladung der Abscheidepassage mit UF <sub>6</sub>	54
4.4 Die Optimierung der Abscheiderbeladung	56
4.4.1 Die Beladungskapazität und der Druckverlust in Abscheidern mit stationärem Temperaturprofil	56
4.4.2 Die Optimierung der Abscheiderbeladung und des Druckverlustes für Abscheidebetrieb mit instationären Temperaturgradienten	57
5. Diskussion der Ergebnisse	65



	Seite
Anhang I: Hilfsrechnungen zur gaskinetischen Ermittlung der Transportkoeffizienten Wärmeleitfähigkeit $\lambda$ und Diffusionskonstante D.	70
Anhang II: Lewis-Zahl $Le$ , Diffusionskonstante $D$ und Wärmeleitfähigkeit $\lambda$ von $H_2/UF_6$ -Gemischen für den Temperaturbereich von $-140^\circ$ bis $40^\circ C$ .	72
Anhang III: Näherungslösung für die Lewis-Zahl $Le$ bei Gemischen mit weniger als 0.5 % $UF_6$ .	75
Literaturverzeichnis	76

## 1. Einleitung und Zusammenfassung

Beim Trenndüsenverfahren zur Anreicherung des leichten Uranisotops U-235 wird als Verfahrensgas ein Gemisch von Uranhexafluorid ( $UF_6$ ) und einem leichten Zusatzgas verwendet /1/, /2/.

In den Trenndüsen, deren Querschnitt in Abb. 1 gezeigt ist, expandiert dieses Gasgemisch, ausgehend vom Ausgangsdruck  $p_0$  in dem schlitzförmigen Düsenkanal bei gleichzeitiger Umlenkung um etwa  $180^\circ$  entlang einer zylinderförmigen Umlenkwand. Dabei werden das Uranhexafluorid und in diesem das schwere Uranisotop U-238 als Folge der massenabhängigen Zentrifugalkräfte in der Nähe der Umlenkwand konzentriert. Das leichte Zusatzgas und das leichte Uranisotop U-235 werden hingegen im Zentrum der Düsenströmung angereichert. Am Ende der Umlenkwand wird der Gasstrahl durch ein Abschäl-Messer in eine leichte und in eine schwere Fraktion zerlegt, die bei den Drücken  $p_1$ ,  $p_2$  mit etwa der Hälfte des Ausgangsdruckes  $p_0$  getrennt abgesaugt werden.

Als leichtes Zusatzgas wurden bisher Helium und insbesondere Wasserstoff für den Einsatz in technischen Trennanlagen in Betracht gezogen. Hierbei führt beim augenblicklichen Entwicklungsstand die Verwendung von Wasserstoff als Zusatzgas zu den günstigsten Herstellungskosten für angereichertes Uran /3/.

Neben der gewünschten Anreicherung der Uranisotope tritt in den Trenndüsen jedoch eine sehr viel stärkere Trennung zwischen dem Uranhexafluorid und dem Zusatzgas auf. Diese Gemischtrennung bewirkt in einer Trenndüsenkaskade einen Nettotransport an leichtem Zusatzgas in Richtung zum Kaskadenkopf. Um eine Anreicherung des Zusatzgases in den Kopfstufen der Kaskaden zu verhindern, muß dieser Auf-

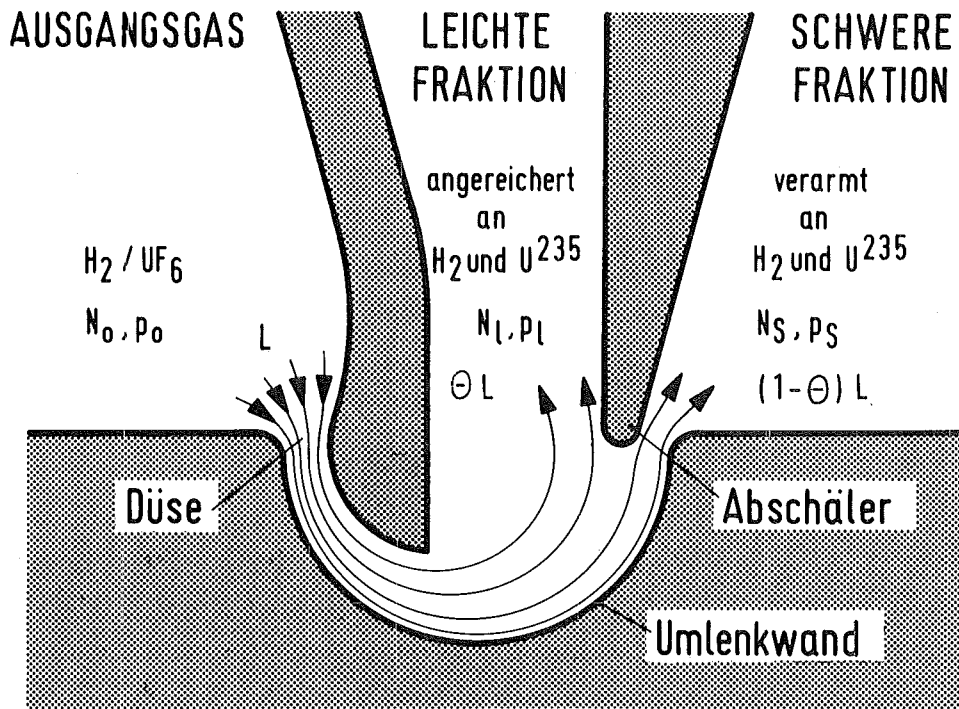


Abb. 1: Querschnitt durch eine Trenndüse mit schematisch eingezeichneten Stromlinien und den verwendeten Bezeichnungen für die Betriebsbedingungen.  $UF_6$ -Molenbrüche  $N_0$ ,  $N_1$ ,  $N_s$ , Gasdrücke  $p_0$ ,  $p_1$ ,  $p_s$ ; Gemischstromstärke  $L$  und Abschälverhältnis  $\theta$ .

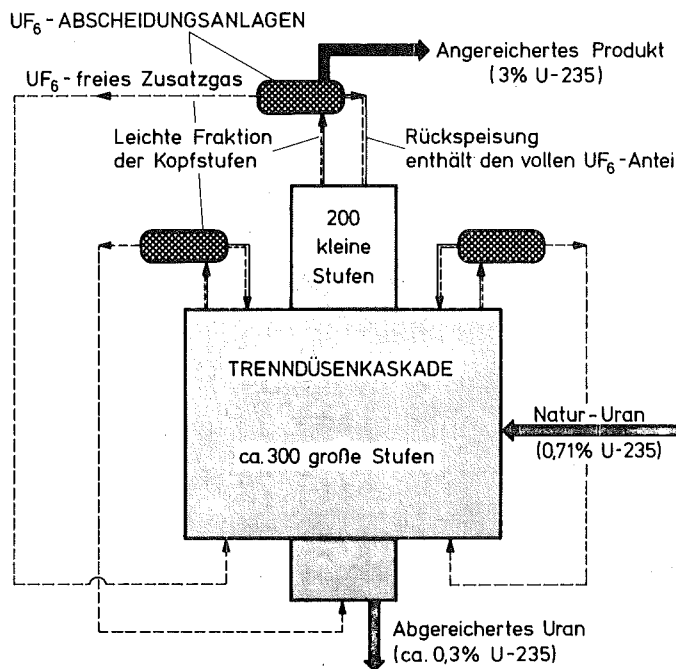


Abb. 2: Blockschaltbild für die Rückspeisung der Zusatzgasströme in einer abgestuften Trenndüsen-Kaskade. Die Breite der Blöcke ist ein Maß für die Stufendurchsätze, ihre Höhe ist proportional der Stufenzahl. Der Zusatzgas-Transport muß jeweils aus den Kopfstufen der Kaskadenabschnitte ganz oder teilweise entnommen werden.

wärtstransport des leichten Zusatzgases aus den Kopfstufen eines Rechteck-Kaskadenabschnittes entnommen und an den Fuß des Kaskadenabschnitts zurückgespeist werden /4/.

Das Blockschaltbild für die Rückspeisung dieser Zusatzströme in einer Trenndüsenkaskade ist in Abb. 2 gezeigt, Dabei muß in den eingezeichneten  $UF_6$ -Abscheidungsanlagen der gesamte  $UF_6$ -Anteil aus den zu rezyklierenden Gasströmen möglichst vollständig entnommen werden und den Kopfstufen des betreffenden Kaskadenabschnittes wieder zugeführt werden, da jeder Transport von bereits angereichertem Uranhexafluorid zum Kaskadenfuß einen Trennarbeitsverlust darstellen würde. Für die technische Realisierung dieser  $UF_6$ -Abscheidung wurde nach einer Analyse der in Frage kommenden Abscheidungsverfahren und als Ergebnis einer Kostenoptimierung eine Kombination von Trenndüsen-Vorabscheidung und Tieftemperatur-Desublimation des  $UF_6$  vorgeschlagen /4/. Bei dieser Verfahrenskombination wird der Hauptanteil des  $UF_6$  in einer Vorabscheidungstrenndüse kontinuierlich abgetrennt. Die im Zusatzstrom verbleibende  $UF_6$ -Menge wird bis auf  $UF_6$ -Restgehalte von weniger als 1 ppm unter Abkühlung auf ca.  $-120^{\circ}C$  ausgefroren.

Während die Vorabscheidungstrenndüse in ähnlicher Weise betrieben wird wie die Trenndüsenstufen der Anreicherungskaskade und somit keine besonderen Probleme aufwirft, besteht beim Ausfrieren von  $UF_6$  aus einem Inertgasstrom stets die Gefahr der Kondensation in der Gasphase und einer Beeinträchtigung des Abscheidungswirkungsgrades durch das Mitführen von  $UF_6$ -Schnee im Gasstrom /5/-/7/. Wegen der hohen Wärmeleitfähigkeit des Wasserstoffs und der niedrigen Diffusionskonstante des  $UF_6$  muß bei einer Abkühlung dieses Gemisches über größere Temperaturbereiche stets mit starker Übersättigung gerechnet werden. Zum Übersättigungsabbau beim Ausfrieren in üblichen Kühlfällen sind einerseits interne Heizung vorgeschlagen worden /5/, und andererseits große spezifische Abscheideroberflächen

(Füllkörper), um die treibenden Temperaturdifferenzen zwischen Strömungskern und der Wand der Kühlfalle gering zu halten /7/. Als Sicherheitsmaßnahme gegen Schneeaustragung wurden außerdem Filter vorgeschlagen /5/-/7/.

Da im vorliegenden Anwendungsfall erhebliche Stromstärken an Inertgas zu verarbeiten sind und der Kältebedarf des Abscheidersystems einen beträchtlichen Kostenanteil ausmachen kann, wurden in der Voruntersuchung /4/ für die Tieftemperaturabscheidung Gegenstrom - Kompaktwärmetauscher vorgeschlagen, bei denen die Strömung in den Abscheiderpassagen im Bereich der hydrodynamischen und der thermischen Anlaufstrecke gehalten wird. In diesen Gegenströmern sollte der Übersättigungsgrad des  $UF_6$  auch bei Verwendung nicht allzu kleiner treibender Temperaturdifferenzen auf Werte begrenzt werden, bei denen die Kondensation in der Gasphase nicht auftritt (oder nicht stört), aber auch keine unnötig tief liegenden Endtemperaturen zum Erreichen des gewünschten Reinheitsgrades im Reingasstrom erfordert.

Da für das Ausfrierverhalten von  $UF_6$  aus Gemischen mit inerten Gasen in derartigen Tieftemperaturgegenströmern bisher keine Erfahrungen vorliegen, wurde eine Versuchsanlage erstellt, mit der unter den Bedingungen industrieller Anlagen der Ausfriervorgang bei  $UF_6$ -Wasserstoffgemischen untersucht werden konnte. Die Aufgabenstellung für die vorliegende Arbeit lag dabei einerseits in einer möglichst exakten Erfassung der in diesem Wärmetauscher beim Desublimationsprozess ablaufenden thermodynamischen Vorgänge, und andererseits in der Erarbeitung einer für diese Art von Desublimatoren günstigen Betriebsweise, die bei ausreichend niedriger  $UF_6$ -Restkonzentration eine möglichst hohe spezifische Abscheiderkapazität bei möglichst geringen Druckverlusten gewährleisten sollte.

Die Versuchsergebnisse haben gezeigt, daß mit Endtemperaturen im Bereich von  $-120^{\circ}\text{C}$  auch bei starker thermischer Überlastung in dem gewählten Gegenströmersystem die Übersättigung des  $\text{UF}_6$  auf Werte unterhalb 1000 begrenzt bleibt und daß dabei noch kein Aussublimieren von  $\text{UF}_6$ -Schnee im Gasstrom auftritt. Diese letzte Aussage basiert auf der unter allen Versuchsbedingungen gefundenen Übereinstimmung der an verschiedenen Stellen des Abscheidersystems gemessenen Übersättigungswerte mit den Werten, die ausgehend von den jeweils gemessenen Temperaturprofilen des Abscheiders unter Berücksichtigung der lokalen Zustandsgrößen und der lokalen Stoffwerte berechnet wurden.

Aufgrund dieser Ergebnisse konnte für das Gegenstrom-Abscheidersystem eine Betriebsweise mit einseitig wanderndem Temperaturprofil ausgearbeitet und erprobt werden, bei der der  $\text{UF}_6$ -Taupunkt bei praktisch feststehender Abscheiderendtemperatur vom kalten zum warmen Ende hin kontrolliert so verschoben wird, daß sich eine gleichmäßige Schichtdickenbelegung des  $\text{UF}_6$  in der Abscheiderpassage ergibt. Zu Abscheidebeginn wird der Abscheider hierbei mit einem sehr steilen Temperaturgradienten am kalten Ende betrieben, so daß er mit wesentlich höheren treibenden Temperaturdifferenzen arbeitet als auslegungsmäßig nach /4/ in Betracht gezogen wurde. Die dann anfänglich auftretende hohe Übersättigung des  $\text{UF}_6$  im Reingas kann im Endkühlerbereich des Abscheiders in einer Laminarstrecke mit extrem kurzen Diffusionswegen bis auf nicht meßbare  $\text{UF}_6$ -Spuren ( $< 0,1$  ppm  $\text{UF}_6$ ) abgebaut werden. Der Aufbau der  $\text{UF}_6$ -Schicht kann so gesteuert werden, daß auf einem beträchtlichen Teil der Abscheiderlänge eine gleichmäßige Querschnittsbelegung mit  $\text{UF}_6$  von 70-80% des freien Querschnitts der Abscheiderpassage erzeugt wird und daß die dort auftretende geringfügige Druckverlustzunahme durch die mit der Temperaturabsenkung verbundenen Dichteänderungen in den übrigen Abscheiderseiten so weit kompensiert wird, daß der Druckabfall am Gesamtsystem während des Beladungsvorganges praktisch konstant bleibt.

## 2. Die Aufgabenstellung für den Tieftemperaturteil einer Anlage zur Abtrennung von Uranhexafluorid aus Gemischen mit hohem Wasserstoffüberschuß

### 2.1 Die Arbeitsweise der UF<sub>6</sub>-Abscheidungsanlagen

Den aus einer Kombination von Vorabscheidungstrenndüse und Tieftemperaturdesublimator bestehenden UF<sub>6</sub>-Abscheidungsanlagen am Kopf der Kaskadenabschnitte einer Trenndüsenanlage werden als zu verarbeitende Verfahrensgasströme die leichten Fraktionen der Kopfstufen des betreffenden Abschnittes zugeführt (siehe Abb. 2).

Wie das Fließbild dieser kombinierten UF<sub>6</sub>-Abscheidungsanlage in Abb. 3 zeigt, verteilen sich die Aufgabenstellungen der UF<sub>6</sub>-Abtrennung zwischen Vorabscheidungstrenndüse und Tieftemperatur-Feinabscheidung in folgender Weise:

Mit Hilfe der Vorabscheidungstrenndüse werden etwa 60...80% des UF<sub>6</sub>-Gehaltes der leichten Fraktion der Kopfstufen eines Kaskadenabschnittes kontinuierlich zum Kaskadenkopf zurückgespeist. Dagegen gelangen etwa 90% des leichten Zusatzgases, dessen UF<sub>6</sub>-Konzentration nunmehr etwa um den Faktor 5 reduziert ist, in die Tieftemperatur-Abscheidungsanlage, wo die Abtrennung des restlichen UF<sub>6</sub> bis auf eine Endkonzentration unter 1 ppm erfolgen muß.

Aufgrund der Dampfdruckkurve des UF<sub>6</sub> (vgl. z.B. /15/) ist bei den in Frage kommenden Betriebsdrücken eine Endtemperatur von ca. -110°C erforderlich. Um den erforderlichen Kältebedarf für die zu verarbeitenden großen Verfahrensgasstromstärken im wirtschaftlichen Rahmen zu halten, wurde ein Gegenströmer-System gewählt /4/.

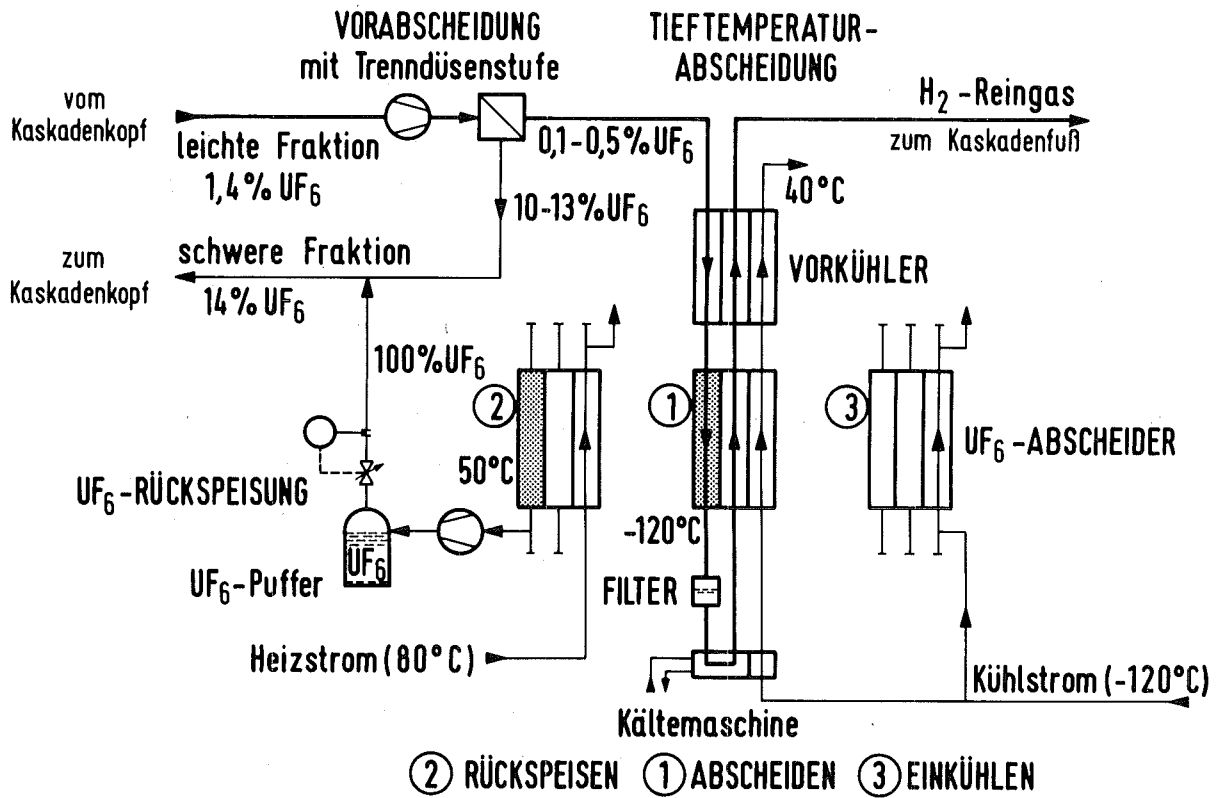


Abb. 3: Vereinfachtes Fließbild einer kombinierten  $UF_6$ -Abscheidungsanlage mit Vorabscheidungstrenndüse und Tieftemperaturströmern. Es sind als Beispiel drei umschaltbare Abscheider mit gemeinsamem Vorkühler gezeigt. Der Abscheider ① befindet sich im Abscheidebetrieb, Abscheider ② wird unter Erwärmung in den  $UF_6$ -Zwischenpuffer entleert. Der bereits entleerte Abscheider ③ wird vor dem erneuten Zuschalten in den Abscheidebetrieb eingekühlt.



Durch den Einsatz der Vorabscheidungstrenndüse wird vor allem eine kontinuierliche Rückführung des Hauptteiles des zurückzuspeisenden  $UF_6$ -Stromes ermöglicht. Neben einer erheblichen Reduzierung des  $UF_6$ -Hold up im Tieftemperaturteil erreicht man damit auch eine entsprechende Senkung des Kältebedarfs. Im Tieftemperaturabscheidungsteil ist eine diskontinuierliche Betriebsweise jedoch nicht zu vermeiden, da - wie im Fließschema, Abb. 3, gezeigt ist - ein beladener Abscheider nach Absperrung vom Verfahrensstrom unter Aufwärmen entleert werden muß, und erst nach erneuter Einkühlung auf die erforderliche Endtemperatur für einen weiteren Abscheidungsbetrieb zur Verfügung steht. Für einen wirtschaftlichen Abscheidebetrieb mit möglichst geringen Rückwirkungen auf das Funktionieren der Vorabscheidungstrenndüse und der Anreicherungskaskade ist es daher wichtig, daß der Druckabfall am Abscheider nicht nur einen niedrigen Absolutwert besitzt, sondern daß auch die relativen Änderungen des Druckabfalls beim Umschaltvorgang eines beladenen auf einen leeren Abscheider möglichst klein sind.

Der von der Tieftemperaturabscheidung zu verarbeitende Verfahrensgasstrom ist die leichte Fraktion der Vorabscheidungstrenndüse. Durch geeignete Wahl des Stromaufteilungsverhältnisses (Abschälverhältnis  $\theta_A$  dieser Düse<sup>\*)</sup>) wird die Stromstärke dieser Fraktion so eingestellt, daß ihr Wasserstoffanteil genau dem zu entnehmenden Zusatzgas-transport entspricht. Die in dieser Fraktion enthaltene und im Desublimator abgeschiedene  $UF_6$ -Stromstärke (am Kaskadenkopf nach Entnahme des Produktstroms) wird aus dem

---

\*) Der Index A kennzeichnet die Betriebsbedingungen der Vorabscheidungstrenndüse zur Unterscheidung von den Trenndüsen in der übrigen Kaskade. Die verwendeten Symbole für die Betriebsbedingungen sind aus Abb. 1 zu ersehen.

in Abb. 3 gezeigten  $UF_6$ -Puffer kontinuierlich in die zum Abschnittskopf zurückfließende schwere Fraktion eingespeist. Dieser Strom erhält damit die Zusammensetzung einer schweren Fraktion der normalen Anreicherungsstufen der Kaskade. Durch seine Rückspeisung in die letzte Stufe des betreffenden Kaskadenabschnitts werden die Anschlußbedingungen der  $UF_6$ -Abscheidungsanlage bilanzgerecht erfüllt /4/. Der Verbundbetrieb mit einer derartigen Vorabscheidungstrenndüse, die in ähnlicher Weise wie die übrigen Trenndüsen der Kaskade betrieben wird, konnte im Versuchsbetrieb mit der zehnstufigen Pilot-Anlage für das Trenndüsenverfahren /8/ demonstriert werden /9/.

## 2.2 Die Betriebsbedingungen der Tieftemperatur-Abscheidung

Durch die vorerwähnten Anschlußbedingungen wird das Abschälverhältnis  $\theta_{HA}$  der Vorabscheidungstrenndüse für den Wasserstoffanteil durch die Betriebsbedingungen in der Kaskade eindeutig festgelegt. Sein Wert liegt sehr nahe bei  $\theta_{HA} = 0,9$ , d. h. ca. 90% des leichten Gases werden der Tieftemperatur-Abscheidung zugeführt. Bei vorgegebener Eingangskonzentration  $N_{OA} \approx 1,5\%$   $UF_6$  und festliegendem Wert von  $\theta_{HA}$  kann die  $UF_6$ -Konzentration, die der Tieftemperatur-Abscheidung zugeführt wird, durch das an der Vorabscheidungstrenndüse angelegte Expansionsverhältnis  $p_{OA}/p_{1A}$  in Grenzen beeinflusst werden. Ein hohes Expansionsverhältnis führt zu einer niedrigen  $UF_6$ -Eingangskonzentration im Tieftemperaturteil, aber auch zu entsprechend hohem Verdichtungsaufwand.

Bei den Projektierungsarbeiten zu industriellen Trenndüsenanlagen wurden die Aussagen der Vorooptimierung /4/ bestätigt, wonach der kostenoptimale Kompromiß zwischen einer wünschenswert niedrigen  $UF_6$ -Stromstärke mit entsprechend langen Abscheidedauern, niedrigem  $UF_6$ -Hold up und niedrigem Kältebedarf im Tieftemperaturteil einerseits,

und dem Verdichtungsaufwand andererseits in der Verwendung eines einzigen Verdichters entsprechend dem Fließschema der Abb. 3 gefunden wird. Dieser Verdichter komprimiert das etwa 1,5%  $UF_6$  enthaltende Rohgas und kann daher in der Technik der Kaskadenverdichter ausgeführt werden, während die Verdichtung von Gasströmen mit niedrigeren  $UF_6$ -Gehalten (etwa das Rohgas der Tieftemperatur-Abscheidung oder Rein-Wasserstoff) andere, aufwendigere Verdichter erfordern würde.

### 2.2.1 Das Druck- und Konzentrationsniveau der Tieftemperatur-Abscheidung

Bei dieser Vorgehensweise ergeben sich Eintrittsdruck  $p_{A1}$  und Austrittsdruck  $p_{A2}$  der Tieftemperatur-Abscheidung dadurch, daß der Druck  $p_{A2}$  des Reingases mit dem Ansaugdruck der Kaskadenverdichter  $p_1$  zusammenfällt; der Eintrittsdruck des Rohgases  $p_{A1} = p_1 + \Delta p_A$  ergibt sich nach Maßgabe des Druckabfalles  $\Delta p_A$  in der Tieftemperatur-Abscheidung und ist mit dem Druck  $p_{1A}$  in der leichten Fraktion der Vorabscheidungstrenndüse identisch.

Die vorliegenden Untersuchungen wurden mit  $UF_6$ /Wasserstoff-Gemischen in einem Bereich von 0,1...0,5%  $UF_6$  durchgeführt, wie sie im Hinblick auf die technischen Möglichkeiten der Vorabscheidungstrenndüse für eine Feinoptimierung in Betracht kommen. Die Betriebsdrucke wurden in den Bereich gelegt, der für industrielle Trenndüsenanlagen vorzusehen ist. Dabei ergaben sich die Eintrittsdrucke aus den im Versuchsablauf auftretenden Druckverlusten, ausgehend vom Reingasdruck  $p_{A2}$ , der im Bereich von 100...300 Torr variiert wurde.

### 2.2.2 Die Anforderungen an den Reinheitsgrad des rückgespeisten Wasserstoffs

In die  $\text{UF}_6$ -Abscheidungsanlagen wird an  $\text{U}^{235}$  angereichertes  $\text{UF}_6$  eingebracht, bei der Anlage am Kaskadenkopf z. B. mit der Produktkonzentration der Kaskade. Weil der rückzuspeisende Wasserstoffstrom in Kaskadenteile zurückgeführt wird, in denen die  $\text{U}^{235}$ -Konzentrationen wesentlich niedriger liegen, würde jede Rückführung von  $\text{UF}_6$  im Wasserstoff einen Verlust an Werterzeugung der Kaskade bedeuten. Da in zukünftigen Trenndüsenkaskaden das Molstromverhältnis des  $\text{UF}_6$ -Produktstromes zu dem vom Kaskadenkopf zurückgespeisten Wasserstoffstrom etwa 1:3000 betragen wird, entspräche am Kaskadenkopf ein  $\text{UF}_6$ -Gehalt von 30 ppm im Reinwasserstoffstrom etwa einem Verlust von 10% der Produktstromleistung, d. h. 10% der Werterzeugung der Kaskade.

Aus den Abschätzungen der Vorooptimierung folgt, daß bei Berücksichtigung aller Kostenfaktoren ein Restgehalt von etwa 0,1 ppm  $\text{UF}_6$  im Reinwasserstoff wirtschaftlich sinnvoll ist /4/, da in diesem Bereich die Abscheidungskosten nahezu konstant sind, und der Anstieg der Trennarbeitskosten bei zunehmendem  $\text{UF}_6$ -Gehalt im Reinwasserstoff praktisch allein durch die damit verbundenen Trennarbeitsverluste bestimmt ist. Eine zehnfach höhere  $\text{UF}_6$ -Restkonzentration von 1 ppm würde die Trennarbeitskosten um etwa 0,3% erhöhen.

### 2.2.3 Die Strömungsbedingungen im Desublimator

Bei einem Gesamtdruck des Abscheidesystems von 100 Torr darf bei Forderung eines Restgehaltes von 0,1 ppm ein  $\text{UF}_6$ -Partialdruck von  $10^{-5}$  Torr nicht überschritten werden. Das entspricht dem Sättigungsdampfdruck des festen  $\text{UF}_6$  bei etwa  $-110^\circ\text{C}$  /15/, wodurch die obere Grenze für die

Abscheider-Endtemperatur der Tieftemperatur-Abscheidung festgelegt ist. Für die Entleerung der beladenen Abscheider ist eine Temperatur von etwa  $50^{\circ}$  erforderlich, um den  $UF_6$ -Inhalt bei Drucken im Bereich von 100 Torr austragen zu können.

Die Forderungen nach niedrigen Druckverlusten und hohem Wärmetauscher-Wirkungsgrad zur Begrenzung der Kälteverluste in der Abscheidephase werden bei der Notwendigkeit eines zyklischen Betriebes zwischen einer Abscheidungs-Endtemperatur von  $-120^{\circ}C$  und einer Entleerungstemperatur von  $50^{\circ}C$  durch die Forderung nach einem besonders günstigen Verhältnis von Abscheidermasse zu Abscheiderkapazität ergänzt, um auch den Energiebedarf für die zyklische Betriebsweise klein zu halten. Diesen Forderungen wurde durch die Wahl eines Gegenströmer-Kompaktwärmetauschers mit spezieller Berippung entsprochen, bei dem die Strömung in den Abscheidepassagen im Bereich extrem niedriger Reynolds-Zahlen  $Re = 20 \dots 80$  liegt. Hieraus resultieren günstige Absolutwerte des Abscheidervolumens und der für die Desublimation zur Verfügung stehenden Abscheideroberfläche. Zugleich wird die Strömungsgeschwindigkeit in den Abscheiderpassagen auf Werte begrenzt, bei denen ein Abreißen von abgeschiedenen  $UF_6$ -Kristallen ausgeschlossen sein sollte.

In der Mitführung abgerissener  $UF_6$ -Partikel und in der Gefahr der spontanen Kondensation von  $UF_6$  bei der Abkühlung in dem stark zur Übersättigung neigenden  $UF_6$ /Wasserstoff-Gemisch sind die Hauptursachen zu sehen, die den geforderten Abscheidungswirkungsgrad in Frage stellen könnten. Unter diesen Gesichtspunkten erfolgte die Auswahl kurzer, abgesetzter Rippen in der  $H_2/UF_6$ -Passage um einerseits durch ständige Führung der Strömung im Bereich der thermischen und der hydrodynamischen Anlaufstrecke die Übersättigungsneigung zu mildern, und um andererseits bei Schnee- bildung eine erhöhte Auffangwahrscheinlichkeit für mitgeführte Kristalle im Abscheider zu erzielen.

### 2.3 Der Wärme- und Stofftransport beim Ausfriervorgang in $H_2/UF_6$ -Gemischen

Für das Ausfrierverhalten von  $UF_6$  aus Gemischen mit inerten Gasen in derartigen Tieftemperaturgegenströmern liegen bisher keine Erfahrungen vor. Wegen der hohen Wärmeleitfähigkeit des Wasserstoffs und wegen der niedrigen Diffusionskonstanten des Uranhexafluorids muß bei einer Abkühlung dieses Gemisches über größere Temperaturbereiche mit starker Übersättigung in der Gasphase gerechnet werden. Da für den vorliegenden Anwendungsfall eine hochturbulente Strömung mit entsprechend verringerter Übersättigungsneigung nicht realisierbar ist, wurde eine Abscheiderkonfiguration mit abgesetzten Rippen gewählt, in der die laminare Strömung im Bereich der thermischen und der hydrodynamischen Anlaufstrecke gehalten wird /4/.

Da beim Abscheidevorgang sehr große Temperaturdifferenzen zu durchlaufen sind, war eine Überprüfung der theoretischen Ansätze und eine Verfeinerung der Berechnungsmethode erforderlich. Außerdem machte das Fehlen gesicherter Meßwerte zum Teil eine Absolutberechnung der Stoffdaten erforderlich, so daß eine Kontrolle durch experimentelle Untersuchung des vorgeschlagenen Abscheideverfahrens unumgänglich schien. Dabei handelte es sich in erster Linie um die Feststellung, ob bei diesen Gasgemischen der Übersättigungsgrad des  $UF_6$  auch bei Verwendung nicht allzu kleiner treibender Temperaturdifferenzen auf Werte begrenzt werden kann, bei denen eine Kondensation in der Gasphase noch nicht auftritt und damit die Gefahr der Schneebildung, des Mitführens von Schnee durch den Abscheider und eine entsprechende Verringerung des Abscheidewirkungsgrades ausgeschlossen werden kann.

### 2.3.1 Der Einfluß des Wärme- und Stoffübergangskoeffizienten auf die Zustandsänderung beim Abkühlvorgang

Beim Ausfrieren einer kondensierbaren Komponente in einem Gemisch mit Inertgasen findet gleichzeitig ein Wärme- und Stoffübergang vom Strömungskern zur Wand des Kühlers statt.

Durch Quotientenbildung aus der Differentialgleichung für die Wärmestromdichte  $Q/F$ , die die Temperaturabnahme im Strömungskern beschreibt,

$$\frac{dQ}{dF} = \alpha (\vartheta - \vartheta_w) = \dot{m} \cdot c_p \cdot \frac{\partial \vartheta}{\partial x} \cdot \frac{dx}{dF} \quad (1)$$

und der Differentialgleichung für die Massenstromdichte  $\dot{m}/F$ , die die Partialdruckänderungen der kondensierbaren Komponente darstellt,

$$\frac{d\dot{m}}{dF} = \frac{\beta}{RT} (P - P_w) = \frac{\dot{V}}{RT} \cdot \frac{\partial P}{\partial x} \cdot \frac{dx}{dF} \quad (2)$$

erhält man die Abkühlgleichung,

$$\frac{dP}{d\vartheta} = \frac{\beta \cdot \rho \cdot c_p}{\alpha} \cdot \frac{P - P_w}{\vartheta - \vartheta_w} \quad (3)$$

die den Verlauf  $dP/d\vartheta$  des Partialdrucks  $P$  der kondensierbaren Komponente in Abhängigkeit von der Gemischtemperatur  $\vartheta$  im Strömungskern angibt, wenn  $P_w$  und  $\vartheta_w$  die entsprechenden Werte auf der Wärmetauscheroberfläche bedeuten /12/.

Zur Integration dieser Differentialgleichung ist die Kenntnis des Verhältnisses des Wärmeübergangskoeffizienten  $\alpha$  zum Produkt des Stoffübergangskoeffizienten  $\beta$  mit der mittleren Gasdichte  $\rho$  und der spezifischen Wärme  $c_p$  ebenso

erforderlich wie der Verlauf der treibenden Temperaturdifferenz zwischen dem Strömungskern und der Wand des Kühlers  $\vartheta - \vartheta_w$  und der entsprechenden treibenden Partialdruckdifferenz  $P - P_w$ . Die treibende Temperaturdifferenz  $\vartheta - \vartheta_w^{*)}$  kann durch die verfahrenstechnische Auslegung des Kühlers innerhalb der durch Wirtschaftlichkeit, Aufgabenstellung und technische Realisierbarkeit gezogenen Grenzen vorgegeben werden. Der Partialdruck der kondensierbaren Komponente auf der Kühlerwand  $P_w$  entspricht dem Sättigungswert bei der Wandtemperatur  $\vartheta_w^{*)}$  und kann für  $UF_6$  im Temperaturbereich  $+100^\circ C$  bis  $-120^\circ C$  durch die Funktion

$$\lg P_{UF_6} \text{ { Torr } } = 13,797 - 2751/T - 1,01 \lg T - 75 \cdot e^{-\left(\frac{2560}{T}\right)} \quad (4)$$

mit guter Genauigkeit dargestellt werden /15/.

---

\*) Bei den hier betrachteten niedrigen Kühlflächenbelastungen und den relativ dünnen  $UF_6$ -Schichten wird davon ausgegangen, daß die wirksamen Oberflächentemperaturen mit den Rippentemperaturen identisch sind.



2.3.2 Die Beziehungen zwischen den Koeffizienten des Wärme- und Stoffübergangs und den molekularen Transportgrößen für eine Laminarströmung im Anlaufgebiet

Der in der Differentialgleichung (3) durch die Stoffwerte des Gasgemisches und die Eigenschaften der Strömung im Wärmetauscher bestimmte Term  $\frac{\alpha}{\beta \cdot \rho \cdot c_p}$  (in der Literatur gelegentlich als Lewis'scher Koeffizient bezeichnet /11/,/12/) läßt sich für eine ausgebildete Laminarströmung mit Hilfe der molekularen Transportgrößen, Wärmeleitfähigkeit  $\lambda$  und Diffusionskonstante  $D$  darstellen.

Nach Hausen /11/ stimmt dieser Ausdruck für die ausgebildete Laminarströmung mit der Lewis-Zahl  $Le$  überein.

$$\left\{ \frac{\alpha}{\beta \cdot \rho \cdot c_p} \right\}_{\text{Laminar}} = \frac{\lambda}{D \cdot \rho \cdot c_p} = Le \quad (5)$$

Da im  $H_2/UF_6$ -Gemisch der Wärmetransport hauptsächlich durch die hohe Wärmeleitfähigkeit des Wasserstoffs bestimmt wird und der Stofftransport wegen des hohen Molekulargewichts des  $UF_6$  sehr langsam verläuft, ergeben sich im vorgesehenen Temperaturbereich für die Lewis-Zahlen sehr hohe Werte  $Le = 4,5$  bis  $5,5$ .

Dies bedeutet, daß bei der Abkühlung des  $H_2/UF_6$ -Gemisches eine außerordentlich große Neigung zur Übersättigung und damit zur Kondensation in der Gasphase gegeben ist, der bei festliegender Strömungsform im laminaren Bereich nur durch eine sehr starke Beschränkung der treibenden Temperaturdifferenzen begegnet werden könnte. Wegen der ebenso zu vermeidenden Gefahr des Abreißen von ausgefrorenen Reifkristallen ist bei dem vorliegenden Tieftemperatur-Abscheidersystem von der Anwendung einer

hochturbulenten Strömung abzusehen, bei der dieser Koeffizient den Wert 1 annehmen würde /11/:

$$\left\{ \frac{\alpha}{\beta \cdot \rho \cdot c_p} \right\}_{\text{turbulent}} = Le^0$$

Um dennoch mit technisch vertretbaren Werten der treibenden Temperaturdifferenz  $\vartheta - \vartheta_w$  arbeiten zu können, wurde als weitere Möglichkeit zur Herabsetzung der Übersättigungsneigung die Abscheidepassage des Wärmetauschers mit kurzen, abgesetzten Rippen vorgesehen, die die Strömung im thermischen und hydrodynamischen Anlaufbereich halten.

Die Ableitung des in Gleichung (3) benötigten Koeffizienten für eine Laminarströmung im Bereich der hydrodynamischen und thermischen Anlaufstrecke führt unter Zugrundelegung der Gleichung von Pohlhausen /10/ für die längsangeströmte ebene Platte zu der Beziehung:

$$\left\{ \frac{\alpha}{\beta \cdot \rho \cdot c_p} \right\}_{\text{Anlaufstrecke}} = Le^{2/3} \quad (6)$$

Zur Ableitung dieser Beziehung werden aufgrund der Analogie zwischen Stoff- und Wärmeübergang identische Lösungsfunktionen für die Differentialgleichung des Stoff- und Wärmetransports angesetzt /13/, /14/. Sie konnte unseres Wissens für Wärmetauscher mit abgesetzten Rippen bisher noch nicht experimentell bestätigt werden. Bei voller Gültigkeit ergibt sich eine beträchtliche Reduzierung der Übersättigung gegenüber der ausgebildeten Laminarströmung, da der Wert dieses Koeffizienten in die Lösung des Abkühlproblems exponentiell eingeht und die erreichten Endkonzentrationen empfindlich beeinflusst. Aus dem gleichen Grund ist eine ausreichend genaue Kenntnis der Lewis-Zahl für die Berechnung des Abkühlvorgangs wichtig.

2.3.3 Absolutberechnung der Transportkoeffizienten für das H<sub>2</sub>/UF<sub>6</sub>-Gemisch unter Benutzung des modifizierten Buckingham-Potentials

In Ermangelung von Meßwerten für die Wärmeleitfähigkeit  $\lambda$  und die Diffusionskonstante  $D$  von H<sub>2</sub>/UF<sub>6</sub>-Gemischen mußte eine Absolutberechnung dieser Transportgrößen unter Zugrundelegung der Molekülpotentials des Wasserstoffs und des UF<sub>6</sub> durchgeführt werden. Die Berechnung erfolgte mit Hilfe der von Hirschfelder et al /16/ beschriebenen Methode unter Zugrundelegung des modifizierten Buckingham-Potentials. Die in der Rechnung verwendeten Molekülparameter sind in Tabelle 1 zusammengestellt.

	H <sub>2</sub> /16/	UF <sub>6</sub> /17/	H <sub>2</sub> /UF <sub>6</sub> -Gemische
$\epsilon^*/k$ {K}	37,3	582	$\epsilon_{1,2}^* = \sqrt{\epsilon_1^* \cdot \epsilon_2^*}$
$r_m$ {Å}	3,337	5,44	$r_{m1,2} = \frac{1}{2} (r_{m1} + r_{m2})$
$\alpha$	14,0	14,75	$\alpha_{1,2} = \frac{1}{2} (\alpha_1 + \alpha_2)$

Tabelle 1: Die verwendeten Parameterwerte  $\epsilon^*/k$ ,  $r_m$ ,  $\alpha$  zur Darstellung des modifizierten Buckingham-Potentials von Wasserstoff/UF<sub>6</sub>-Gemischen.

Für die Angabe der Temperaturabhängigkeit der Wärmeleitfähigkeit  $\lambda$  und der Diffusionskonstanten  $D$  muß der Verlauf der reduzierten Stoßintegrale  $\Omega^{(11)*}(T^*)$  und  $\Omega^{(22)*}(T^*)$  in Abhängigkeit von der reduzierten Temperatur  $T^* = T/(\epsilon/k)$  bekannt sein. Für die Rechnung wurden deshalb die in /16/ tabellierten Einzelwerte der Hilfsintegrale  $S^{(11)}(T^*)$  und

$S^{(22)}(T^+)$  näherungsweise durch Polynomausdrücke analytisch dargestellt. Die verwendeten Polynomdarstellungen der Hilfsintegrale  $S^{(11)}(T^+)$  und  $S^{(22)}(T^+)$  und die Umrechnungsmethode in die Stoßintegrale  $\Omega^{(11)+}(T^+)$  und  $\Omega^{(22)+}(T^+)$  sind im Anhang I zusammengestellt.

#### Die Molwärme $c_p$

Für die Berechnung der Wärmeleitfähigkeit  $\lambda$  werden die Werte der Molwärme  $c_p$  benötigt. Diese wurde aus den Molwärmern der reinen Gemischkomponenten entsprechend den analytischen Ansätzen (7) und (8) durch lineare Mittelung erhalten:

$$c_p(\text{UF}_6) = 32,43 + 0,00794 \cdot T - \frac{320680}{T^2} \left\{ \frac{\text{kcal}}{\text{kMolK}} \right\} \quad /15/ \quad (7)$$

$$c_p(\text{H}_2) = 2,093 \cdot T^{0,208} \left\{ \frac{\text{kcal}}{\text{kMolK}} \right\} \quad /18/ \quad (8)$$

#### Die Wärmeleitfähigkeit $\lambda$

Die benutzten Formeln zur Berechnung der Wärmeleitfähigkeit in binären Gemischen aus mehratomigen Gasen sind im Anhang II aufgeführt. Die Ergebnisse dieser Absolutberechnungen lassen sich für die Wärmeleitfähigkeit  $\lambda$  der reinen Komponenten unmittelbar mit experimentellen Werten vergleichen /15/, /19/, /20/ und zeigen dort gute Übereinstimmung.

#### Die Diffusionskonstante D

Für  $\text{H}_2/\text{UF}_6$ -Gemischen liegen Messungen der Diffusionskonstante D von Ljunggren /21/ bei  $\text{UF}_6$ -Konzentrationen von ca. 5% vor. Im Vergleich dazu liefert die durchgeführte

Absolutberechnung um etwa 18% zu hohe Werte für die Diffusionskonstante  $D$ . Um die Übereinstimmung mit dem Experiment herzustellen, wurden die rechnerischen Werte der Diffusionskonstante mit einer entsprechenden Korrektur versehen. Der so korrigierte Rechenwert für  $D$  ist in Abb. 4 in Abhängigkeit von der Gemischtemperatur aufgetragen.

#### Die Lewis-Zahl $Le$

Bei der Ermittlung der Temperaturabhängigkeit der Lewis-Zahl ist zu beachten, daß sich während einer Temperaturänderung die  $UF_6$ -Konzentration im  $H_2/UF_6$ -Gemisch im allgemeinen ändert. Für die Berechnung wurde daher angenommen, daß der  $UF_6$ -Molenbruch im Gemisch durch den  $UF_6$ -Sättigungsdruck bei der Gemischtemperatur bestimmt ist. Die unter dieser Annahme berechneten Werte der Lewis-Zahl  $Le$ , der Wärmeleitfähigkeit  $\lambda$ , der Molwärme  $c_p$  und des  $UF_6$ -Partialdruckes  $p_{UF_6}$  sind in Abb. 4 in Abhängigkeit von der Gemischtemperatur dargestellt. Für Wasserstoff/ $UF_6$ -Gemische mit  $UF_6$ -Molenbrüchen zwischen 0,1% und 10%  $UF_6$  sind die so berechneten Lewis-Zahlen, die Wärmeleitfähigkeit  $\lambda$  und die Diffusionskonstante  $D$  in Tabellenform im Anhang II angegeben.

Für Gemische mit  $UF_6$ -Gehalten unter 0,1%  $UF_6$  läßt sich wegen des verschwindenden Einflusses des  $UF_6$  auf die Wärmeleitung des Gemisches ein verhältnismäßig einfacher Ausdruck für die Lewis-Zahl als Näherungslösung angeben. Er ist im Anhang III angefügt.

Da in dem betrachteten Abscheidersystem die Anfangskonzentrationen stets über 0,1%  $UF_6$  lagen und die Zustandsänderungen beim Abkühlvorgang von dem mit der Lewis-Zahl berechneten Koeffizienten  $Le^{2/3}$  empfindlich abhängen, wurden bei der Berechnung von Abkühlkurven grundsätzlich die Ergebnisse der exakten Berechnungsmethode benutzt.

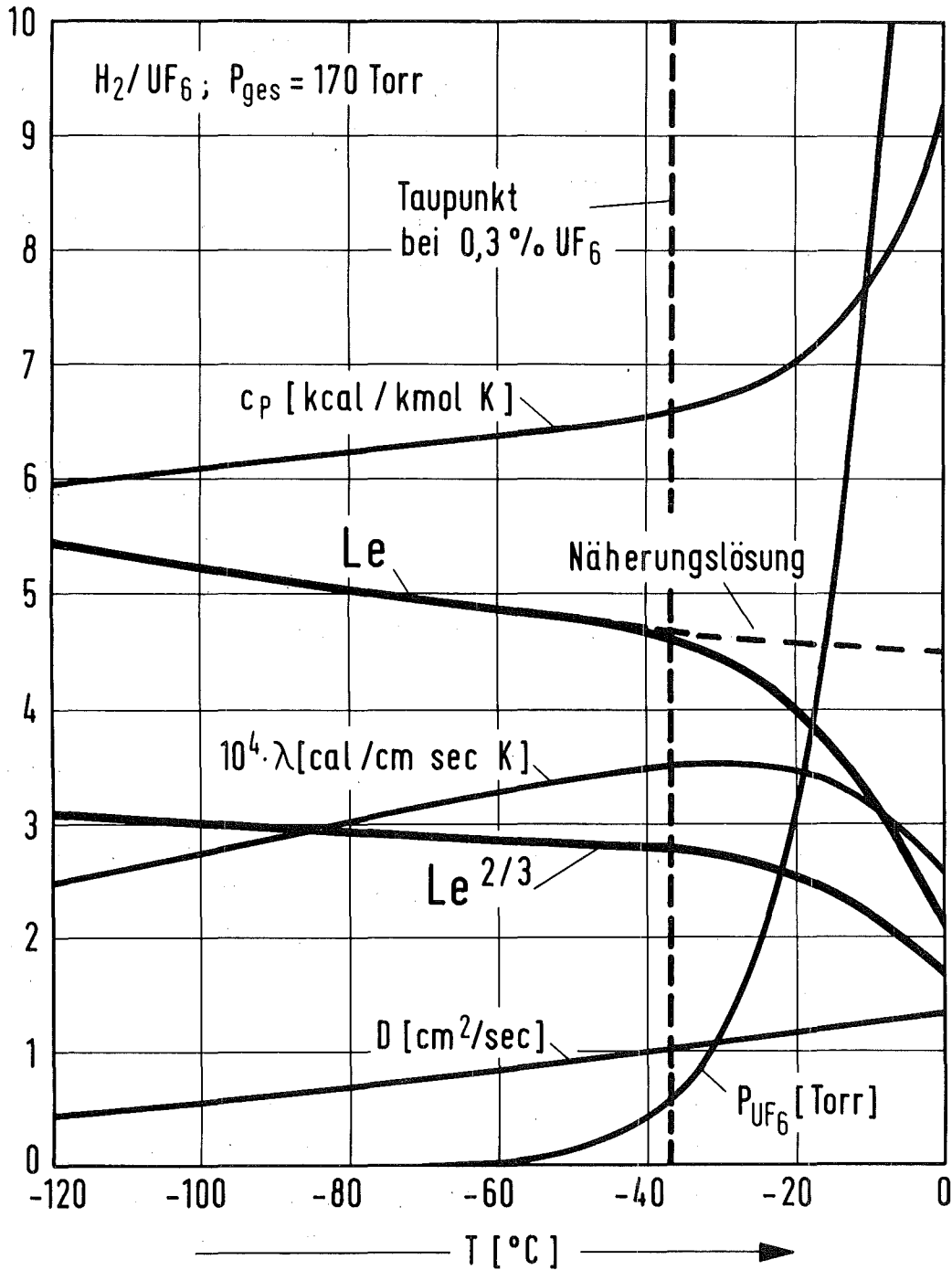


Abb. 4: Die Temperaturabhängigkeit der Lewis-Zahl  $Le$  und die zu ihrer Berechnung benötigten Stoffwerte: Wärmeleitfähigkeit  $\lambda$ , Diffusionskonstante  $D$ , Molwärme  $c_p$  gesättigter  $UF_6/H_2$ -Gemische mit dem  $UF_6$ -Partialdruck  $P_{UF_6}$ . Zum Vergleich ist der mit dem vereinfachten Ansatz (siehe Anhang III) berechnete Verlauf der Lewis-Zahl gestrichelt eingezeichnet.

### 3. Die Versuchsanlage und die Versuchstechnik

#### 3.1 Der Aufbau der Versuchsanlage

Das Funktionsprinzip der Versuchsanlage, mit der die vorliegenden Untersuchungen durchgeführt wurden, geht aus dem in Abb. 5 dargestellten Fließschema hervor. Der Umwälzverdichter C1 fördert das vom Verdichternachkühler W1 auf ca. 40°C rückgekühlte Verfahrensgas, dessen Volumenstrom über das Bypassventil H2 variiert werden kann, unter den mit PH1 bis PH14 bezeichneten Drücken durch einen Pufferbehälter und den thermischen Durchflußmesser FH1, über den Vorkühler W2, den UF<sub>6</sub>-Abscheider W3 das Filter und den Endkühler W4 im Kreislauf. Durch Zumischung von reinem UF<sub>6</sub> durch die UF<sub>6</sub>-Einspeiseventile U1 und U2 wird die gewünschte UF<sub>6</sub>-Konzentration des der Tieftemperaturabscheidung zugeführten Rohgases eingestellt.

Im Vorkühler W2 wird das H<sub>2</sub>/UF<sub>6</sub>-Gemisch zunächst auf eine Temperatur abgekühlt, die noch über dem Taupunkt des UF<sub>6</sub> liegt. Im Abscheider W3 kann das Gemisch bis auf die gewünschte Endtemperatur abgekühlt werden. Dabei unterschreitet die UF<sub>6</sub>-Komponente ihren Taupunkt und schlägt sich auf den Wänden der Abscheiderpassagen nieder.

Das dem Abscheider nachgeschaltete Filter ist zum Auffangen und zum Nachweis fester UF<sub>6</sub>-Partikel vorgesehen, die als Folge hoher Übersättigungsgrade durch spontane Kondensation in der Gasphase in Form von Schnee vom Gasstrom mitgetragen oder als Reifansatz von der Abscheideroberfläche durch die Strömung abgerissen und mit der Strömung ausgetragen werden können.

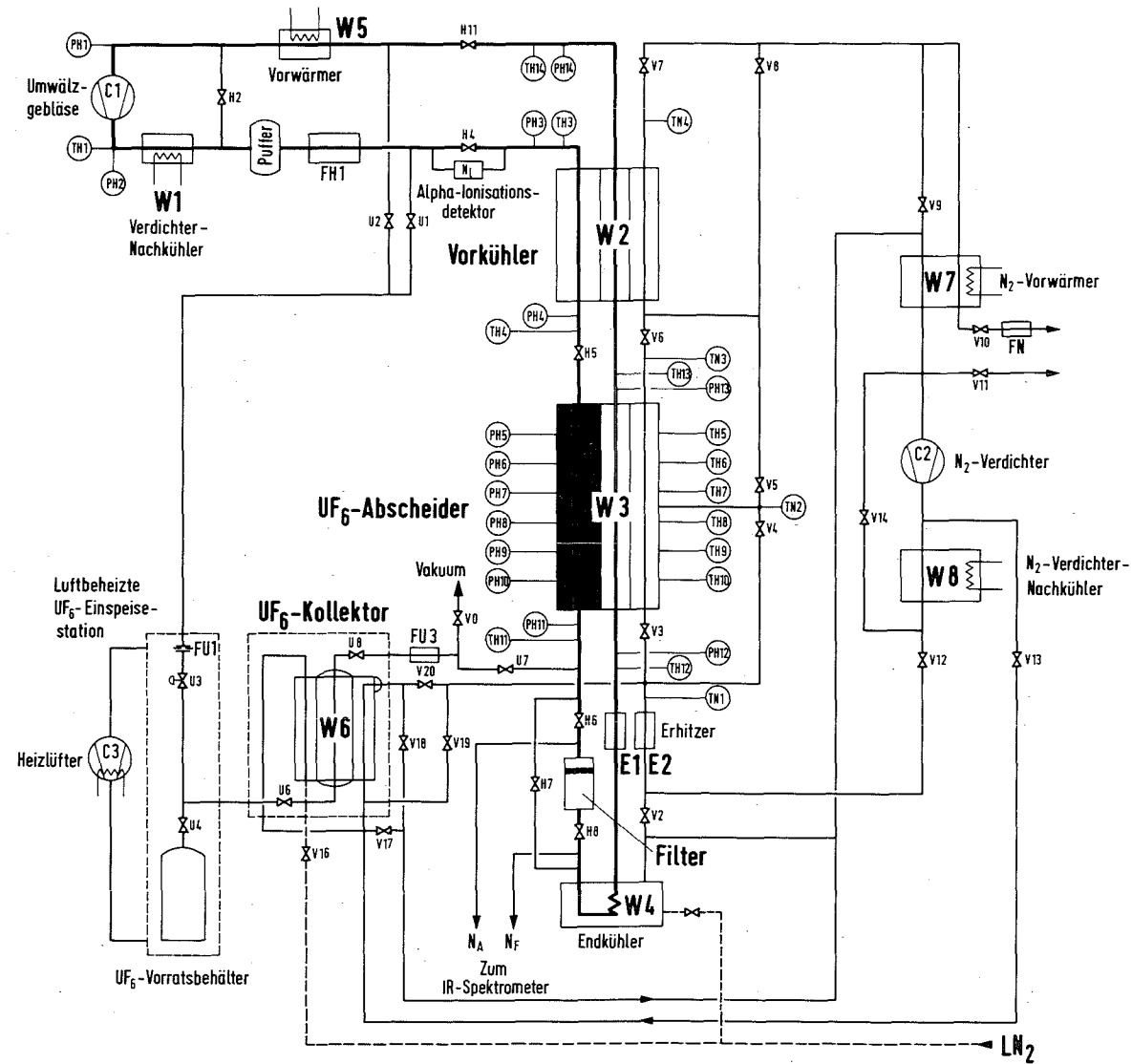


Abb. 5: Fließschema der Versuchsanlage zur  $UF_6$ -Abscheidung.



Der Endkühler W4 deckt die Kälteverluste des Systems. Die Verfahrensgas-Passagen dieses Endkühlers stehen in einem Kältebad aus flüssigem Stickstoff, dessen Füllstandshöhe variiert werden kann. Der nachgeschaltete elektrische Erhitzer E1 übernimmt die Feinregulierung der  $H_2$ -Rücklauftemperatur TH12. Zur Abkühlung der bei der Desublimation des  $UF_6$  freiwerdenden Kondensationswärme und zur Steuerung des Temperaturprofils im Abscheiderblock wird durch eine Hilfspassage ein gasförmiger, in seiner Stromstärke regulierbarer Stickstoffstrom mit der Temperatur TN1 geführt. Diese zusätzliche Passage ermöglicht außerdem die Aufheizung des nach einem Abscheideversuch mit  $UF_6$  gefüllten Abscheiders mit Hilfe des  $N_2$ -Verdichters C2 und des elektrischen Erhitzers E2.

Der Umwälzverdichter ist ein faltenbalg-gedichteter Kolbenverdichter der Fa. HISPANO-SUIZA, Paris, mit berührungsfrei geführten Torus-Kolben und Labyrinth-Dichtungen. Der restliche verfahrenstechnische Teil der ganz in der Leichtmetalllegierung AlMg3 ausgeführten Tieftemperatur-Anlage wurde als betriebsbereit montierte Kompakt-Anlage von der Fa. LINDE, Abt. TGS, Höllriegelskreuth, geliefert<sup>\*)</sup>. Alle Wärmetauscher bestehen aus Kompaktwärmetauscherblöcken, deren Leichtmetall-Plattenstruktur im Tauchbad vakuumdicht und überdruckfest verlötet ist (Hersteller MARSTON EXCELSIOR, Wolverhamton, England). Sämtliche Flanschverbindungen mit Nennweiten größer als NW10 sind mit Metalldichtringen und Leckprüfmöglichkeit ausgerüstet. Die Ventile sind mit Faltenbalg und Sicherheitsstopfbuchse ausgestattet und besitzen entweder me-

---

\*) Bei Entwurf und Auslegung dieser Versuchsanlage hat Herr Dr. Ing. H.J. Fritsch, jetzt Farbwerke Höchst AG, maßgeblich mitgewirkt.

tallische Sitzdichtungen oder solche aus KEL-F-Formteilen. Die Vakuumdichtigkeit der kompletten Anlage ist durch einen Lufteinstrom von weniger als  $10^{-4}$  Torr l/sec charakterisiert.

### 3.1.1 Der $UF_6$ -Abscheider

Der  $UF_6$ -Abscheider W3 ist (wie auch der Vorkühler W2) ein Plattenwärmetauscher mit drei getrennten Strömungskanälen. Sein Aufbau ist in Abb. 6 gezeigt. Die Passagen, in denen das  $UF_6$  aus dem Rohgas abgeschieden wird, sind mit besonders hohen und engen Rippen ausgestattet, so daß sich ein verhältnismäßig großer Volumenanteil für die Abscheidung des  $UF_6$  ergibt. Die Abbildung läßt die abgesetzte Berippung mit kurzen Rippenlängen in den Abscheidepassagen erkennen. Damit wird die Strömung ständig im Bereich der thermischen und hydrodynamischen Anlaufstrecke gehalten. Dies führt nicht nur zu der erwünschten Verbesserung des Stofftransports gegenüber dem Wärmetransport aufgrund des in Abschnitt 2.2 beschriebenen Mechanismus, sondern ergibt zugleich auch eine Abscheidestruktur, die eine hohe Wahrscheinlichkeit für das Auffangen von auskondensierten  $UF_6$ -Kristalliten oder abgerissenen Reifeteilchen bietet.

Die Passagen für das zurückgeführte Reingas und für den Hilfsstrom besitzen eine glatte, durchlaufende Berippung geringer Höhe. Bei der Dimensionierung der Berippung der Passagen wurde nach den in /4/ beschriebenen Auswahlkriterien vorgegangen, die einen günstigen Kompromiss zwischen hoher Beladungsmöglichkeit, kleinem Druckabfall und niedriger treibender Temperaturdifferenz zwischen Strömungskern und Wand in der Abscheidepassage vorsehen.

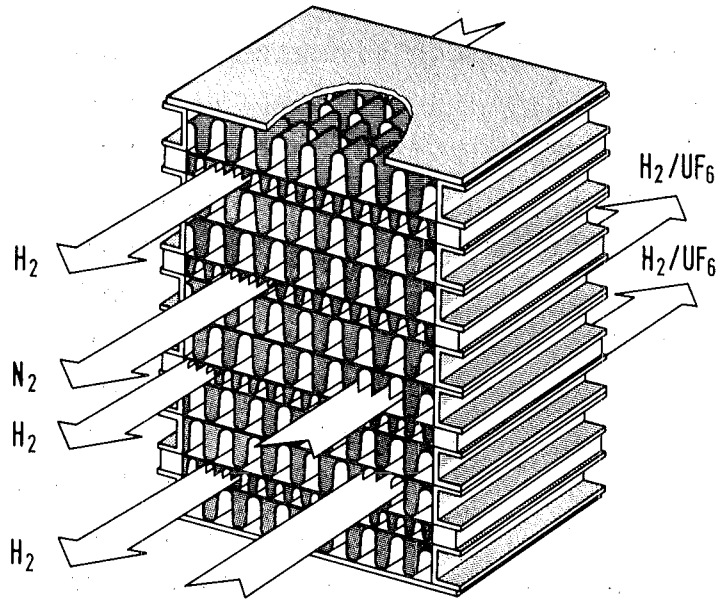


Abb. 6: Schematische Darstellung des als Abscheider verwendeten Gegenstrom-Kompaktwärmetauschers mit abgesetzten Rippen in den Abscheidepassagen und glattem Profil in den Rückstrom- und Hilfspassagen.

Passage	Abscheiden	Rückführung	Hilfspassage
Code	464(S)1008	250(P)1008	250(P)1008
Rippenabstand {mm}	2,5	2,5	2,5
Rippenhöhe {mm}	11,8	6,3	6,3
Anzahl der Passagen	8	4	1
Gesamte Oberfläche {m <sup>2</sup> }	83,1	25,3	6,3
Hydraulischer Durchmesser {mm}	3,9	3,4	3,4

Tabelle 2: Dimensionierung der in den einzelnen Passagen des Abscheiders verwendeten Berippungen. Hersteller: Marston Excelsior, Wolverhampton, England.

Als Wärmetauscherblöcke des  $\text{UF}_6$ -Abscheiders und des Vorkühlers wurden für die Versuchsanlage repräsentative Ausschnitte der heute technisch einsetzbaren Wärmetauscherblöcke ausgewählt. Da eines der Hauptprobleme bei dieser Art von Wärmetauschern die gleichmäßige Verteilung der Gasströme über die gesamte Breite der Passagen und weniger die gleichmäßige Verteilung auf die parallelen Passagen darstellt, wurde eine Wärmetauscherkonfiguration gewählt und erprobt, die die volle Breite der heute produzierbaren Wärmetauscherblöcke von ca. 90 cm ausnutzt. Die Anzahl der in der Versuchsanlage eingesetzten Passagen beträgt jedoch nur ca. 1/7 der in einem industriellen Block mit 90 cm x 90 cm Querschnitt erreichbaren Passagenzahl. Mit dem so gewählten Abscheiderquerschnitt ergab sich eine günstige Auslastung des zur Verfügung stehenden Umwälzverdichters C1, dessen Ansaugvolumen ca.  $1100 \text{ m}^3/\text{h}_{\text{eff}}$  beträgt. Die Anordnung der Passagen mit den in Tabelle 2 angegebenen Berippungen und mit der Passagenaufteilung H U U H U U N U U H U U H in diesem Versuchsblock entspricht der in der industriellen Anlage vorgesehenen Verteilung von Rohgaspassagen U, der Reingaspassagen H und der Hilfsgaspassagen N. Dabei ist in der Tatsache, daß bei der begrenzten Passagenzahl in dem Versuchsabscheiderblock nur eine einzige Hilfsgaspassage im Zentrum angeordnet werden konnte, eine gewisse Erschwernis für die Versuchsanlage zu sehen, da wegen des Wärmeeinstroms durch die Isolation die Temperaturverteilung im Versuchsblock etwas ungünstiger sein dürfte als in einer industriellen Anlage. Insgesamt kann bei diesem Vorgehen eine vollständige Übertragbarkeit der hier erreichten Ergebnisse auf industrielle Anlagen erwartet werden.

### 3.1.2 Der Vorkühler W2

Der Vorkühler soll das zu trennende  $H_2/UF_6$ -Gemisch so weit kühlen, daß für die Kondensation des  $UF_6$  im anschließenden Abscheider W3 keine nennenswerte Temperaturabsenkung mehr erforderlich ist. Die Temperaturdifferenz zwischen Gemisch- und Rückstrom muß wegen der Anschlußbedingung an den Abscheider gering gehalten werden. Deshalb wurde auch hier ein Plattenwärmetauscher mit hohen Wärmeübertragungswerten vorgesehen. Die wie beim Abscheider eingebaute Hilfsstrompassage gestattet gleichfalls eine gezielte Beeinflussung der Temperaturverteilung in diesem Wärmetauscherblock. Hier besitzen alle drei Passagen glatte, durchlaufende Berippung; die Passagen für den Rohgas- und für den Reingasstrom sind identisch ausgeführt.

### 3.1.3 Das Filter

Dem  $UF_6$ -Abscheider ist ein über das Ventil H7 umgehbares Filter nachgeschaltet, das zwei hintereinanderliegende Edelstahlnetze von 100 bzw. 50 Mikron Maschenweite besitzt. Jedes der genannten Filternetze besitzt eine Fläche von  $0,4 \text{ m}^2$ . Das Gas strömt mit einer Strömungsgeschwindigkeit von ca.  $1,5 \text{ m/sec}$ , d. h. bei einer Reynolds-Zahl  $Re \approx 0,1$ , durch die Filtermaschen. Das Filter ist zum quantitativen Nachweis eines massiven Austragens von  $UF_6$ -Schnee auf beiden Seiten absperrbar, so daß nach Evakuieren im kalten Zustand und anschließendem Aufwärmen die Menge des darin aufgefangenen  $UF_6$  aus dem Gesamtdruck oder durch Entnahme und Wägung bestimmt werden kann.

Liegt der  $UF_6$ -Austrag im Bereich geringer Übersättigungswerte bei Abscheiderendtemperatur, so kann zwischen dem Aus-

filtern von Schnee und Reifansatz in den Filtermaschen nicht unterschieden werden, da der Übersättigungsabbau bei den obigen Strömungsverhältnissen mit extrem kurzen Diffusionslängen praktisch vollständig erfolgt. Dies war bei den vorliegenden Versuchen stets der Fall und es mußte daher der Nachweis, daß keine Kondensation in der Gasphase auftrat, indirekt erbracht werden (siehe Abschnitt 4.3).

#### 3.1.4 Das $\text{UF}_6$ -Einspeisesystem

Die Einspeisung des  $\text{UF}_6$  in den Reingasstrom kann an zwei verschiedenen Stellen erfolgen. Die Einspeisestelle mit dem Ventil U2 sitzt auf der Ansaugseite des Umwälzverdichters. Da der volumetrische Wirkungsgrad des Verdichters stark vom Molekulargewicht des Arbeitsmediums abhängig ist, läßt sich durch Einspeisung von  $\text{UF}_6$  auf der Saugseite eine Leistungssteigerung gegenüber der Einspeisung über U1 auf der Druckseite erzielen. Bei dieser zweiten Einspeiseart wirken sich jedoch Änderungen der Gemischkonzentration nicht auf den Gesamtdurchsatz der Anlage aus, und die Anzeige des thermischen Durchflußmessers, der für das reine Zusatzgas geeicht ist, braucht nicht nach Maßgabe der jeweiligen  $\text{UF}_6$ -Konzentration korrigiert zu werden.

Das einzuspeisende  $\text{UF}_6$  kann entweder aus dem  $\text{UF}_6$ -Vorratsbehälter oder aus dem  $\text{UF}_6$ -Kollektor W6 entnommen werden. Die Heizung des Vorratsbehälters erfolgt über einen Heizlüfter C3, der den Behälter und das Rohrleitungssystem der  $\text{UF}_6$ -Einspeisung mit Hilfe eines umgewälzten Stickstoffstromes beheizt. In der Einspeiseleitung befindet sich die überkritische Durchfluß-Meßblende der FU1. Der Blendenvordruck wird mit einem Druckregler auf einen vorgegebenen Sollwert geregelt.

### 3.1.5 Die Kälteversorgung der Hilfspassagen

Die Abführung der Desublimationswärme des  $UF_6$  und die Steuerung des Temperaturprofils im Abscheider erfolgt mit einem kalten Stickstoffstrom, dessen Eintritts-Temperatur  $T_{N1}$  im allgemeinen auf der Temperatur  $TH_{12}$  des in den Abscheider wiedereintretenden Reingases gehalten wird. Dazu wird der im Endkühler verdampfende Stickstoff über einen elektrischen Erhitzer E2, der die Feinregulierung der Temperatur übernimmt, dem Abscheider zugeführt. Die Mengenregelung des Kühlstroms wird mit Hilfe des Regelventils V10 am Ausgang des  $N_2$ -Kreislaufes durchgeführt. Ein über die Menge des benötigten Kühlstroms im Endkühler W4 hinaus verdampfender Stickstoffüberschuß wird über das Überdruckventil V11 in die Atmosphäre abgeblasen. Sinkt die verdampfende Stickstoffmenge im Endkühler jedoch unter den benötigten Wert, so kann durch eine elektrische Zusatzheizung im Kältebad zusätzlicher Stickstoff verdampft werden, ohne daß sich bei konstant gehaltenem Stickstoffniveau die im Endkühler auf den Wasserstoffstrom übertragene Kälteleistung ändert.

## 3.2 Der Betrieb der Versuchsanlage

### 3.2.1 Vorbereitung des Abscheidebetriebs

Die Anlage wird im allgemeinen mit Füllung von Reinwasserstoff beim gewünschten mittleren Betriebsdruck in Betrieb genommen und durch Einkühlen des Endkühlers nach unterschiedlichen Zeitprogrammen in eine für den Abscheidebetrieb gewünschte Anfangsverteilung der Temperatur in

Abscheider und Vorkühler gebracht. Unmittelbar im Anschluß an den Einkühlvorgang beginnt die  $\text{UF}_6$ -Einspeisung entweder aus dem  $\text{UF}_6$ -Vorratsbehälter oder aus dem  $\text{UF}_6$ -Kollektor W6 oder bei großem  $\text{UF}_6$ -Bedarf aus beiden gleichzeitig.

### 3.2.2 Die Austragung des $\text{UF}_6$ aus dem Abscheider

Nach Beendigung des Abscheidebetriebs bei voller Beladung des  $\text{UF}_6$ -Abscheiders wird dieser mit den Ventilen H5 und H6 beidseitig abgesperrt und der Wasserstoffinhalt im eingekühlten Zustand über die Ventile U7 und V0 bis auf einen Restdruck  $< 0,1$  Torr evakuiert.

Der beladene Abscheider wird dann mit Hilfe eines Stickstoffstroms, der von dem  $\text{N}_2$ -Verdichter C2 umgewälzt wird, aufgewärmt. Neben der Verdichtungswärme des Umwälzverdichters kann dem Heizstrom durch den Erhitzer E2 zusätzliche Energie zugeführt werden. Das verdampfende  $\text{UF}_6$  wird über das Ventil U7, den Durchflußmesser FU3 und das Ventil U8 in den zuvor gekühlten  $\text{UF}_6$ -Kollektor W6 übergefroren.

### 3.2.3 Das Überfrieren des $\text{UF}_6$ in den Kollektor W6

Der  $\text{UF}_6$ -Kollektor W6 ist ebenfalls ein Plattenwärmetauscher, der drei getrennte Passagen besitzt. Die erste Passage dient zur Aufnahme des  $\text{UF}_6$  und nimmt den wesentlichen Teil des Kollektorvolumens ein. Sie besitzt eine glatte Berippung. Da in diesem Kollektor praktisch inertgasfreies, reines  $\text{UF}_6$  auszufrieren ist, wird mit dem Einkühlen des Kollektors vom unteren Ende her erst dann begonnen, wenn ein genügend hoher  $\text{UF}_6$ -Druck im angeheizten  $\text{UF}_6$ -Abscheider W3 ansteht. Dann wird durch Zufuhr



von flüssigem Stickstoff in die zweite Passage der Kollektor vom unteren Ende her mit  $\text{UF}_6$  beladen. Dabei kann der verdampfte Stickstoff durch die dritte Passage geführt werden, aber ebenso ist es möglich, warmen Stickstoff in beiden Richtungen durch die dritte Passage zu führen, um die Wanderungsgeschwindigkeit der Zone, in der  $\text{UF}_6$  ausgefroren wird, zu steuern.

#### 3.2.4 Die Rückspeisung des $\text{UF}_6$ in den Vorratsbehälter

Der beladene Kollektor kann nach Absperrern gegenüber dem Rest der Anlage mit Hilfe des vom Stickstoffverdichter C2 umgewälzten und erwärmten Stickstoffstroms entweder über das Ventil V13 oder über den Erhitzer E2 und die Ventile V20 oder V19 angewärmt werden. Der Kollektor ist so ausgelegt, daß das darin abgeschiedene  $\text{UF}_6$  durch Erhitzen über den Tripelpunkt (Tripelpunkt des  $\text{UF}_6$ ;  $T_t = 64^\circ\text{C}$ ,  $P_t = 1134$  Torr) verflüssigt werden und über die Ventile U4 und U6 in den Vorratsbehälter flüssig abgelassen werden kann.

#### 3.2.5 Sicherheitsvorkehrungen beim Umgang mit $\text{UF}_6$

Die Volumina von  $\text{UF}_6$ -Abscheider W3,  $\text{UF}_6$ -Kollektor W6 und des Vorratsbehälters sind so bemessen, daß die in der Anlage gehandhabte Gesamtmenge von ca. 100 kg  $\text{UF}_6$  in keinem dieser Volumina eine Überfüllung verursachen und damit beim Aufwärmen zu einem Bersten der Behälter führen kann. Diesen Sicherheitsvorkehrungen ist beim Umgang mit festem und flüssigem  $\text{UF}_6$  besondere Aufmerksamkeit zu widmen, da die Dichte des  $\text{UF}_6$  beim Aufwärmen und beim Übergang vom festen in den flüssigen Zustand stark abnimmt, d. h., daß beim Durchlaufen der in der Versuchsan-

lage auftretenden Temperaturunterschiede einschließlich des Phasenübergangs Volumenzunahmen von über 50% vorkommen. Aus diesem Grunde muß auch vermieden werden, daß sich in den einzelnen Rohrleitungsabschnitten festes  $UF_6$  absetzen kann. Daher sind alle Leitungen, in denen reines  $UF_6$  gehandhabt wird, mit einer Begleitheizung versehen, die die Wandtemperatur zuverlässig oberhalb der Tripelpunktstemperatur hält. In der Versuchsanlage wurden hierfür abschnittsweise geregelte elektrische Begleitheizungen benutzt, die in direktem thermischen Kontakt mit den Rohrwandungen stehen.

In industriellen Anlagen wird man die Teile, in denen  $UF_6$  unter Überdruck in der flüssigen Phase gehandhabt wird, in besonderen Räumen unterbringen. Dieser Vorsichtsmaßnahme wurde bei der Versuchsanlage dadurch entsprochen, daß alle unter Überdruck mit  $UF_6$  betriebenen Teile in zwei getrennten, einzeln über eine Waschkolonne entlüfteten Containments angeordnet wurden, zwischen denen als  $UF_6$ -Überdruckverbindung lediglich ein glattes Rohr ohne Schweißnähte und ohne Flansche mit entsprechender Beheizung angeordnet war.

### 3.3 Instrumentierung und Meßwerterfassung

#### 3.3.1 Druckmessung

Alle für die Betriebssicherheit der Versuchsanlage wichtigen Druckmeßstellen sind mit direktanzeigenden Manometern<sup>1)</sup> ausgerüstet. Diese Druckmeßstellen sind zusätzlich mit elektrischen Absolutdruckaufnehmern<sup>2)</sup> für die weitere

---

1) Hersteller: Appleby and Ireland, Alton, England; Typ AI101

2) Hersteller: Bell & Howell, Friedberg; Typ 4-366.

Meßwertverarbeitung versehen, ebenso wie alle weiteren für die Versuchsauswertung benötigten und für Regelzwecke eingesetzten Druckmeßstellen. Diese Druckaufnehmer haben bei Meßbereichen von 250 Torr bzw. 2500 Torr Vollausschlag jeweils Meßgenauigkeiten von  $\pm 0,3$  % des Meßbereichs.

Für die genaue Messung der Differenzdrucke  $\Delta p$  längs der Passagen des  $UF_6$ -Abscheiders und  $\Delta p_F$  am Filter wurden Differenzdruckaufnehmer<sup>3)</sup> mit Meßbereichen von 50 Torr Differenzdruck und einer Meßgenauigkeit von  $\pm 0,7$  % des Meßbereichs eingesetzt.

### 3.3.2 Temperaturmessung

Für die Temperaturmessung werden an allen Meßstellen Widerstandsthermometer Pt100 mit einer Eichgenauigkeit von  $\pm 0,2^\circ C$  eingesetzt.

### 3.3.3 Durchflußmessung

Die Stromstärke des im Kreislauf geförderten Verfahrensgasstromes wird mit Hilfe eines kalorischen Durchflußmessers<sup>4)</sup> ermittelt. Der gleiche Durchflußmessertyp wird für die Durchflußmessung des reinen  $UF_6$  in der Verbindungslleitung zwischen Abscheider und Kollektor eingesetzt. Diese Geräte zeigen für konstante spezifische Wärme bzw. konstante Zusammensetzung des strömenden Mediums den Massendurchfluß unabhängig von Druck und Temperatur an. In der  $UF_6$ -Einspeisung wird die eingespeiste  $UF_6$ -Strom-

---

3) Hersteller: Hartmann & Braun, Frankfurt; Typ TDMZ 199

4) Hersteller: Hastings, Hampton (USA); Typ EAHL

stärke mit der überkritischen Meßblende FU1 gemessen. Bei Anliegen eines überkritischen Druckverhältnisses an der Blende ist der  $\text{UF}_6$ -Durchsatz proportional zum Blendenvordruck. Die Regelung der Einspeisemenge erfolgt über die Regelung dieses Blendenvordrucks.

### 3.3.4 Messung der $\text{UF}_6$ -Konzentration im Rohgas

Zur Messung der  $\text{UF}_6$ -Konzentrationen zwischen 0,1 und 0,6% im Rohgas wird ein Alpha-Ionisationsdetektor<sup>5)</sup> eingesetzt. Dieser erzeugt durch Alphastrahlung im Gasraum einen Ionenstrom, dessen Größe überwiegend durch die Anwesenheit des  $\text{UF}_6$  bestimmt ist. In Kombination mit der Anzeige eines am gleichen Meßort angeschlossenen Druckaufnehmers wird in einer Rechenschaltung des Gerätes unmittelbar die  $\text{UF}_6$ -Konzentration aus den Meßwerten von Ionenstrom und Gesamtdruck berechnet.

### 3.3.5 Nachweis von $\text{UF}_6$ -Spuren im Reingas

Der Nachweis von  $\text{UF}_6$ -Spuren im Bereich von 0,1 bis 1000 ppm im Reinwasserstoff erfolgt mit Hilfe eines Zweistrahl-Infrarotspektrometers<sup>6)</sup>, das zu diesem Zweck mit 1 Meterlangen Nickelküvetten mit  $\text{AgCl}$ -Fenstern ausgerüstet wurde. Für die Messung wurde von den Infrarot-Absorptionsbanden des  $\text{UF}_6$ -Spektrums diejenige mit der größten Absorption bei der Wellenzahl  $626 \text{ cm}^{-1}$  verwendet.

Das Spektrometer wurde mit  $\text{UF}_6$ -gesättigtem Wasserstoffgas im Durchstrom und bei stehendem Gasinhalt geeicht.

---

5) Eigenentwicklung des Instituts für Kernverfahrenstechnik, Gesellschaft für Kernforschung Karlsruhe /22/.

6) Hersteller: Perkin Elmer, Überlingen; Typ 325.

Dazu wurde ein Wasserstoffstrom durch eine mit  $\text{UF}_6$  gefüllte, in einem Kältemittelbad thermostatisierte Kühlfalle geführt, in der er sich mit  $\text{UF}_6$  unter Sättigungsdruck beladen konnte. Die Gleichmäßigkeit der Beladung wurde durch Variation der Stromstärke und durch Messungen in einem großen Bereich des Gemischgesamtdruckes kontrolliert. Als Grundlage der Eichung wurde der aus der Dampfdruckfunktion Gleichung (4) folgende Sättigungsdruck des  $\text{UF}_6$  bei der Temperatur des Kältebades benutzt.

Eine Eichung des Spektrometers im Bereich der  $\text{UF}_6$ -Partialdrücke von  $10^{-5}$  bis  $5 \cdot 10^{-2}$  Torr ergab im Bereich der Gesamtdrücke von 0,1 bis 200 Torr eine zum  $\text{UF}_6$ -Partialdruck proportionale Extinktion  $E$ , wobei die Anwesenheit des Wasserstoffs weder die Form der  $\text{UF}_6$ -Absorptionsbande noch ihre Absoluthöhe beeinflusste.

Die Messung der Spurenkonzentrationen des  $\text{UF}_6$  wurde mit einer mechanischen Spaltbreite des Spektrometers von 5 bis 8 mm entsprechend einer spektralen Spaltbreite von 6,7 bis  $10,7 \text{ cm}^{-1}$  durchgeführt. Dabei ergab sich ein Absorptionskoeffizient von 10,1 bzw. 9,0  $\{\text{Torr}^{-1} \cdot \text{m}^{-1}\}$ . Der in Abb. 7 gezeigte Ausschnitt aus der Eichkurve des Spektrometers für den Bereich bis  $1,4 \cdot 10^{-4}$  Torr  $\text{UF}_6$  Partialdruck, der bei einem Gesamtdruck des Gemisches von 170 Torr dem Bereich bis 0,8 ppm  $\text{UF}_6$  entspricht, zeigt, daß der Nachweis von  $\text{UF}_6$ -Gehalten unter 1 ppm mit einer Genauigkeit von etwa  $\pm 0,1$  ppm möglich war<sup>\*)</sup>.

---

\*) Die Eichung des Infrarotspektrometers wurde von Herrn Dipl.-Ing. H. Steinhaus durchgeführt.

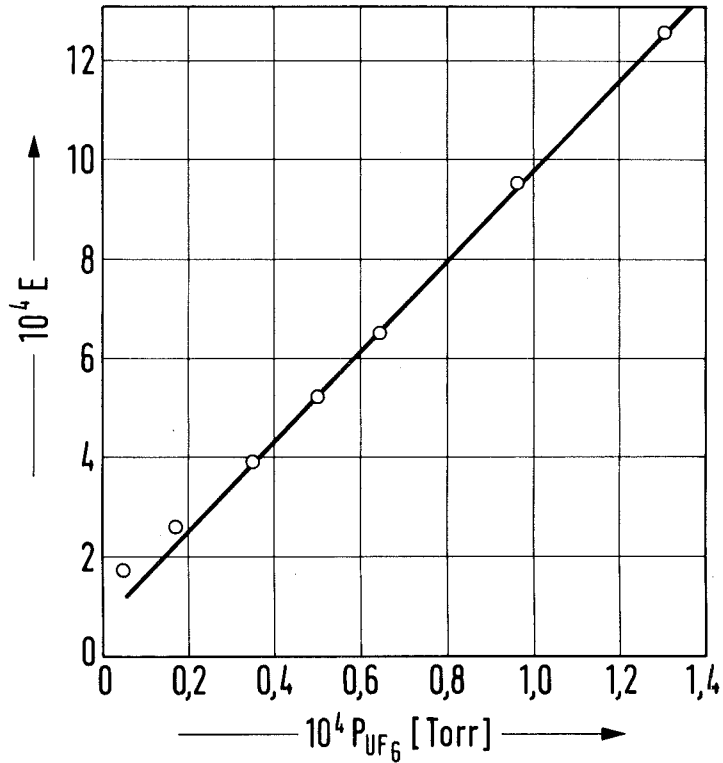


Abb. 7: Die gemessene Abhängigkeit der Extinktion  $E$  vom  $\text{UF}_6$ -Partialdruck in  $\text{H}_2/\text{UF}_6$ -Gemischen.<sup>6</sup> Die Messungen wurden bei einer spektralen Spaltbreite von  $10,7 \text{ cm}^{-1}$  und einer Durchstrahlungslänge von 1 m durchgeführt (Wellenzahl  $625 \text{ cm}^{-1}$ ).

### 3.4 Meßwertverarbeitung

Alle Meßwerte werden in Form elektrischer Spannungen von 0 bis 40 mV einer zentralen Meßwarte zugeführt, deren Blockschaltbild in Abb. 8 dargestellt ist. Jeder Meßwert kann von zwei unabhängigen Systemen verarbeitet werden.

In der unteren Hälfte ist der konventionelle Teil dargestellt, der von einer anderen Versuchsanlage vorhanden war und für die Überwachung und Registrierung der Versuche verwendet werden konnte. Mit diesem Teilsystem können bis zu 60 Meßwerte in Eichverstärkern unter Nullpunktskorrektur und Empfindlichkeitseichung in aufgeprägte Ströme von  $0 \div 20$  mA umgesetzt werden, mit denen in einer Stromschleife mehrere anzeigende und registrierende Meßgeräte versorgt werden können. In der Meßwarte sind hierfür fünf Zwölfkanal-Punktdrucker und 36 Analoganzeigeeinstrumente in einem Überwachungspult vorhanden. In jeden Strompfad ist ferner ein Präzisionswiderstand eingeschleift, von dem ein Meßstellenumschalter eine analoge Spannung auf ein Digitalvoltmeter mit nachgeschalteter Großziffernanzeige geben kann.

Für eine schnelle quantitative Versuchsauswertung wurde dieses System durch eine Meßwertverarbeitung mit Hilfe eines Kleinrechners WANG 2200 B ergänzt. Über einen vom Rechner gesteuerten Multiplexer werden die unverstärkten Spannungssignale von einem Analog-Digital-Wandler erfaßt und vom Rechner übernommen. Von diesem werden Nullpunktskorrekturen und Empfindlichkeitsberechnungen sowie auch Linearisierung nichtlinearer Eichkurven vorgenommen. Bei gleichzeitiger Ausschaltung der Nullpunktsdrift von Verstärkern konnte hiermit die Meßgenauigkeit fühlbar verbessert werden. Die Möglichkeit der gezielten

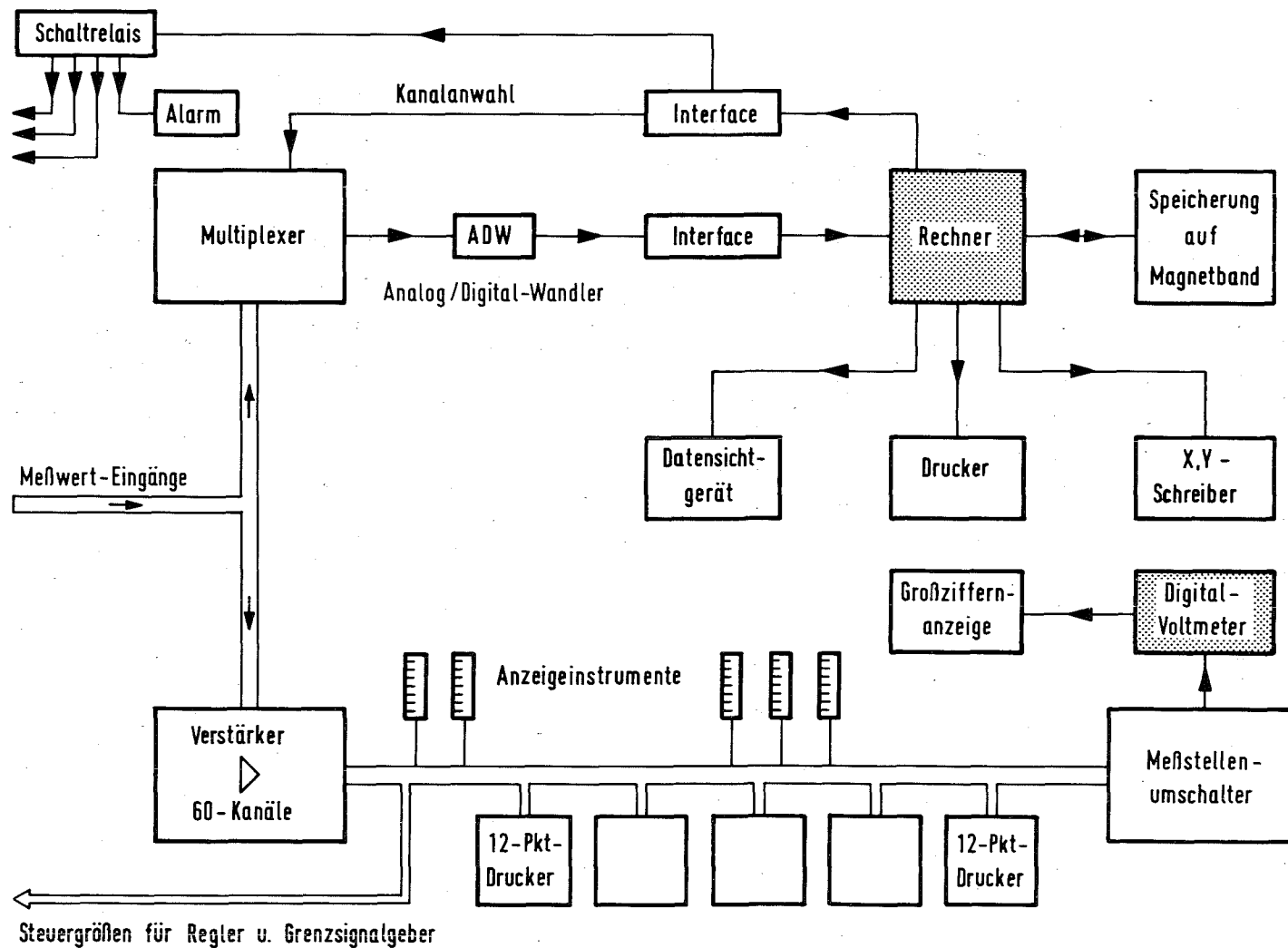


Abb. 8: Blockschaltbild der konventionellen Meßwertverarbeitung sowie der Anlagenüberwachung und Hilfsstromsteuerung mit Hilfe des Kleinrechnersystems WANG 2200 B.



Kanalwahl durch den Rechner erlaubt es, die Abfragefrequenz wichtiger Meßwerte gegenüber weniger wichtigen nach Bedarf zu erhöhen.

Die Ausstattung des Rechners mit Datensichtgerät (Bildschirm), Schnelldrucker, Magnetbandstation und Plotter erlaubte neben übersichtlicher und zugriffsschneller Datenspeicherung eine sehr genaue Beurteilung des Versuchsstandes und des Versuchsablaufs, da es insbesondere möglich ist, mit nur geringer zeitlicher Verzögerung jeden gewünschten funktionellen Zusammenhang zwischen Meßwerten oder durchaus abgeleiteten Größen in übersichtlicher Form graphisch darzustellen. Dies war beispielsweise für die Verfolgung der Vorgänge bei der Ausbildung des Schichtdickenprofils des abgeschiedenen  $UF_6$  wichtig, das aus einer großen Zahl von unabhängigen Meßwerten berechnet werden mußte.

Mit Fortschreiten der Untersuchungen wurde die Programmierung des Rechners auf die Grenzwertüberwachung wichtiger Meßgrößen der Anlage ausgedehnt. Als in der abschließenden Versuchsphase eine sehr präzise Steuerung von Verfahrensstromstärken in der Anlage notwendig wurde, konnte diese Aufgabe durch unmittelbaren Rechnereingriff über entsprechend angesteuerte Relais mit gutem Erfolg realisiert werden<sup>\*)</sup>.

---

\*) Die Betriebsprogramme für dieses Rechnersystem wurden von Herrn Dipl.-Ing. H. Steinhaus erstellt und an den jeweiligen Fortschritt der Experimente angepaßt.

#### 4. Experimentelle Ergebnisse

Mit der Versuchsanlage wurden zunächst Vorversuche durchgeführt, bei denen vor Abscheidebeginn die stationäre Temperaturverteilung im Abscheider mit unterschiedlichen Endtemperaturen eingestellt wurde. Dabei zeigte sich, daß die geforderten niedrigen  $UF_6$ -Konzentrationen im Reingas zwar leicht erreicht werden konnten, daß andererseits aber die vorgesehene Beladungskapazität des Abscheiders von ca. 50 kg  $UF_6$  bei dieser Abscheidemethode nur unter Inkaufnahme sehr hoher Druckverluste zu erzielen war. Die von vornherein vorgesehene Verschiebung des Abscheideprofils über die Abscheiderlänge kann auf zwei Arten erfolgen. Üblicherweise geht man von einer stationären Temperaturverteilung aus und senkt während des Betriebs die Endtemperatur ab, so daß der Taupunkt auf diese Weise im Abscheider zum warmen Ende hin wandert.

Im Laufe der Versuche hat sich jedoch gezeigt, daß eine andere Methode wesentlich wirkungsvoller ist und eine bessere Ausnutzung der Abscheiderkapazität erlaubt. Hierbei wird unter Einkühlen des Abscheiders vom kalten Ende her unmittelbar mit dem Abscheidebetrieb begonnen sobald die gewünschte Endtemperatur am kalten Ende des Abscheiders erreicht ist. Diese Temperatur wird dann festgehalten und durch Zufuhr einer gesteuerten Überschußkälteleistung wird während des weiteren Abscheidevorgangs die instationäre Temperaturverteilung im Abscheider auf das lineare Temperaturprofil zwischen End- und Eintrittstemperatur hin oder darüber hinaus verändert, indem wesentliche Teile des Abscheiderblocks im Verlauf des Abscheidevorgangs auf und nahe an die Endtemperatur gebracht werden (siehe Abb. 9 und 10). Damit

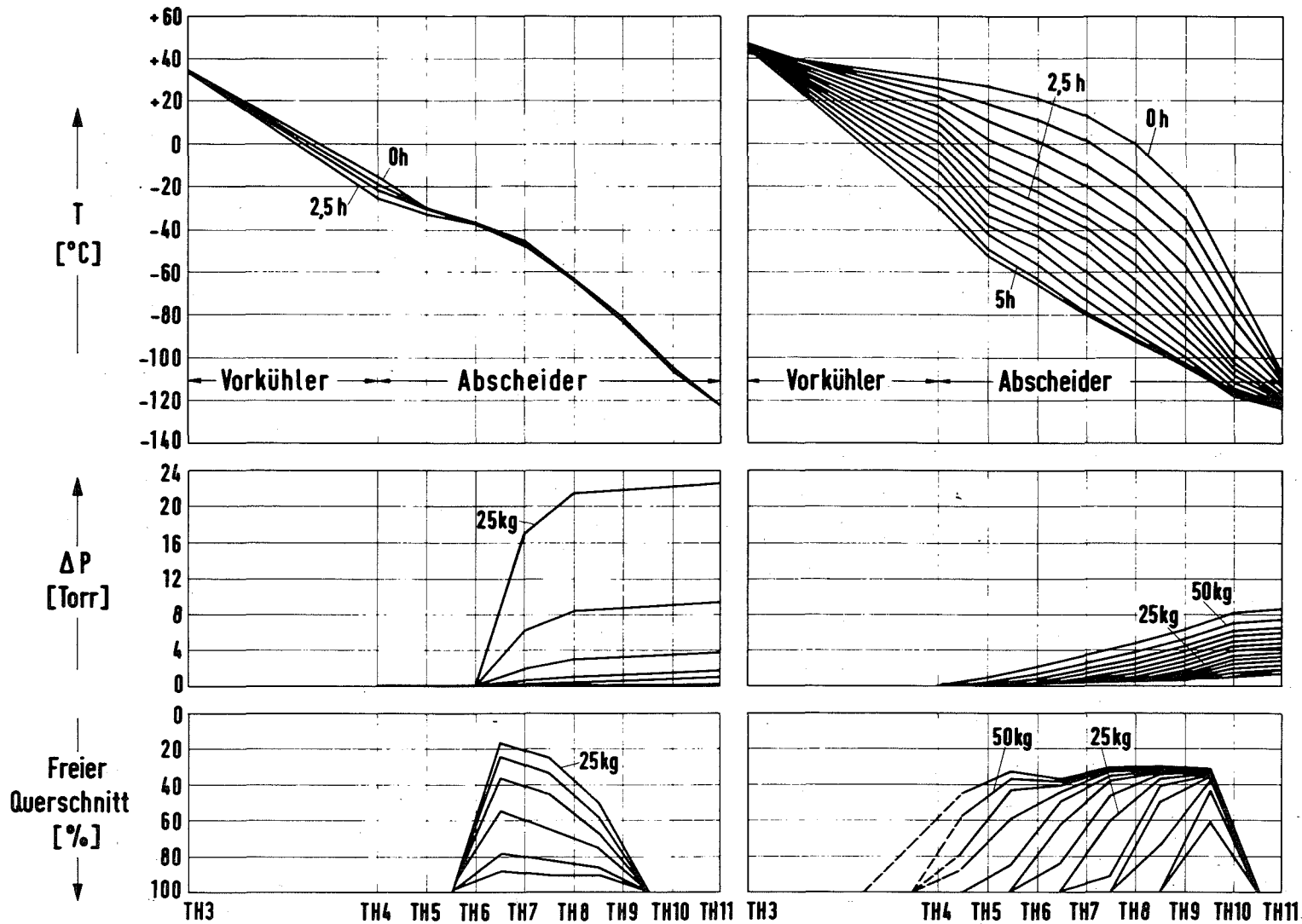


Abb. 9: Die unterschiedliche Ausbildung des Differenzdruckverlaufes und des daraus berechneten Schichtdickenprofils längs des Abscheiders bei stationärer Temperaturverteilung (links) und bei gesteuerter Verschiebung des Temperaturprofils mit nahezu gleicher Endtemperatur TH8 (rechts).

ist eine sehr gute Beladung des Abscheiders bei niedrigen Druckverlusten und praktisch ohne Änderung des Gesamtdruckabfalls von Vorkühler und Abscheider vom Abscheidebeginn bis zur Beendigung des Abscheidvorgangs bei voll beladenem Abscheider durchführbar.

Diese Vorgehensweise wurde möglich, nachdem gezeigt werden konnte, daß bei anfänglich sehr steilen Temperaturgradienten im Abscheiderblock erwartungsgemäß zwar sehr hohe Übersättigungen des  $UF_6$  im Gasgemisch auftreten, daß jedoch keine Kondensation in der Gasphase eintritt, und weil außerdem ein sehr wirksamer Abbau der Übersättigung im eingebauten Filter erfolgte, was auch in anderen isothermen Teilen des Abscheidesystems möglich ist, wenn dort ausreichend kurze Diffusionswege und ausreichend langsame Strömungsgeschwindigkeiten zur Verfügung gestellt werden.

Diese Interpretation des in Abb. 9 und 10 anhand zweier repräsentativer Versuche dargestellten Sachverhalts ist mit Hilfe der vorliegenden theoretischen Ansätze aufgrund der Tatsache möglich, daß das Erreichen hoher Übersättigungsgrade in der Abscheidepassage und die Genauigkeit der  $UF_6$ -Spurenanalyse den quantitativen Vergleich mit den gerechneten Abkühlkurven erlaubte.

Ebenso zeigt die rechnerische Kontrolle der Diffusionsvorgänge bei der Durchströmung des Filters, daß der beobachtete Abbau des  $UF_6$ -Gehaltes in den Filtermaschen aufgrund der extrem kurzen Diffusionswege praktisch vollständig ist und daß dieser Abbau auch auf andere Weise mit vernachlässigbaren Druckverlusten erzielt werden kann.

Schließlich erlaubte die On-Line-Rechnerauswertung der Druck- und Temperaturmessung die fortlaufende Beobachtung

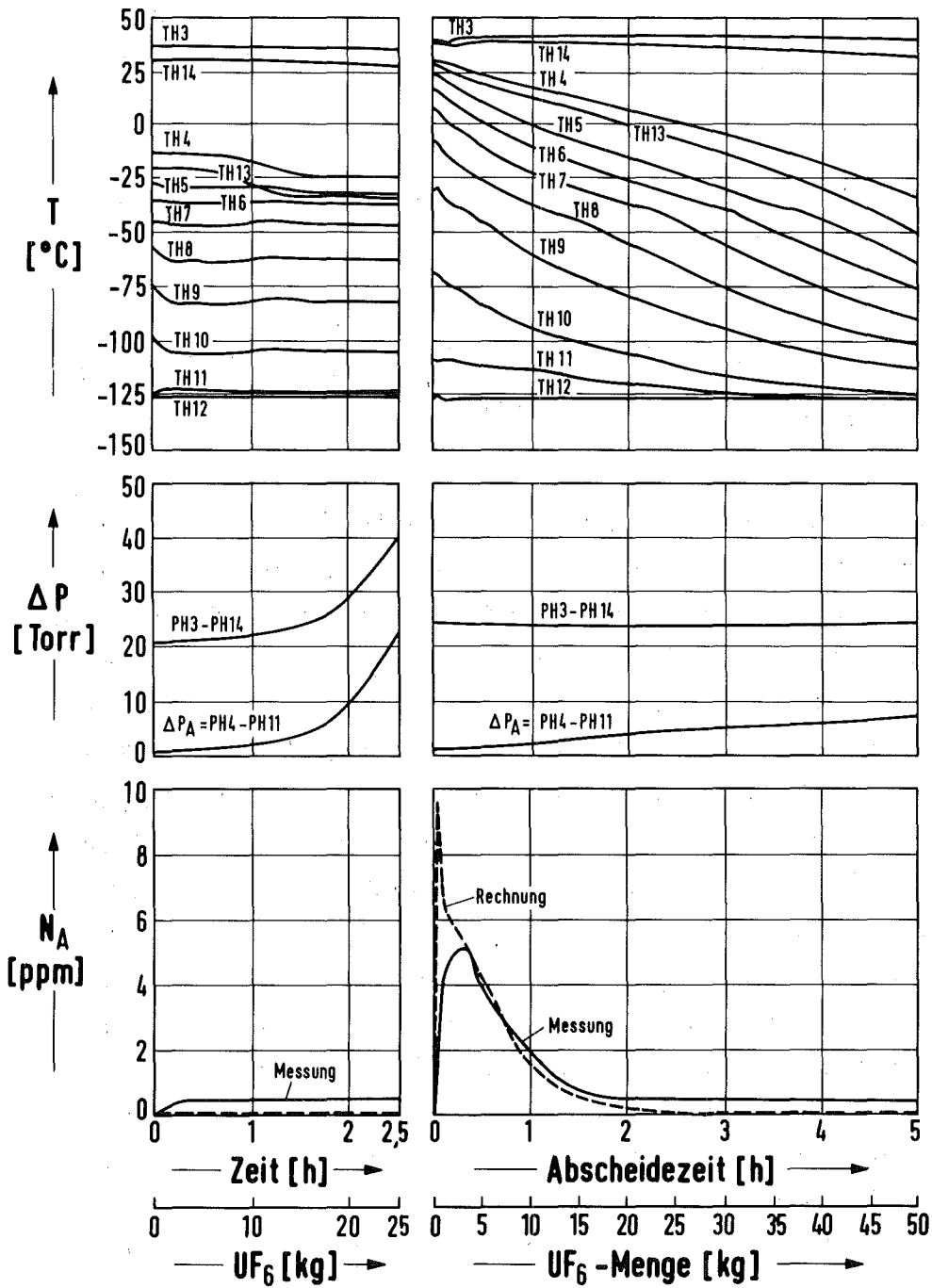


Abb. 10: Der zeitliche Verlauf der Temperaturen TH1 bis TH14, der Differenzdrücke  $\Delta P_A = PH4-PH11$ ,  $PH3-PH14$  und des  $UF_6$ -Restgehalts am Abscheiderausstritt bei Abscheidung mit stationärer Temperaturverteilung (links) bzw. mit gesteuerter Verformung des Temperaturprofils (rechts). Die Abscheiderendtemperatur betrug in beiden Fällen  $-126^\circ C$ . Im Reingasstrom hinter dem Filter war in beiden Fällen kein  $UF_6$  nachweisbar.

des  $\text{UF}_6$ -Schichtdickenaufbaues und der Wärmetauscher-Bilanz, so daß gezielt in den Versuchsablauf eingegriffen werden und verhältnismäßig schnell eine optimale Betriebsweise für die Abscheidung erarbeitet werden konnte.

Die einzelnen Auswertungsschritte sind in den folgenden Abschnitten dargestellt.

#### 4.1 Der Übersättigungsgrad des $\text{UF}_6$ in Abhängigkeit vom Temperaturprofil im Abscheider

Für die Vorausberechnung und die Optimierung des Tieftemperaturabscheidesystems war die Abkühlkurve des  $\text{UF}_6$  zunächst für konstante treibende Temperaturdifferenzen längs des Abscheiders berechnet worden /4/. Für eine ausreichend genaue Darstellung der experimentellen Ergebnisse mußte diese Methode auf die schrittweise Berechnung der Abkühlkurve bei sich längs des Abscheiders ändernden Temperaturdifferenzen erweitert werden. Unter Benutzung des bei den Abscheideversuchen zu bestimmten Zeitpunkten gemessenen Temperaturprofils konnten damit die Änderungen des  $\text{UF}_6$ -Partialdruckes berechnet werden, wie sie sich längs der Abscheiderpassage und am Abscheideraustritt in Form der mit dem Infrarotspektrometer meßbaren Restkonzentration des  $\text{UF}_6$  zeitlich verfolgen ließen. Zu diesem Zweck wurde das in den 8 Meßstellen TH4 bis TH11 gemessene Temperaturprofil zunächst durch eine geeignete Ausgleichskurve abschnittsweise dargestellt. Aus dieser wurden unter Benutzung der Wärme- und Materialbilanz entsprechend Gleichung (1) die treibenden Temperaturdifferenzen längs der Abscheiderpassage berechnet und in die Gleichung (3) für die Berechnung der Abkühlkurven durch schrittweise Integration eingesetzt.

Die in Abb. 10 rechts unten erkennbare Übereinstimmung zwischen den so berechneten und den gemessenen Werten der  $\text{UF}_6$ -Endkonzentration  $N_A$  im Reingas am Abscheideraustritt ergab sich bei Benutzung der berechneten Stoff- und Strömungswerte, wenn für den Lewis'schen Koeffizienten der sich aus den theoretischen Überlegungen des Absatzes 2.2 ergebende Zusammenhang  $\frac{\alpha}{\beta \cdot \rho \cdot c_p} = \text{Le}^{2/3}$  für die laminare Anlaufströmung benutzt wurde.

Bei allen durch Gegenrechnung geprüften Versuchen konnte die Gültigkeit dieser Beziehung aus der Übereinstimmung der Ergebnisse mit den infrarotspektrometrischen Messungen bestätigt werden. Als Beispiel für die Güte der Übereinstimmung sind in Abb. 11 Meßwerte des  $\text{UF}_6$ -Partialdrucks am Abscheideraustritt aufgetragen, die sich in Versuchen mit unterschiedlichen Endtemperaturen, aber mit gleichem Verlauf der treibenden Temperaturdifferenz zwischen Abscheidereintritt und -austritt, ergaben. Die Endtemperaturen variieren dabei im Bereich zwischen  $-90^\circ\text{C}$  und  $-116^\circ\text{C}$ . Man sieht, daß die Meßwerte des  $\text{UF}_6$ -Partialdruckes sehr gut auf einer Abkühlkurve liegen, die sich bei dem vorgegebenen Verlauf der treibenden Temperaturdifferenz  $\delta - \delta_w$  unter Benutzung der Gleichung (3) bei Verwendung der Beziehung  $\frac{\alpha}{\beta \cdot \rho \cdot c_p} = \text{Le}^{2/3}$  errechnet.

Auch der an den Druckmeßstutzen PH5 bis PH10 gemessene Verlauf des  $\text{UF}_6$ -Partialdrucks innerhalb der Abscheiderpassage zeigt in gleicher Weise gute Übereinstimmung mit den berechneten Werten, wenn die obige Beziehung verwendet wird. Abb. 12 gibt ein Beispiel für den berechneten und den gemessenen zeitlichen Verlauf der  $\text{UF}_6$ -Partialdrücke an den einzelnen Meßstellen während eines typischen Abscheidevorgangs mit den Betriebsdaten des in Abb. 9 und Abb. 10 auf der rechten Seite dargestellten Versuchsablaufs.

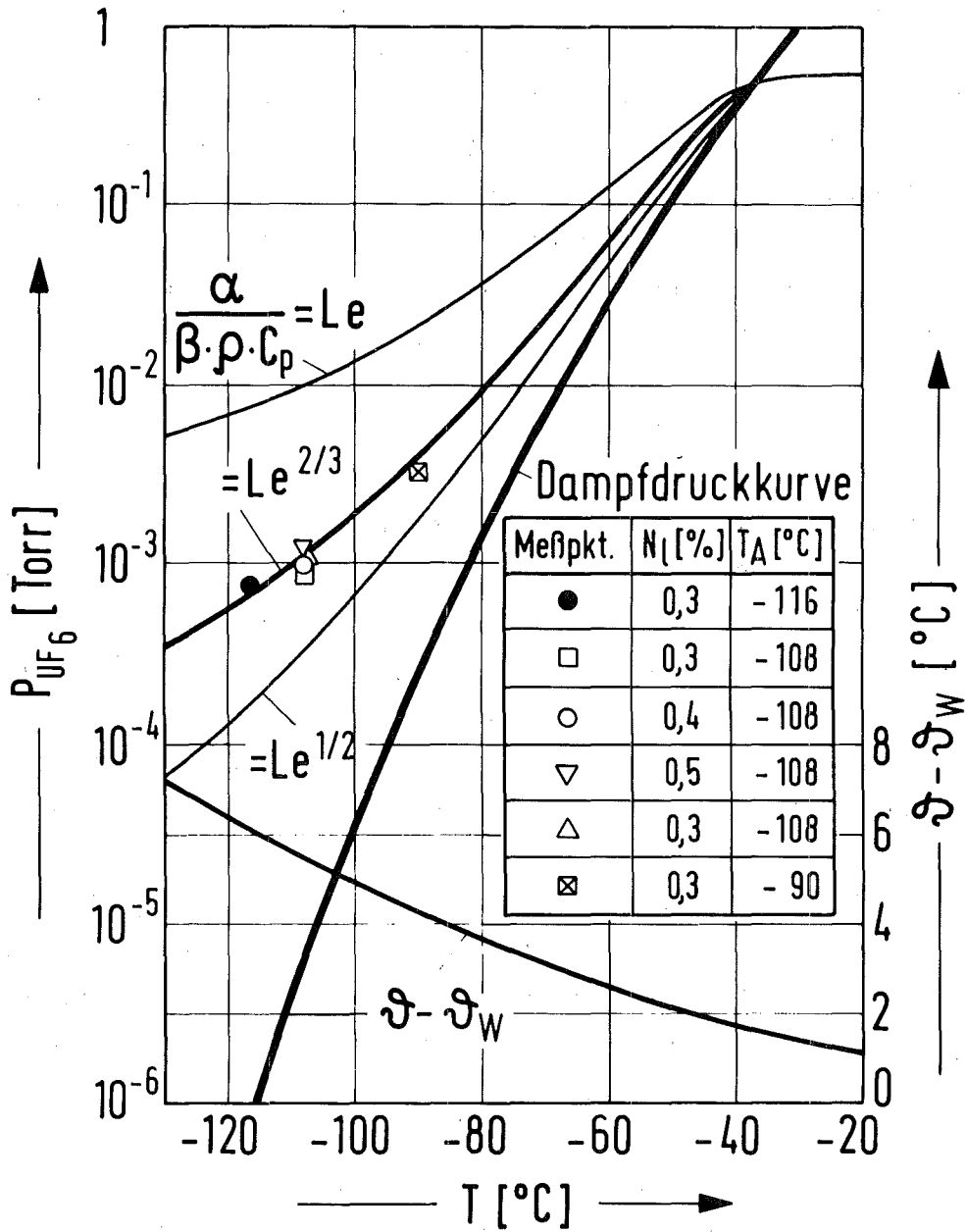


Abb. 11: Vergleich gemessener UF<sub>6</sub>-Partialdrucke P<sub>UF<sub>6</sub></sub> am Abscheider-Austritt bei verschiedenen Endtemperaturen T<sub>A</sub> = TH11 mit berechneten Abkühlkurven. Bei allen Versuchen lag der gleiche Verlauf der treibenden Temperaturdifferenz θ - θ<sub>w</sub> vor. Man sieht, daß die Meßwerte richtig vorausberechnet werden können, wenn die Beziehung  $\frac{\alpha}{\beta \cdot \rho \cdot c_p} = Le^{2/3}$  verwendet wird.



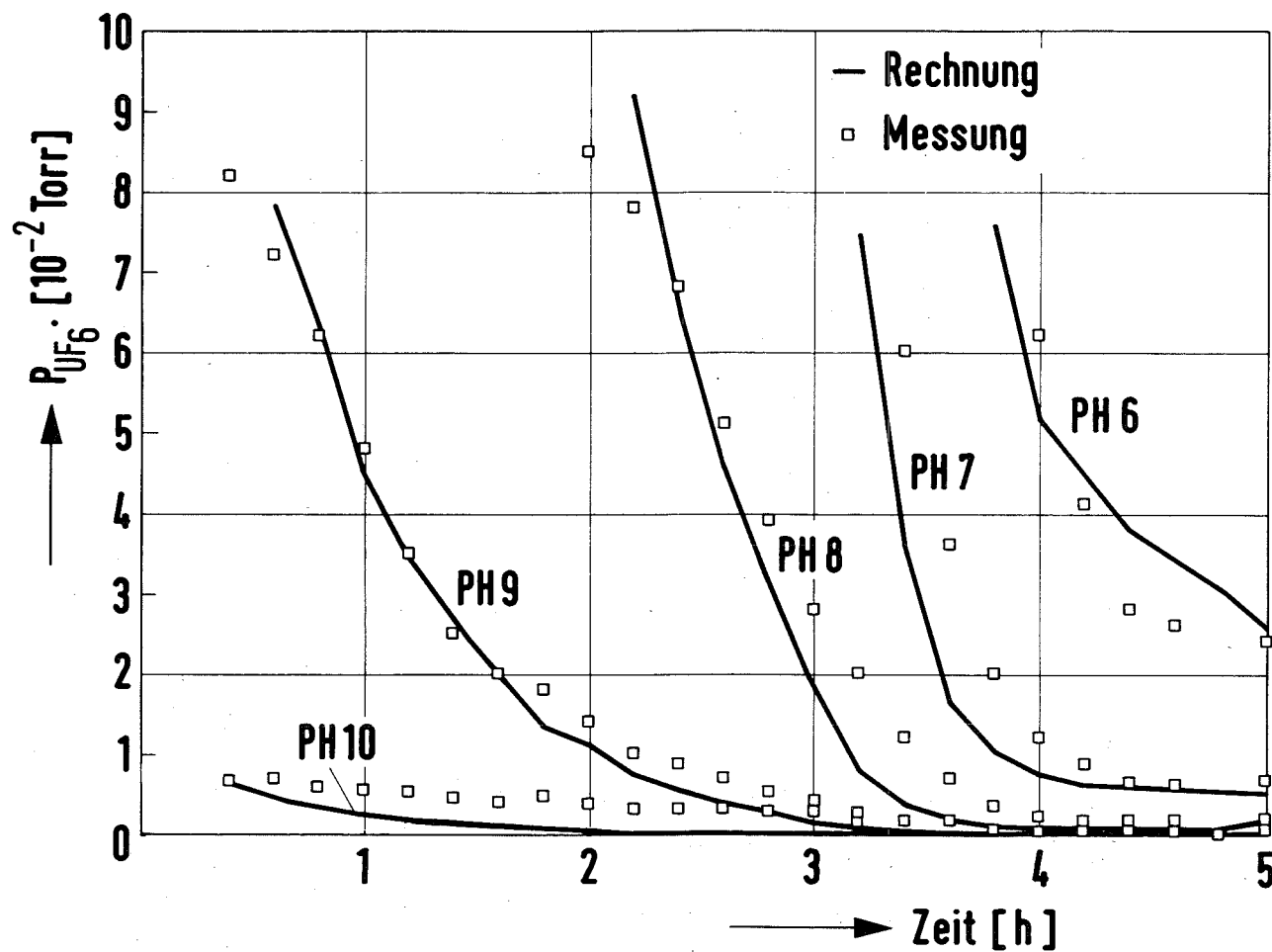


Abb. 12: Die zeitliche Änderung des  $\text{UF}_6$ -Partialdruckes in der Abscheidepassage während eines Abscheideversuches mit einseitiger Absenkung des Temperaturprofils entsprechend Abb. 9 und Abb. 10. Die Messungen ( $\square$ ) erfolgten unter Probenahme aus den Druckmeßstutzen PH6 bis PH10. Die ausgezogenen Kurven wurden unter Benutzung des zum jeweiligen Zeitpunkt gemessenen Temperaturprofils mit dem Ansatz  $\alpha/\rho \cdot c_p \cdot \beta = \text{Le}^{2/3}$  berechnet.

Diese Versuchsergebnisse bestätigen die Gültigkeit des Ansatzes  $\alpha/\beta \cdot \rho \cdot c_p = Le^{2/3}$  für die verwendete Wärmetauscherkonfiguration und auch die Brauchbarkeit der verwendeten Berechnungsmethode.

#### 4.2 Der Abbau der UF<sub>6</sub>-Übersättigung in der isothermen Laminarströmung

Aus der Übereinstimmung der gemessenen und errechneten Werte in einem weiten Bereich der UF<sub>6</sub>-Konzentration am Abscheideraustritt ergibt sich, daß unter den Bedingungen des Abscheidebetriebs die auftretenden Übersättigungsgrade des UF<sub>6</sub> mit Werten von bis zu 1000 offensichtlich nicht zu spontaner Kondensation in der Gasphase führen. Der Sachverhalt, daß die am Abscheideraustritt (Meßstelle N<sub>A</sub>), d. h. Filtereintritt gemessenen hohen UF<sub>6</sub>-Konzentrationen bis zu 10 ppm im Gasstrom N<sub>F</sub> am Austritt des Filters mit dem auf beide Meßstellen umschaltbaren Infrarotspektrometer nicht mehr nachgewiesen werden konnte, läßt die Folgerung zu, daß die Übersättigung in den Maschen der eingesetzten Filternetze mit 100 µ bzw. 50 µ Maschenweite praktisch völlig abgebaut wurde.

Die rechnerische Nachprüfung dieser Feststellung zeigt, daß bei den angewendeten Filterquerschnitten und Maschenweiten mit Strömungsgeschwindigkeiten von ca. 1,5 m/sec Reynolds-Zahlen  $Re \approx 0,1$  in den Maschen des Filters erreicht werden. Bei diesen Werten der Reynolds-Zahlen sind die Diffusionslängen im Vergleich zu den Verweilzeiten im Bereich der isothermen Strömung so günstig, daß auch die niedrige Diffusionsgeschwindigkeit des UF<sub>6</sub> ausreichend ist, um die Übersättigung praktisch völlig abzubauen. Als Beispiel ist in Abb. 13 der berechnete Verlauf der mittleren UF<sub>6</sub>-Konzentration beim Durchströmen

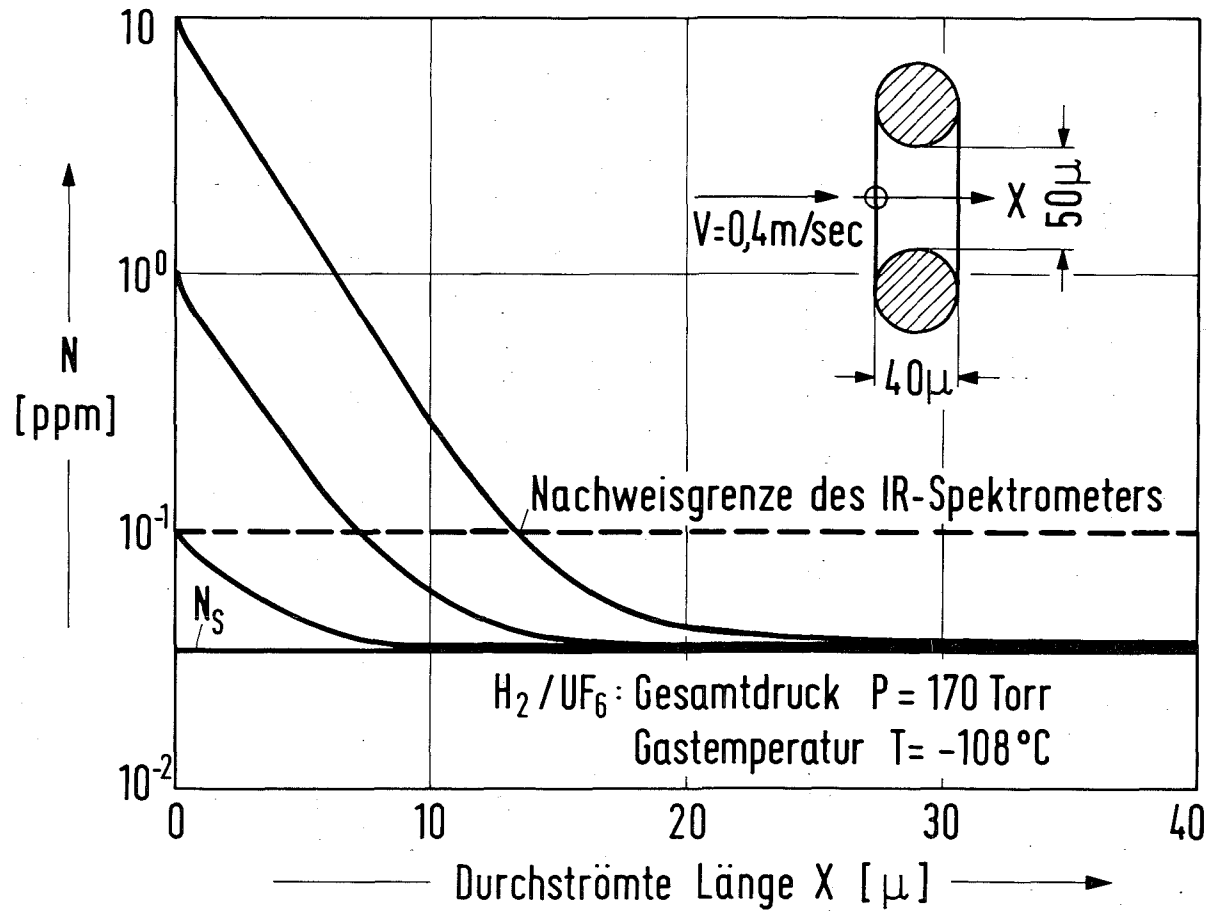


Abb. 13: Der berechnete Verlauf der mittleren  $UF_6$ -Konzentrationen  $N$  einer isothermen Laminarströmung mit  $Re \approx 0,1$  beim Durchströmen einer Filtermasche bei verschiedenen Eintrittsmolenbrüchen  $N_A$ . Die Geometrie der Filtermasche wurde durch die eingezeichnete torusförmige Stromfadenbegrenzung angenähert.

einer Filtermasche angegeben. Die Berechnung wurde für eine torusförmige Begrenzung unter den tatsächlichen Strömungs- und Temperaturbedingungen im Filter durchgeführt.

Das Rechnungsergebnis bestätigt die Wirksamkeit des Diffusionsmechanismus beim Abbau der Übersättigung und weist außerdem die Möglichkeit auf, mit denen im isothermen Teil eines derartigen Abscheiders ein sicherer Übersättigungsabbau möglich ist, ohne daß unerwünscht hohe Druckverluste auftreten.

#### 4.3 Die Berechnung des Druckverlustes bei Belegung der Abscheidepassage mit UF<sub>6</sub>

Als Berechnungsgrundlage für eine Ermittlung der Druckverluste im leeren wie im UF<sub>6</sub>-beladenen Abscheider wurden Druckverlustmessungen mit Hilfe der sechs am Abscheideblock angebrachten Differenzdruckmeßstellen durchgeführt und ausgewertet. Es zeigte sich, daß die Druckverluste  $\Delta p$  im leeren wie im beladenen Abscheider in Abhängigkeit von Dichte, Strömungsgeschwindigkeit und Temperatur bei entsprechender Temperatur-Korrektur der Zähigkeits- und Dichtewerte des Gemisches richtig beschrieben werden können, wenn man für diesen Abscheidertyp eine Reynolds-Zahl-Abhängigkeit der Widerstandsbeiwerte  $c_f = 22,12 \cdot Re^{-0,86}$  ansetzt.

Die Versuche zur Ermittlung dieser Reynolds-Zahl-Abhängigkeit wurden mit Wasserstoff, Helium und Stickstoff unter Variation des Durchsatzes, der Drücke und der Temperaturen mit leerem und beladenem Abscheider durchgeführt. Mit dieser Berechnungsgrundlage war es möglich, aus den gemessenen Differenzdrücken zwischen benachbarten

Druckmeßstellen die mittlere Schichtdicke in der Abscheiderpassage im Bereich zwischen den einzelnen Meßpunkten auszurechnen. Hierzu wurde eine gleichmäßige Verengung des freien Querschnittes zwischen den Meßstellen in Form einer auf der Abscheiderwand und den Rippen gleichmäßig verteilten  $UF_6$ -Schicht angenommen. Die Berechnung wurde iterativ durchgeführt, indem für die gemessenen Werte von Durchsatz und Temperatur der hydraulische Durchmesser des Strömungskanals so lange variiert wurde, bis der unter Berücksichtigung der Reynolds-Zahlabhängigkeit des Widerstandsbeiwertes  $c_f$  berechnete Druckabfall mit dem Meßwert übereinstimmte.

Diese Auswertung unter on-line-Verarbeitung der Meßwerte durch das Kleinrechnersystem der Versuchsanlage erlaubte es, die Ausbildung des  $UF_6$ -Profils während der Versuche fortlaufend zu verfolgen und noch während des Versuchs auf Form und Wanderungsgeschwindigkeit des abgeschiedenen  $UF_6$ -Profils Einfluß zu nehmen. Weiterhin konnte aus den berechneten  $UF_6$ -Schichtdicken und der eingespeisten  $UF_6$ -Menge unmittelbar die  $UF_6$ -Reifdichte ermittelt werden. Bei allen Versuchen ergab sich in einem Schwankungsbereich von  $\pm 10\%$  eine mittlere Reifdichte von  $1 \text{ gr } UF_6/\text{cm}^3$ , unabhängig vom Beladungszustand des Abscheiders. Dieser Mittelwert liegt erheblich unter dem Wert von  $2,4 \text{ gr}/\text{cm}^3$ , der von Abscheidevorgängen bei Gemischen mit hohen  $UF_6$ -Gehalten bekannt war /23/ und zunächst in der Voruntersuchung /4/ zugrunde gelegt wurde.

#### 4.4 Die Optimierung der Abscheiderbeladung

Die vorliegenden Versuchsergebnisse zeigen, daß es möglich ist, den Abscheider während des Abscheidevorgangs mit unterschiedlichen Temperaturgradienten und unterschiedlichen treibenden Temperaturdifferenzen zu betreiben und die Betriebsweise in weiten Grenzen zu variieren, ohne daß durch Kondensation in der Gasphase und Schnee- bildung die Abscheiderwirkung herabgesetzt wird.

Nachdem Versuche mit stationärer Temperaturverteilung gezeigt hatten, daß eine Betriebsweise mit nahezu konstantem Temperaturprofil des Abscheiders und die Verschiebung dieses Profils zu tieferen Temperaturen keine günstige Abscheiderbeladung ermöglicht, wurde aus Versuchen mit instationären Temperaturgradienten deutlich, daß in einem bewußt einseitig eingekühlten Abscheider, dem während des Abscheidebetriebs eine konstante Kälte- leistung zugeführt wird, eine sehr hohe Beladungskapazi- tät bei niedrigen Druckverlusten erreicht werden kann.

##### 4.4.1 Die Beladungskapazität und der Druckverlust in Abscheidern mit stationärem Temperaturprofil

Die Versuche mit stationärem Temperaturprofil wurden so durchgeführt, daß durch Einkühlen bis zum stationären Zustand nach Erreichen des nahezu linearen Temperatur- profils gleichzeitig mit der  $UF_6$ -Einspeisung ein Kühl- strom durch die Hilfspassage des Abscheiders geschickt wurde, der ausreichte, die frei werdende Desublimations- wärme des  $UF_6$  abzuführen.

Wie in Abb. 9 gezeigt ist, bleibt bei dieser Betriebs- weise das Temperaturprofil praktisch konstant. Die Quer-

schnittsverengung im Taupunktsbereich des  $\text{UF}_6$  verursacht jedoch erwartungsgemäß einen schnellen zeitlichen Anstieg des Druckverlustes der Abscheidepassage auf hohe Werte. So erhöhte sich bei diesem Versuch der Differenzdruck des Abscheiders bei einer Abscheiderbeladung von nur 25 kg  $\text{UF}_6$  vom Anfangswert 1,7 Torr auf 24 Torr. Die gemessene  $\text{UF}_6$ -Endkonzentration am Abscheider-Austritt ist bei dieser Betriebsweise erwartungsgemäß zeitlich konstant und betrug ca. 0,5 ppm, während die Rechnung einen Wert von 0,1 ppm erwarten läßt (Abb. 10).

#### 4.4.2 Die Optimierung der Abscheiderbeladung und des Druckverlustes für Abscheidebetrieb mit instationären Temperaturgradienten

Da bei allen denkbaren Abscheidebetriebsweisen und trotz hoher Übersättigung keine Schneebildung im Strömungskern auftritt, kann die Abscheideaufgabe in zwei Schritte unterteilt werden:

- 1.) Der überwiegende Teil des  $\text{UF}_6$  wird im eigentlichen Abscheider optimal im Hinblick auf hohe Kapazität und niedrigen Druckverlust ohne Rücksicht auf einen hohen Restgehalt an übersättigtem  $\text{UF}_6$  im austretenden Gas abgeschieden.
- 2.) Anschließend erfolgt die Feinabscheidung durch Abbau der Übersättigung in einem nachgeschalteten isothermen Abscheidesystem mit kurzen Diffusionslängen.

#### 4.4.2.1 Die Steuerung der Taupunktverschiebung im Abscheider

Um bei hoher Beladungskapazität einen möglichst niedrigen Druckverlust in der Abscheidepassage zu erzielen, erscheint es sinnvoll, ein Abscheideprofil zu erzeugen, das sich durch eine gleichmäßige Verengung der Abscheidepassagen über eine möglichst große Länge des Abscheiderblocks auszeichnet. Dabei kann der freibleibende Querschnitt nach dem Gesichtspunkt entweder eines konstanten Druckverlustes pro Längeneinheit ausgewählt werden oder nach dem Gesichtspunkt einer konstanten Strömungsgeschwindigkeit des Verfahrensgases, so daß Beschleunigungs- und Verzögerungsvorgänge in der Passage vermieden werden. Zur vollen Ausnutzung dieser prinzipiellen Optimierungsvorschrift muß die Dichteänderung des Verfahrensgases infolge Temperaturänderung längs der Abscheiderpassage Berücksichtigung finden, und es muß während des Abscheidebetriebs eine dementsprechend gesteuerte Verschiebung des Taupunktes und mit ihm des gesamten Abscheideprofils zum warmen Ende des Abscheiders hin erzielt werden.

Die durchgeführten Versuche haben gezeigt, daß sich eine technisch besonders einfach durchführbare und im Hinblick auf Beladungskapazität und resultierenden Druckverlust sehr wirksame Betriebsweise ergibt, wenn während des Abscheidebetriebs dem Abscheidersystem eine konstante Überschußkälteleistung  $\dot{Q}_A$  (über den Kältebedarf für die Abführung der Desublimationswärme  $\dot{Q}_D$  und die Deckung der Isolationsverluste hinausgehende Kälteleistung) zugeführt wird. Dabei ergibt sich die gewünschte monotone Verschiebung des Taupunktes und des Abscheideprofils, wie sie in den Abb. 9 und 10 im rechten Teil anhand der Meßergebnisse eines typischen Abscheideversuchs zu erkennen sind. Auf



diese Weise konnte für den gesamten Abscheidevorgang der Anstieg des Differenzdruckes der Abscheidepassage um ca. 5 Torr bei einer Sollbeladung von 50 kg  $UF_6$  begrenzt werden. Dieser Anstieg wird zusätzlich aber nahezu kompensiert durch die Abnahme der Differenzdrücke, die in den übrigen  $UF_6$ -freien Passagen von Vorkühler und Abscheider durch die Temperaturabsenkung während des Abscheideverlaufs hervorgerufen wird. Dies bedeutet, wie in Abb. 10 aus der Differenz von Eintrittsdruck und Austrittsdruck PH3-PH14 zu erkennen ist, daß bei dieser Art der Steuerung des Abscheidevorgangs praktisch kein Anstieg des Differenzdrucks über dem Gesamt-Abscheidesystem resultiert.

#### 4.4.2.2 Die Steuerung der dem Abscheider zugeführten Kälteleistung beim instationär geführten Abscheidebetrieb

Da bei der durchgeführten instationären Betriebsweise des Abscheiders die Temperaturen der Gasströme im Abscheider-System sich ständig ändern, erfordert die Vorausberechnung der benötigten Kälteleistung die ständige Überwachung und Berechnung aller dem Abscheidersystem zugeführten und aus ihm abgeführten Wärmemengen. Für den Versuchsbetrieb bedeutete diese Forderung, daß die Wärmebilanz am Abscheidersystem unmittelbar aus den anfallenden Meßwerten ermittelt und daraus die zusätzlich über den Hilfgasstrom zuzuführende Kälteleistung berechnet werden mußte, die zu der gewünschten monotonen Absenkung des Temperaturprofils im Abscheider führte. Für einen technischen Betrieb kann man sich bei routinemäßiger Durchführung eines feststehenden Abscheideprogramms auf die einmal festgestellte zeitliche Abhängigkeit des Kälteleistungsbedarfs stützen und benötigt dann nicht notwendigerweise die für den Versuchsbetrieb sehr hilfreiche On-line-Meßwerterfassung- und Verarbeitung.

### Die Festlegung der Kälteleistungszufuhr $\dot{Q}_{\text{ges}}$ für das Abscheidesystem

Bei einem entsprechend dem Stand der Technik isolierten Abscheider können die Isolationsverluste in der folgenden Betrachtung unberücksichtigt bleiben. Dann setzt sich die dem Abscheider zuzuführende Gesamtkälteleistung  $\dot{Q}_{\text{ges}}$  zusammen aus der abzuführenden Desublimationswärmeleistung  $\dot{Q}_{\text{D}}$  und der als Überschußkälteleistung bezeichneten Abkühlleistung  $\dot{Q}_{\text{A}}$ , die dazu dient, die Temperaturen im Abscheiderblock monoton abzusenken. Die Desublimationswärmeleistung  $\dot{Q}_{\text{D}}$  ist der abgeschiedenen  $\text{UF}_6$ -Stromstärke proportional, d. h. dem Produkt aus der Gesamtstromstärke  $\dot{m}_{\text{H}_2}$  und der  $\text{UF}_6$ -Konzentration  $N_1$ . Ebenso ist die Abkühlleistung  $\dot{Q}_{\text{A}}$  diesem Produkt, d. h. der abzuschneidenden  $\text{UF}_6$ -Stromstärke proportional anzusetzen, damit sich bei gleicher gesamt abgeschiedener  $\text{UF}_6$ -Menge jeweils der gleiche gewünschte Temperaturzustand des Abscheiders ergibt. Dadurch ist gewährleistet, daß mit wechselnden  $\text{UF}_6$ -Gehalten im Rohgas der gleiche Endzustand der Beladung im vollen Abscheider erreicht wird.

$$\dot{Q}_{\text{ges}} = \text{konst} \cdot \dot{m}_{\text{H}_2} \cdot N_1 \quad (9)$$

### Die Steuerung der Überschußkälteleistung mit Hilfe der Hilfsgasstromstärke

Da beim Abscheidebetrieb die Temperaturen TH3 und TH14 am warmen Ende des Vorkühlers praktisch konstant bleiben, wird die Kälteleistung dem Abscheidersystem zum Teil durch den Verfahrensgasstrom  $\dot{m}_{\text{H}_2}$  aufgrund dessen Temperaturdifferenz  $\Delta T_{\text{H}_2} = \text{TH}_{11} - \text{TH}_{12}$  zwischen Aus- und Eintritt am kalten Ende zugeführt, entsprechend ergibt sich ein Beitrag  $\dot{Q}_{\text{Hauptstrom}} = \dot{m}_{\text{H}_2} \cdot c_{\text{pH}_2} \cdot \Delta T_{\text{H}_2}$ . Die

restliche benötigte Kälteleistung ist durch den zusätzlichen Hilfsstrom in der dritten Passage des Abscheiders zuzuführen. Der hier als Kälteträger benutzte  $N_2$ -Strom wurde bei den bisherigen Versuchen auf die tiefste Abscheidertemperatur thermostatisiert:  $T_{N1} = T_{H12}$ . Die Regelung der Kälteleistung, die über den Hilfsstrom zugeführt wurde, ergab sich dann durch Änderung der Stickstoffstromstärke  $\dot{m}_{N_2}$  unter Berücksichtigung der Austrittstemperatur  $T_{H3}$  des aufgewärmten Stickstoffs:  $\Delta T_{N_2} = T_{N3} - T_{N1}$

$$\dot{Q}_{N_2} = \dot{m}_{N_2} \cdot c_{pN_2} \cdot \Delta T_{N_2} \quad (10)$$

Die benötigte  $N_2$ -Stromstärke wird dann aus der erforderlichen Hilfskälteleistung  $\dot{Q}_{N_2} = \dot{Q}_{ges} - \dot{Q}_{Hauptstrom}$  berechnet.

Damit kann die erforderliche Stickstoffstromstärke  $\dot{m}_{N_2}$  für die gewünschte Abkühlgeschwindigkeit des Abscheiders nach der Gleichung (13)

$$\dot{m}_{N_2} = \frac{K_A \cdot \dot{m}_{H_2} \cdot N_1 - \dot{m}_{H_2} \cdot c_{pH_2} \cdot \Delta T_{H_2}}{c_{pN_2} \cdot \Delta T_{N_2}} \quad (11)$$

aus den Meßwerten des Gesamtdurchsatzes  $\dot{m}_{H_2}$ , der Temperaturdifferenz im Verfahrensgas am kalten Abscheiderende  $\Delta T_{H_2}$ , der  $UF_6$ -Konzentration am Eintritt  $N_1$  und der Temperaturdifferenz des Stickstoffstromes  $\Delta T_{N_2}$  angegeben werden. Die Konstante  $K_A$  bestimmt die gewünschte Abkühlgeschwindigkeit des Abscheiders und ist damit für die Schichtdicke der Beladung maßgebend. Sie wurde im Verlauf der Versuche unter dem Gesichtspunkt eines Kompromisses

zwischen maximaler Abscheiderkapazität und niedrigen Druckverlusten optimiert. Als günstiger Kompromiß wurde eine maximale Beladung des vorgegebenen Abscheiders mit 50 kg  $UF_6$  bei einem Gesamtdruckabfall an der Abscheidepassage von 5 Torr erreicht, wie es an einem typischen Versuchsbeispiel in Abb. 10 gezeigt ist. Dieser einmal festgelegte Wert der Konstante  $K_A$  wurde in die Vorausberechnung der Hilfsstromstärke  $\dot{m}_{N_2}$  in den Rechner einprogrammiert. Bei Versuchssteuerung über eine direkte Stromstärkeregelung von  $\dot{m}_{N_2}$  durch den Rechner wurden Versuche unter Variation<sup>2</sup> der  $UF_6$ -Konzentration im Rohgas im Bereich von  $N_1 = 0.1\%$  bis  $0.5\%$  und der Betriebsdrücke im Bereich von 100...300 Torr durchgeführt. Obwohl dabei die Abscheidezeiten umgekehrt proportional zum  $UF_6$ -Einstrom im Bereich von 3 bis 15 Stunden lagen, konnte praktisch stets das gleiche Abscheideprofil erzielt werden.

#### Der Bedarf an Kälteleistung für das Einkühlen des Abscheiders

Die Beladungskapazität des  $UF_6$ -Abscheiders wird umso besser ausgenutzt, je größer der Verschiebungsweg des Taupunkts ist, der durch die Temperaturänderung im Abscheider erreicht werden kann. Deshalb ist es für den Start der Abscheideperiode günstig, den Taupunkt möglichst weit an das untere Ende des Abscheiders zu legen.

Wie in Abb. 9 zu sehen ist, befindet sich der Abscheider nach dem Einkühlen im oberen Teil noch oberhalb Raumtemperatur, während der Übergang zur Endtemperatur von ca.  $-110^\circ C$  auf einem relativ kurzen Teil des Abscheiders erfolgt. Ein derartiges Temperaturprofil kann nur durch eine massive Abkühlung am kalten Ende in relativ kurzer Zeit erzeugt werden, weil durch Wärmeleitung im Wärmetauscherblock das Temperaturprofil abgeflacht wird. Das Einkühlen des Abscheiders erfolgt daher zweckmäßigerweise

durch einen in den Abscheiderblock integrierten Endkühler und durch Übertragung der Kälteleistung durch Wärmeleitung in den Abscheiderblock bei abgeschaltetem Verfahrensgasstrom.

An der Versuchsanlage ist eine unmittelbare Kühlung in dieser Weise nicht möglich. Der Versuchsabscheider wurde mit Hilfe des  $H_2$ -Hauptstromes eingekühlt, dem die entsprechende Kälteleistung im Endkühler zugeführt wurde. Diese Einkühlmethode liefert aber ähnlich hohe Anfangskälteleistungen und ebenso günstige Temperaturprofile für den Start wie das direkte Einkühlen. Man erkennt dies aus dem in Abb. 14 gezeigten Vergleich der Kälteleistungen und der Gegenüberstellung des gemessenen Temperaturprofils mit einer Temperaturverteilung, die für die reine, instationäre Längs-Wärmeleitung im Abscheiderblock bei direktem Einkühlen ausgehend von Raumtemperatur, berechnet wurde. Deshalb sind auch in dieser Hinsicht die Versuchsergebnisse als repräsentativ für die zu erwartende industrielle Betriebsweise anzusehen.

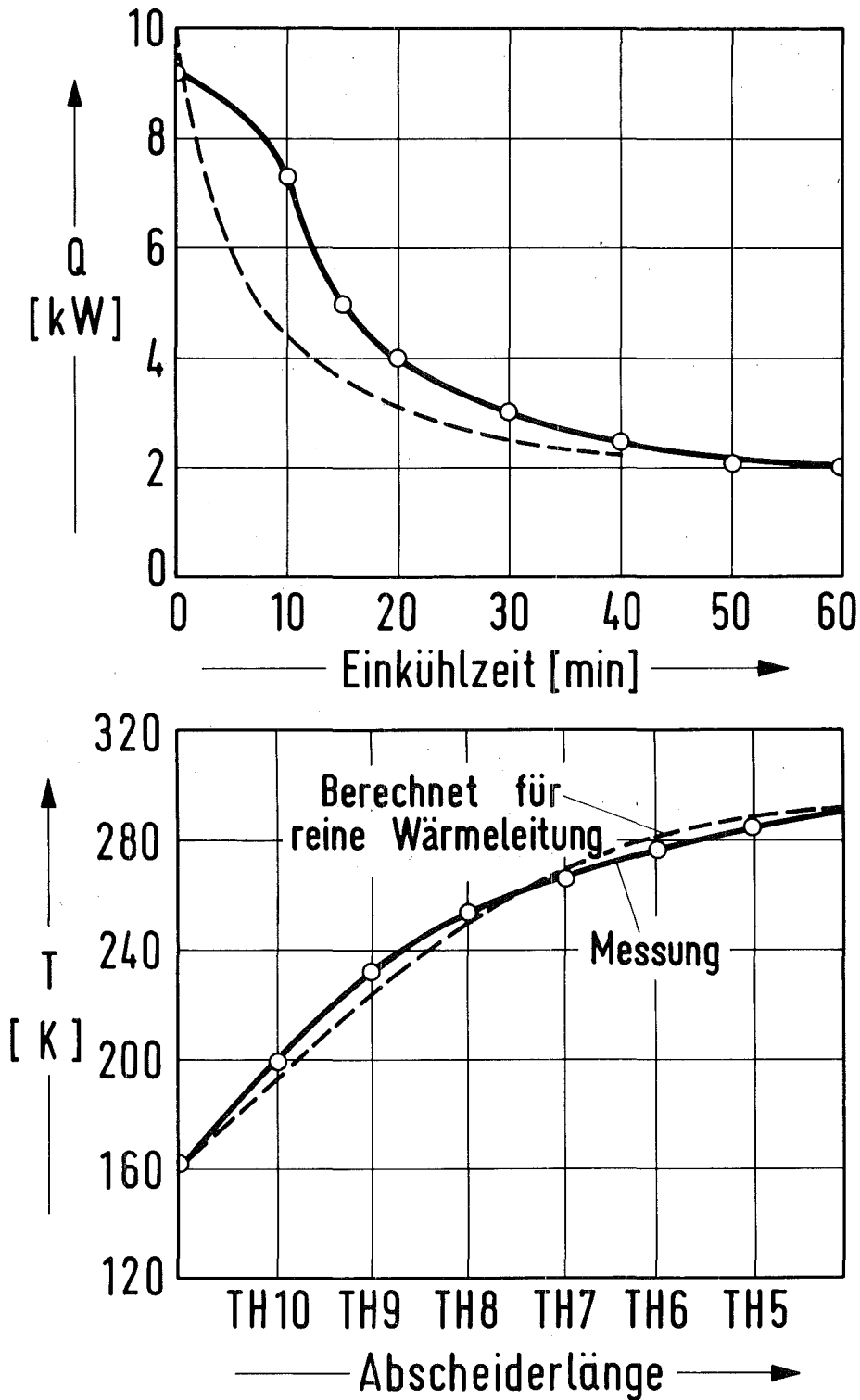


Abb. 14: Das Temperaturprofil zu Abscheidebeginn (Einkühlzeit 60 min) und die Einkühllleistung beim Einkühlen des  $UF_6$ -Abscheiderblocks mit dem  $H_2$ -Hauptstrom ( $\dot{m}_{H_2} = 9,56 \text{ kmol/h}$ ). Zum Vergleich sind Rechenergebnisse für das Einkühlen mit einem integrierten Endkühler gestrichelt eingezeichnet, die für reine instationäre Wärmeleitung längs des Blockes gelten.

## 5. Diskussion der Ergebnisse

Die durchgeführten Untersuchungen haben gezeigt, daß die Tieftemperaturabscheidung von  $UF_6$  aus einem Wasserstoffstrom im technischen Maßstab bis auf Restgehalte an  $UF_6$  im Reingas unter 0,1 ppm möglich ist, wenn Gegenstrom-Kompaktwärmetauscher verwendet werden, die in den Abscheidepassagen abgesetzte Rippen besitzen, durch die die Strömung im hydrodynamischen und thermischen Anlaufbereich gehalten wird. Aus der Übereinstimmung zwischen den gemessenen  $UF_6$ -Konzentrationen und den unter Verwendung der Beziehung  $\frac{\alpha}{\beta \cdot \rho \cdot c} = Le^{2/3}$  vorausgerechneten  $UF_6$ -Partialdrücken im Abscheider konnte geschlossen werden, daß unter allen realisierten Versuchsbedingungen mit Übersättigungswerten bis zu 1000 keinerlei Schneebildung auftrat. Das aufgrund dieser Feststellungen entwickelte Abscheidungskonzept mit einseitig instationären Temperaturprofilen kann daher mit wesentlich größeren treibenden Temperaturdifferenzen arbeiten, als dies im Vorentwurf /4/ in Betracht gezogen werden konnte.

Bei der abschließend erprobten Betriebsweise wird vor Beginn des  $UF_6$ -Abscheidens der Abscheider vom kalten Ende her mit relativ hoher Kälteleistung einseitig abgekühlt, so daß sich ein verhältnismäßig steiles Temperaturprofil am kalten Abscheiderende ergibt, während sich der größte Teil des Abscheiders noch auf Raumtemperatur befindet. Mit Beginn der Abscheidephase wird durch Zufuhr einer konstanten Überschußkälteleistung dieses Temperaturprofil bei festgehaltener Abscheiderendtemperatur monoton zum warmen Abscheiderende hin verschoben, so daß sich aus der Wanderung des Taupunktgebietes eine gleichmäßige Schichtdickenbeladung der Abscheiderpassage ergibt.

Mit dieser Abscheidungsmethode konnten in dem Versuchsabscheiderblock mit einer Passagenquerschnittsfläche von  $15 \times 90 \text{ cm}^2$  bei einer effektiven Blocklänge des Abscheiders von ca. einem Meter Beladungsmengen von 50 kg  $\text{UF}_6$  abgeschieden werden, ohne daß der Druckverlust in der Abscheidepassage um mehr als 5 Torr zunahm. Diese Erhöhung des Druckverlustes in der Abscheidepassage wird bei dieser Betriebsweise praktisch völlig kompensiert durch die Erniedrigung der Druckverluste in anderen Abscheiderteilen infolge der dort auftretenden Temperaturabsenkung. Bei einer derartigen Betriebsweise ergeben sich bei  $-110^\circ\text{C}$  Endtemperatur in der Anfangsphase des Abscheidungszyklus vergleichsweise hohe Übersättigungswerte des  $\text{UF}_6$  am Abscheideraustritt, die bei den benutzten Betriebsdrücken einem  $\text{UF}_6$ -Gehalt bis zu 10 ppm entsprechen. Mit fortschreitender Beladung nimmt die  $\text{UF}_6$ -Restkonzentration wegen der Abflachung des Temperaturprofils bis auf Werte im Bereich von 0,5 ppm ab.

Gewissermaßen als zweiter Schritt des Abscheidungs Vorganges können diese Übersättigungen in einem nachgeschalteten Laminarelement mit sehr kurzen Diffusionslängen, aber auch sehr kurzer Strömungslänge (z. B. Filternetz), praktisch vollständig abgebaut werden. Es erscheint auf einfache Weise möglich, diesen Teil des Abscheidesystems zusammen mit dem zur Einbringung der Kälteleistung erforderlichen Endkühler in den Wärmetauscherblock am kalten Ende zu integrieren.

Diese Vorgehensweise erlaubt es, trotz der Anwendung relativ hoher treibender Temperaturdifferenzen und entsprechend günstiger Wärmetauschererausnutzung einen Reingasstrom zu erzielen, in dem der verbleibende Restgasgehalt an  $\text{UF}_6$  dem  $\text{UF}_6$ -Sättigungspartialdruck entspricht, der sich gemäß der Dampfdruckkurve bei der Abscheider-



endtemperatur ergibt. Damit entfällt die Notwendigkeit, an irgendeiner Stelle des Abscheidesystems die sich aus den thermodynamischen Eigenschaften des Stoffsystems ergebende Endtemperatur zu unterschreiten, und die Betriebstemperatur des Endkühlers kann während der gesamten Abscheidephase konstant gehalten werden. Ebenso kann man bei dieser Verfahrensweise Vorkühler und Abscheider in einem Block mit identischen Passagen ausführen, so daß wegen der dann wegfallenden Übergangsstücke zwischen den in der Versuchsanlage getrennt angeordneten Wärmetauscherblöcken eine weitere Reduzierung des Gesamtdruckabfalls möglich ist bzw. bei konstant bleibendem Gesamtdruckabfall eine größere  $UF_6$ -Menge in einem Abscheider-Vorkühler-Block abgeschieden werden kann.

Die unmittelbare Übertragung der vorliegenden Versuchsergebnisse zeigt, daß in einem Vorkühler-Abscheiderblock von quadratischem Querschnitt mit 0,9 m Kantenlänge und 1,7 m effektiver Wärmetauscher-Länge unter den Betriebsbedingungen des Verfahrens (Eintrittsdruck 150 Torr, Eintrittstemperatur  $40^{\circ}C$ ) aus einem Gasstrom von  $7000 \text{ m}^3/\text{h}$  mit 0,1...0,5 %  $UF_6$ -Gehalt (Abscheiderleistung 22...110 kg/h) insgesamt 450 kg  $UF_6$  abgeschieden werden können, wobei der  $UF_6$ -Gehalt im Reingas unter 0,1 ppm liegt und der Druckabfall des Abscheidersystems praktisch konstant 23 Torr beträgt. Eine solche Betriebsweise eines Abscheidesystems mit konstantem Druckverlust während der gesamten Einschaltdauer erleichtert den Parallelbetrieb und das zyklische Umschalten der einzelnen Abscheiderblöcke in einer industriellen Abscheidungsanlage außerordentlich. Die Durchsatzverteilung des Rohgases auf parallelgeschaltete Abscheider mit unterschiedlichem Beladungszustand und die Steuerung der Kälteleistungsver-sorgung für diese Abscheider werden dadurch problemlos.

Zusätzlich ergibt sich aus dieser Arbeitsweise Rückwirkungsfreiheit des Tieftemperaturteils auf die Funktion der Vorabscheidungstrenndüse, deren unteres Betriebsdruckniveau, auf das das Gas in der Trenndüse expandiert, mit dem Eingangsdruck der Tieftemperaturanlage identisch ist. Damit ist umgekehrt auch sichergestellt, daß keine Schwankungen des Expansionsverhältnisses an der Vorabscheidungstrenndüse auftreten, wodurch sich der  $\text{UF}_6$ -Gehalt im Rohgas und damit die abzuscheidende  $\text{UF}_6$ -Menge im Tieftemperatursystem ändern würde.

Bei der vorbeschriebenen Betriebsweise ist bei festgehaltener Abscheiderendtemperatur die Beladungskapazität und der Abscheidungsgrad des Abscheidesystems praktisch unabhängig von Änderungen des Betriebsdruckes und der  $\text{UF}_6$ -Eintrittskonzentration im Rohgas. Dieser Sachverhalt konnte durch Versuche im Druckbereich zwischen 100 und 300 Torr mit  $\text{UF}_6$ -Eingangskonzentrationen zwischen 0,1 und 0,5 %  $\text{UF}_6$  bestätigt werden.

Die Druckunabhängigkeit des Abscheideverhaltens folgt aus der Tatsache, daß der für den Abkühlvorgang maßgebliche Koeffizient  $\frac{\alpha}{\beta \cdot \rho \cdot c_D} = \text{Le}^{2/3}$  bei vorgegebenem Temperaturverlauf und vorgegebener  $\text{UF}_6$ -Konzentration praktisch unabhängig vom Betriebsdruck ist, da sich die Druckabhängigkeit der Diffusionskonstante  $D$  und der Temperaturleitfähigkeit  $a = \lambda / (\rho \cdot c_D)$  gegenseitig aufheben. Ebenso konnte gezeigt werden, daß der Einfluß des  $\text{UF}_6$ -Molenbruchs in gesättigten  $\text{H}_2/\text{UF}_6$ -Gemischen bei Temperaturen unterhalb von  $-40^\circ\text{C}$  praktisch vernachlässigbar ist. Damit ergeben sich auch bei unterschiedlichen  $\text{UF}_6$ -Eingangskonzentrationen in den Temperaturbereichen, in denen die Übersättigung hauptsächlich aufgebaut wird, gleiche Werte für die Lewis-Zahl und nahezu gleiche Übersättigungswerte bis zum Erreichen der Abscheiderendtemperatur.

Aus diesen Gründen würden auch beträchtliche Änderungen des Betriebsdruckes und der  $UF_6$ -Konzentration im Rohgas den Restgehalt an  $UF_6$  im Reingas eines derartigen Tieftemperaturabscheidesystems nicht erhöhen. Im Interesse günstiger Beladungszeiten und eines niedrigen Kältebedarfs für den Tieftemperaturteil einer  $UF_6$ -Abscheidungsanlage sollte aber ein möglichst niedriger Wert der  $UF_6$ -Eingangskonzentration im Rohgas angestrebt werden.

Mit der in dieser Arbeit angewandten theoretischen Beschreibung des Desublimationsablaufes stehen ausreichend genaue Berechnungsgrundlagen für die Abkühlvorgänge im System Wasserstoff/ $UF_6$  in derartigen Tieftemperaturgegenströmern zur Verfügung, so daß neben der unmittelbaren Übertragung der Versuchsergebnisse die Vorausberechnung industrieller  $UF_6$ -Abscheidungsanlagen auch mit deutlich geänderten Betriebsbedingungen möglich ist.

Anhang I      Hilfsrechnungen zur gaskinetischen Ermittlung der Transportkoeffizienten Wärmeleitfähigkeit  $\lambda$  und Diffusionskonstante D

---

Für die Berechnung der von Hirschfelder et.al. /16/ angegebenen gaskinetischen Methoden benötigt man die Werte der reduzierten Stoßintegrale  $\Omega^{(1,s)*}(T^*)$ , für deren Berechnung hier auf tabellierte Werte der Hilfsintegrale  $Z^{(1,s)}(T^*)$  zurückgegriffen wurde. Ferner ist für das System  $H_2/UF_6$  die Berechnung der Wärmeleitfähigkeit eines binären Gemisches aus mehratomigen Gasen erforderlich, für die hier eine geschlossene Formeldarstellung gegeben wird.

I. Die Ermittlung der reduzierten Stoßintegrale  $\Omega^{(1,s)*}(T^*)$

Da eine unmittelbare Berechnung der benötigten reduzierten Stoßintegrale  $\Omega^{(1,s)*}(T^*)$  außerordentlich aufwendig ist, wurden die von Hirschfelder /16/ tabellierten Werte der Hilfsintegrale  $Z^{(1,s)}(T^*)$  benutzt und daraus die Stoßintegrale  $\Omega^{(1,s)*}(T^*)$  über die Beziehung:

$$\Omega^{(1,s)*}(T^*) = \frac{Z^{(1,s)}(T^*)}{T^* \left(1 - \frac{6}{\alpha}\right)^{1/3}}$$

berechnet.

Die tabellierten Werte der Hilfsintegrale  $Z^{(1,s)}(T^*)$  wurden für die beiden Werte der Steilheitsparameter  $\alpha = 12$  und  $\alpha = 15$  durch Polynombeziehungen approximiert. Die Werte der Stoßintegrale für  $\alpha$  zwischen 12 und 15 wurden linear aus diesen Randwerten gemittelt.

$\alpha = 12:$   
=====

$$Z^{(11)}(T^*) = \{0,882917 + 0,50309 \cdot \ln T^* + 0,211931 \cdot (\ln T^*)^2 + 0,135673 \cdot (\ln T^*)^3 + 0,00270908 \cdot (\ln T^*)^4\} / \{1 + 0,765551 \cdot \ln T^* + 0,296938 \cdot (\ln T^*)^2 + 0,106548 \cdot (\ln T^*)^3 - 0,00381689 \cdot (\ln T^*)^4 + 0,000277535 \cdot \ln T^*)^5\}$$

$$Z^{(22)}(T^*) = \{0,986094 + 0,258309 \cdot \ln T^* + 0,241157 \cdot (\ln T^*)^2 + 0,103412 \cdot (\ln T^*)^3 - 0,0335496 \cdot (\ln T^*)^4\} / \{1 + 0,47183 \cdot \ln T^* + 0,255097 \cdot (\ln T^*)^2 + 0,0458818 \cdot (\ln T^*)^3 - 0,0357911 \cdot (\ln T^*)^4 + 0,0022688 \cdot (\ln T^*)^5\}$$

$\alpha = 15:$   
=====

$$Z^{(11)}(T^*) = \{0,953612 + 0,278805 \cdot \ln T^* + 0,130175 \cdot (\ln T^*)^2 + 0,0899003 \cdot (\ln T^*)^3 - 0,0262405 \cdot (\ln T^*)^4\} / \{1 + 0,429398 \cdot \ln T^* + 0,119342 \cdot (\ln T^*)^2 + 0,0408021 \cdot (\ln T^*)^3 - 0,0263962 \cdot (\ln T^*)^4 + 0,00177284 \cdot (\ln T^*)^5\}$$

$$Z^{(22)}(T^*) = \{1,05576 + 0,9953 \cdot \ln T^* + 0,559206 \cdot (\ln T^*)^2 + 0,321219 \cdot (\ln T^*)^3 + 0,114017 \cdot (\ln T^*)^4\} / \{1 + 1,0968 \cdot \ln T^* + 0,63476 \cdot (\ln T^*)^2 + 0,263974 \cdot (\ln T^*)^3 + 0,0606109 \cdot (\ln T^*)^4 - 0,0080519 \cdot (\ln T^*)^5\}$$

II. Die Wärmeleitfähigkeit von binären Gemischen mehratomiger Gase

Bei von Hirschfelder et.al. /16/ ist die Mischungsformel für die Berechnung der Wärmeleitfähigkeit binärer Gemische mehratomiger Gase angegeben:

$$\lambda_{\text{mix}} = \lambda_{\{\text{mix}\}_1} + \lambda_{\text{int}}$$

Hierin wird die Wärmeleitfähigkeit  $\lambda_{\{\text{mix}\}_1}$  eines binären Gemisches einatomiger Gase durch einen Korrekturterm  $\lambda_{\text{int}}$  ergänzt

$$\lambda_{\text{int}} = \frac{x_1(\lambda_1^E - \lambda_1)}{x_1 + x_2 \cdot \frac{D_{11}}{D_{12}}} + \frac{x_2(\lambda_2^E - \lambda_2)}{x_2 + x_1 \cdot \frac{D_{22}}{D_{12}}}$$

Darin bedeuten  $x_1, x_2$  die Molenbrüche der beiden Komponenten und  $\lambda_1^E$  bzw.  $\lambda_2^E$  die mit der Eucken-Korrektur versehene Wärmeleitfähigkeit des mehratomigen Gases der Einzelkomponenten. Außerdem werden die Werte der Eigendiffusionskonstanten  $D_{11}, D_{22}$  verwendet, sowie die Diffusionskonstante des binären Gemisches  $D_{12}$ .

Benutzt man die theoretischen Ausdrücke für die Diffusionskonstanten, so erhält man für die Wärmeleitfähigkeit eines binären Gemisches mehratomiger Gase den folgenden Ausdruck:

$$\lambda_{\text{mix}} = \lambda_{\{\text{mix}\}_1} + \frac{x_1(\lambda_1^E - \lambda_1)}{x_1 + x_2 \cdot \left(\frac{r_{m12}}{r_{m11}}\right)^2 \cdot \frac{\Omega_{12}^{(11)*}(T^*)}{\Omega_{11}^{(11)*}(T^*)} \cdot \sqrt{\frac{2M_2}{M_1 + M_2}}} + \frac{x_2(\lambda_2^E - \lambda_2)}{x_2 + x_1 \cdot \left(\frac{r_{m12}}{r_{m11}}\right)^2 \cdot \frac{\Omega_{12}^{(11)*}(T^*)}{\Omega_{22}^{(11)*}(T^*)} \cdot \sqrt{\frac{2M_1}{M_1 + M_2}}}$$

UF <sub>6</sub> - Konzentration in %											
T {°C}	0	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10
-140	5.70	5.30	4.93	4.60	4.30	4.03	3.78	3.56	3.35	3.16	2.98
-120	5.43	5.02	4.65	4.32	4.03	3.76	3.51	3.29	3.08	2.90	2.72
-100	5.20	4.80	4.44	4.12	3.82	3.56	3.32	3.10	2.90	2.72	2.56
-80	5.02	4.62	4.27	3.95	3.67	3.41	3.18	2.97	2.78	2.60	2.44
-60	4.86	4.47	4.13	3.82	3.55	3.30	3.07	2.86	2.68	2.51	2.35
-40	4.73	4.35	4.02	3.72	3.45	3.20	2.98	2.78	2.60	2.43	2.28
-20	4.61	4.25	3.92	3.63	3.36	3.13	2.91	2.72	2.54	2.38	2.23
0	4.51	4.16	3.84	3.55	3.29	3.06	2.85	2.66	2.49	2.33	2.18
20	4.43	4.08	3.77	3.49	3.24	3.01	2.80	2.61	2.44	2.29	2.14
40	4.36	4.01	3.71	3.43	3.18	2.96	2.76	2.57	2.41	2.25	2.11

Anhang IIa: Werte der Lewis-Zahl  $Le = \frac{\lambda}{D \cdot \rho \cdot c_p}$  für H<sub>2</sub>/UF<sub>6</sub>-Gemische im Temperaturbereich -140°C bis 40°C.

UF <sub>6</sub> - Konzentration in %												
T °C	D {cm <sup>2</sup> /sec}	0	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10
-140	0.33	2.22	2.09	1.98	1.88	1.78	1.70	1.62	1.54	1.47	1.41	1.35
-120	0.43	2.49	2.36	2.24	2.13	2.02	1.93	1.84	1.76	1.68	1.61	1.54
-100	0.55	2.76	2.62	2.49	2.37	2.25	2.15	2.06	1.97	1.88	1.81	1.73
-80	0.69	3.02	2.87	2.73	2.60	2.48	2.37	2.27	2.17	2.08	2.00	1.92
-60	0.83	3.27	3.11	2.96	2.83	2.70	2.58	2.47	2.37	2.27	2.18	2.10
-40	0.99	3.52	3.35	3.19	3.05	2.91	2.79	2.67	2.56	2.46	2.36	2.27
-20	1.15	3.76	3.58	3.42	3.26	3.12	2.99	2.86	2.75	2.64	2.54	2.44
0	1.33	4.00	3.81	3.64	3.47	3.32	3.19	3.05	2.93	2.82	2.71	2.61
20	1.52	4.23	4.03	3.85	3.68	3.53	3.38	3.24	3.11	2.99	2.88	2.77
40	1.72	4.46	4.25	4.06	3.89	3.72	3.57	3.43	3.29	3.17	3.05	2.93

Anhang IIb: Binäre Diffusionskonstante  $D_{H_2/UF_6}$  bei Gemischdruck 170 Torr und Wärmeleitfähigkeit  $\lambda \{10^{-4} \text{ cal/cm secK}\}$  für  $H_2/UF_6$ -Gemische im Temperaturbereich  $-140^\circ\text{C}$  bis  $40^\circ\text{C}$ .



Anhang III      Näherungslösung für die Lewis-Zahl  $Le$  bei Gemischen mit weniger als 0,5 %  $UF_6$

In  $H_2/UF_6$ -Gemischen mit 0,5 %  $UF_6$  beträgt die Wärmeleitfähigkeit 97,6 % der des reinen Wasserstoffs. Setzt man bei der Berechnung der Lewis-Zahl verdünnter Gemische die Werte des reinen Wasserstoffs ein, so liegt bei 0,5 %  $UF_6$ -Gehalt der Fehler in der Lewis-Zahl unter 3 %. Mit abnehmender Temperatur wird die Näherung stets besser, da die Gemischkonzentration entsprechend dem  $UF_6$ -Sättigungsdruck abnimmt.

Mit dieser Vernachlässigung des Einflusses des  $UF_6$ -Anteils auf  $\lambda$  läßt sich die Berechnung der Lewis-Zahl auf einen relativ einfachen Ausdruck reduzieren:

$$Le = 3,23 \sqrt{\frac{2M_2}{M_1+M_2}} \cdot \left(\frac{r_{m12}}{r_{m11}}\right)^2 \cdot \frac{\Omega_{12}^{(11)*}(T^*)}{\Omega_{11}^{(22)*}(T^*)} \cdot \frac{R}{c_p} \cdot K_E \cdot K_D \quad (A1)$$

Hierin bedeuten  $M_1$  und  $M_2$  das Molekulargewicht des  $H_2$  bzw. des  $UF_6$ . Der Koeffizient  $K_E$  ist der Eucken'sche Korrekturfaktor

$$K_E = \frac{4}{15} \left( \frac{c_p - R}{R} + \frac{3}{5} \right) \quad (A2)$$

für die Wärmeleitfähigkeit mehratomiger Gase;  $K_D = 1,18$  ist ein zur Korrektur des Rechenergebnisses der Diffusionskonstante  $H_2/UF_6$  eingeführter Korrekturfaktor. Die Berechnung der Lewis-Zahl mit diesem vereinfachten Ausdruck führt im Temperaturbereich  $-40^\circ C$  bis  $-120^\circ C$  im Rahmen der Zeichengenauigkeit zum gleichen Ergebnis wie die ausführliche Rechnung.

Literaturverzeichnis

- /1/ E.W. Becker, K. Bier, W. Bier, R. Schütte, D. Seidel; Separation of the Isotopes of Uranium by the Separation Nozzle Process; *Angew. Chemie intern. ed.* 6, 507 (1967). Dieser Bericht enthält eine Zusammenfassung der früheren Veröffentlichungen über das Trenndüsenverfahren.
- /2/ E.W. Becker, W. Bier, W. Ehrfeld, G. Eisenbeiß; Die physikalischen Grundlagen der Uran-235-Anreicherung nach dem Trenndüsenverfahren. Die Wirkung des leichten Zusatzgases; *Z.f. Naturforschung* 26a, 1377 (1971).
- /3/ W. Bier, G. Eisenbeiß, G. Heeschen; Die physikalischen Grundlagen der Uran-235-Anreicherung nach dem Trenndüsenverfahren. II. Vergleich der leichten Zusatzgase  $H_2$ , He und  $D_2$ ; *Z.f. Naturforschung* 28a, 1267 (1973).
- /4/ H.J. Fritsch, R. Schütte; Trennung von  $UF_6$  und Zusatzgas bei Trenndüsenanlagen mit einer Kombination von Vorabscheidungs-Trenndüse und Tieftemperatur-Feinabscheidung; KFK-Bericht 1437, Gesellschaft für Kernforschung, Karlsruhe (1971).
- /5/ W.I. Thompson; Theory of heat and mass transfer in batch condensation of solids. *Natl. Nuclear Energy Series Div. II*, 16 (1949).
- /6/ S.H. Smiley et.al.; Quantitative recovery of uranium hexafluoride of a process gas stream. *Ind. Eng. Ch.* 51, 191 (1959).
- /7/ D. Gupta, E. Ray; Untersuchungen über  $UF_6$ -Abscheidung an  $LN_2$ -Fallen mit Füllkörperperfüllung (1965) (unveröffentlicht).
- /8/ E.W. Becker, G. Frey, R. Schütte, D. Seidel; Entmischung der Uranisotope in einer 10-stufigen Trenndüsen-Versuchsanlage; *Atomwirtschaft/Atomtechnik*, 8, 359 (1968).

- / 9/ H.J. Fritsch, G. Linder, R. Schäfer, J. Schmid; Experimentelle Untersuchungen des instationären Betriebsverhaltens der 10-stufigen Pilot-Anlage ohne Produktentnahme - mit 9 identischen Stufen und Stufe 10 als Vorabscheidungstrenndüse - bei periodischen Störungen der  $UF_6$ -Einspeisung und des Heliumrücktransports (1972) (unveröffentlicht).
- /10/ E. Pohlhausen; Der Wärmeaustausch zwischen festen Körpern und Flüssigkeiten mit kleiner Reibung und Wärmeleitung; Z. Angew. Math. Mech. 1, 115 (1921).
- /11/ H. Hausen; Einfluß des Lewis'schen Koeffizienten auf das Ausfrieren von Dämpfen aus Gas-Dampf-Gemischen; Angew. Chemie B20, 177 (1948).
- /12/ E.A. Rische; Ausfrieren von Dämpfen aus Gas/Dampf-Gemischen bei erzwungener Rohrströmung; Chemie-Ing.-Techn. 29, 603 (1957).
- /13/ M. Poppe; Wärme- und Stoffübertragung bei der Verdunstungskühlung im Gegen- und Kreuzstrom; Dissertation, Technische Universität Hannover (1972). VDI-Forsch., Heft 560 (1973).
- /14/ K.H. Presser; Stoffübertragung an der längsangeströmten ebenen Platte im Kanal bei Schmidt-Zahlen von 2000, 2 und 0.7; Wärme- und Stoffübertragung 5, 153 (1972).
- /15/ R. DeWitt; Uranium Hexafluoride: A Survey of the Physico-Chemical Properties; Goodyear Atomic Corporation Portsmouth, GAT-280 (1960).
- /16/ J.O. Hirschfelder, C.F. Curtiss, R.B. Bird; "Molecular Theory of Gases and liquids"; J. Wiley & Sons, Inc., New York (1964).
- /17/ P. Kirch, R. Schütte; Messungen des Thermodiffusionsfaktors und Bestimmung des molekularen Wechselwirkungspotentials von gasförmigem Uranhexafluorid; Z. Naturf. 22a, 1532 (1967).
- /18/ R.B. Scott; "Cryogenic Engineering"; Van Nostrand Company, INC, New York (1959).

- /19/ J. Hilsenrath et.al.; "Tables of Thermodynamic and Transport Properties"; Pergamon Press (1960).
- /20/ VDI-Wärmeatlas (1974).
- /21/ S. Ljunggren; The diffusion of uranium hexafluoride in some other gases; Arkiv för Kemi 24 (1965).
- /22/ W. Baam, P. Bley, U. Knapp; Entwicklung und Bau eines für die Serienfertigung geeigneten  $\alpha$ -Ionisationsdetektors mit Druckaufnehmer und Rechenstufe zur digitalen Konzentrationsanzeige.(1974) (unveröffentlicht).
- /23/ D.I. Dunthorn; The Design of Batch Desublimers; USAEC-Report K-L-6220 (1968).