

**KERNFORSCHUNGSZENTRUM
KARLSRUHE**

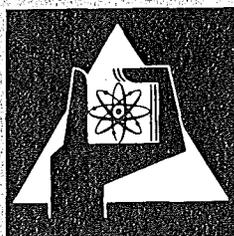
August 1973

KFK 1824

Institut für Kernverfahrenstechnik

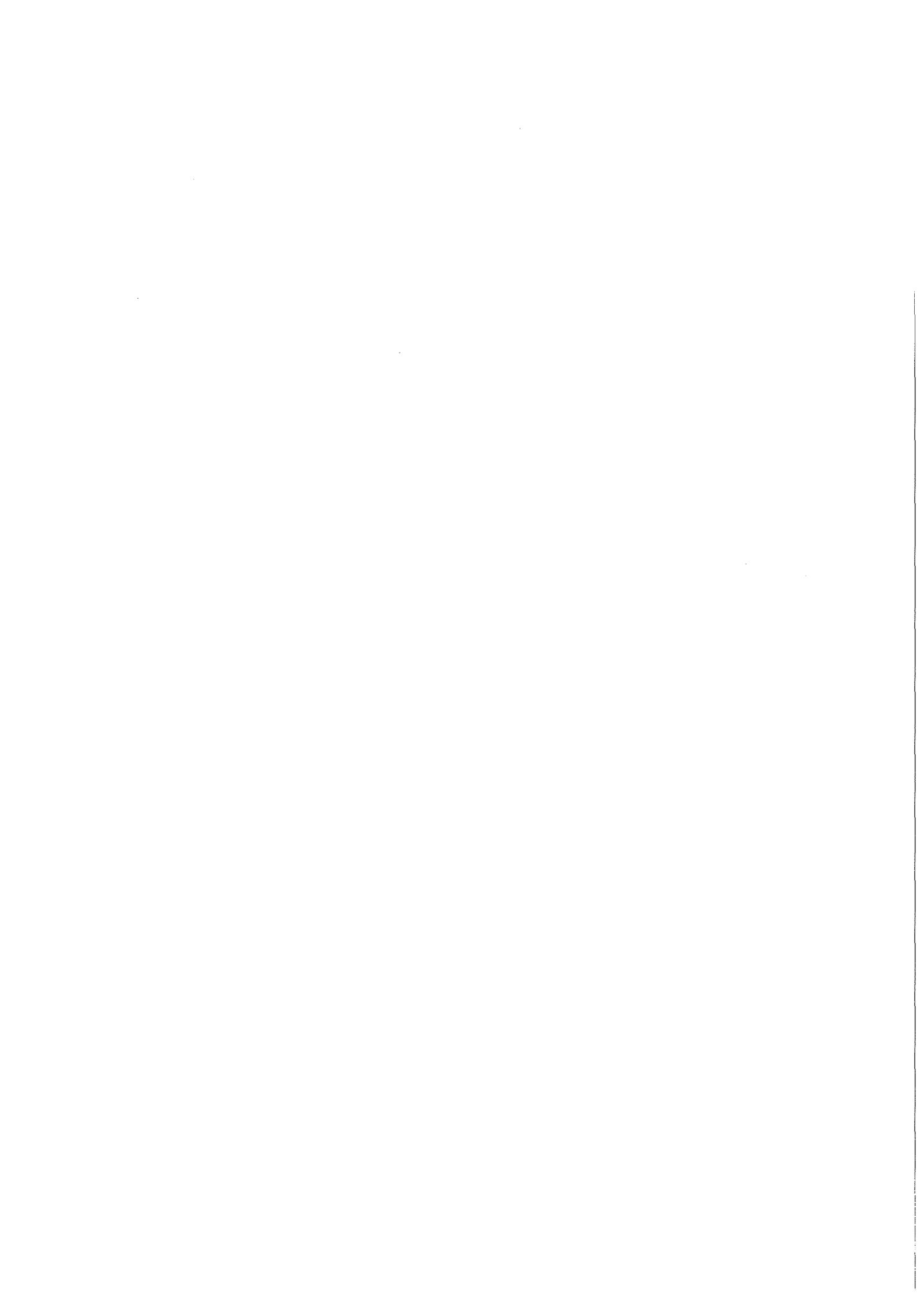
**Entwicklung und Erprobung einer Wärmeleitzone zur
Messung des UF_6 -Gehaltes im Verfahrensgas einer
Trenndüsenanlage**

D. Plesch, R. Schütte



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

KARLSRUHE



Kernforschungszentrum Karlsruhe

KFK 1824

Institut für Kernverfahrenstechnik

ENTWICKLUNG UND ERPROBUNG EINER WÄRMELEITZELLE ZUR
MESSUNG DES UF_6 -GEHALTES IM VERFAHRENSGAS EINER
TRENNDÜSENANLAGE

von

D. Plesch⁺⁾

R. Schütte

Gesellschaft für Kernforschung m.b.H, Karlsruhe

⁺⁾ Von der Fakultät für Maschinenbau der Universität
Karlsruhe (T.H.) genehmigte Dissertation

Entwicklung und Erprobung einer Wärmeleitzelle zur Messung des UF_6 -Gehaltes im Verfahrensgas einer Trenndüsenanlage

Kurzfassung

Die Einregelung und Überwachung einer Trenndüsenkaskade zur Anreicherung von Uran-235 erfolgt im wesentlichen anhand der Drücke und UF_6 -Konzentrationen in dem als Verfahrensgas verwendeten Gemisch von Uranhexafluorid und einem leichten Zusatzgas. Zur kontinuierlichen Messung des UF_6 -Gehaltes in der 10-stufigen Pilotanlage für das Trenndüsenverfahren, welche mit einem Gemisch aus 5 Mol-% UF_6 und 95 Mol-% He bei Absolutdrücken von ca. 40 Torr arbeitet, wurde eine Konzentrationsmeßzelle nach dem Wärmeleitprinzip entwickelt. Durch geeignete Ausbildung des Heizelements der Zelle (Knudsenzahl 0,002 bei 40 Torr He) konnte eine ausreichend kleine Druckabhängigkeit der Konzentrationsanzeige (entsprechend 0,008 Mol-% UF_6 /Torr) bei einer Nachweisgrenze von 0,01 Mol-% UF_6 in He erzielt werden. Experimentell wurde festgestellt, daß bei den Betriebsbedingungen der Anlage ein merklicher Einfluß der Thermodiffusion auf die Konzentrationsmessung nicht auftritt. Die in den verschiedenen Stufen der Pilotanlage montierten Wärmeleitzellen sind an eine gemeinsame Stromversorgung und Thermostatisierung angeschlossen und werden gemeinsam geeicht. Verglichen mit der Verwendung selbstständiger Meßgeräte wird hierdurch nicht nur der gerätetechnische Aufwand verringert, sondern auch die für die Kaskadeneinregelung wichtige Relativgenauigkeit der Meßzellen verbessert. Es wird kurz über einen Einregelungsversuch berichtet, dessen Auswertung einen maximalen relativen Fehler von $\pm 0,3$ % des Konzentrationsmeßwertes, entsprechend $\pm 0,015$ Mol-% UF_6 liefert.

Development and Performance of a Thermal Conductivity Cell for the Measurement of UF_6 -Content in the Process Gas of a Separation Nozzle Plant

Abstract

Essentially, adjustment and supervision of a separation nozzle cascade for the enrichment of uranium -235 is accomplished with the aid of the pressures and UF_6 -concentrations of the mixture consisting of uranium hexafluoride and a light additional gas and applied as process gas. For continuous measurement of the UF_6 -content in the 10-stage separation nozzle pilot plant working with a mixture of 5 mol% UF_6 and 95 mol% He at absolute pressures of about 40 Torr, a concentration measuring cell was developed, based on the thermal conductivity method. As a result of the suitable design of the heater element in the cell (Knudsen number 0.002 at 40 Torr He), a sufficiently small pressure dependence of the concentration reading (corresponding to 0.008 mol% UF_6 /Torr) with a detection limit of 0.01 mol% UF_6 in He could be obtained. It was confirmed experimentally, that a noticeable influence of thermal diffusion on the concentration measurement does not occur under the operation conditions of the plant. The thermal conductivity cells mounted at the different stages of the pilot plant are connected with a common electrical supply and thermostat circuit and calibrated together. Compared with the use of autonomous instruments, this does not only reduce the expenditure of the equipment, but also improves the measuring cells' relative accuracy which is important for the adjustment of the cascade. An adjustment experiment is briefly reported, the evaluation of which gives a maximum relative error of $\pm 0.3\%$ of the concentration reading, corresponding to ± 0.015 mol % UF_6 .

Inhaltsverzeichnis

	<u>Seite</u>
1. Einleitung	3
2. Entwicklung der Meßzelle	
2.1 Anforderungen an die Konzentrationsmessung bei der Einregelung und beim Betrieb der Pilotanlage	4
2.2 Berechnung der Konzentrationsabhängigkeit der Wärmeleitfähigkeit von UF_6 /He-Gemischen	7
2.3 Dimensionierung des Heizelementes	10
2.4 Aufbau und Herstellung der Meßzellen	13
2.5 Anschluß der Meßzellen an die Pilotanlage und Eichung	17
2.6 Einfluß der Thermodiffusion	24
3. Erprobung der Meßzellen an der Pilotanlage	
3.1 Einregelung der Uran-Abschälverhältnisse	26
3.2 Reaktion der Pilotanlage auf periodische Änderung des UF_6 -Einspeisestromes	29
4. Diskussion der Ergebnisse	31

1. Einleitung

Im Institut für Kernverfahrenstechnik wurde in den letzten Jahren eine neue, als "Trenndüsenverfahren" bezeichnete Methode zur Anreicherung von Uran-235 entwickelt¹⁾, die auf der teilweisen räumlichen Entmischung verschieden schwerer Komponenten in einer auf gekrümmten Bahnen laufenden schnellen Gasströmung beruht. Wie bei den anderen Anreicherungsverfahren²⁾ kann der erforderliche Anreicherungsgrad nur durch Zusammenschalten einer größeren Anzahl von Trennelementen zu einer Trennkaskade erreicht werden³⁾. Zur experimentellen Untersuchung der Eigenschaften von Trenndüsenkaskaden wurde daher eine 10-stufige Pilotanlage errichtet⁴⁾, mit welcher ein mehrjähriges Versuchsprogramm abgewickelt wird.

Die Pilotanlage wird mit einem Gemisch aus 5 Mol-% Uranhexafluorid und 95 Mol-% Helium als leichtem Zusatzgas bei einem mittleren Gesamtdruck von ca. 30 Torr betrieben. Für die Einregelung und Überwachung der Anlage müssen in den in die Trenndüsen eintretenden Gasströmen neben den Drücken die UF_6 -Konzentrationen bekannt sein. Während für die Druckmessung kommerzielle Meßwertaufnehmer zur Verfügung standen⁵⁾, existierten keine für den vorliegenden Zweck geeigneten Konzentrationsmeßgeräte.

In der folgenden Arbeit wird die Entwicklung und Erprobung einer auf der Wärmeleitmethode beruhenden, für das stark korrosive UF_6/He -Gemisch geeigneten Konzentrationsmeßzelle beschrieben.

-
- 1) E.W. Becker, K. Bier, W. Bier, R. Schütte, D. Seidel; Angew. Chemie internat. Edit. 6, 507 (1967). Diese Arbeit enthält eine Zusammenstellung der früheren Veröffentlichungen über das Trenndüsenverfahren.
 - 2) E.W. Becker, Z. Kerntechnik 11, 129 (1969)
 - 3) E.W. Becker, W. Bier, G. Frey, R. Schütte; Z. Atomwirtschaft 14, 249 (1969)
 - 4) E.W. Becker, G. Frey, R. Schütte, D. Seidel; Z. Atomwirtschaft 13, 359 (1968)
 - 5) CEC-Druckaufnehmer der Type 4-353 mit Viton-Dichtring; Fa. Bell & Howell, Friedberg/Hessen.

2. Entwicklung der Meßzelle

2.1 Anforderungen an die Konzentrationsmessung bei der Einregelung und beim Betrieb der Pilotanlage

Abb. 1 zeigt einen Schnitt durch das in der Pilotanlage verwendete Trennelement mit den Sollwerten der Betriebsbedingungen. Das als Ausgangsgas benutzte UF_6/He -Gemisch tritt mit der molaren Stromstärke L_0 , dem Vordruck p_0 und der Ausgangskonzentration N_0 in die Trenndüse ein⁶⁾. Dort wird es in eine leichte und eine schwere Fraktion aufgespalten, die mit den Stromstärken $\mathcal{D}_G L_0$ bzw. $(1 - \mathcal{D}_G)L_0$, den Drücken p_M bzw. p_K und den UF_6 -Konzentrationen N_M bzw. N_K getrennt abgesaugt werden. Das Gesamtabschälverhältnis \mathcal{D}_G ergibt sich dabei aus den UF_6 -Konzentrationen gemäß

$$\mathcal{D}_G = \frac{N_K - N_0}{N_K - N_M} \quad (1)$$

Daneben interessiert das partielle Abschälverhältnis des Urans

$$\mathcal{D}_U = \frac{N_M}{N_0} \mathcal{D}_G \quad (2)$$

Bei der Zusammenschaltung der Trennelemente in der Trennkaskade sind die mit unterschiedlichen U235-Gehalten anfallenden leichten und schweren Fraktionen so zusammenzuführen, daß sich nur Ströme mit gleichem U235-Gehalt vermischen⁷⁾. Bei der in Abb. 2 gezeigten Schaltung der Pilotanlage bedeutet dies, daß in allen Trennelementen das Uranabschälverhältnis \mathcal{D}_U auf den Wert 1/2 eingeregelt werden muß.

6) Im folgenden wird unter Konzentration stets der Molenbruch verstanden.

7) Vgl. z.B.: K. Cohen; The Theory of Isotope Separation as Applied to the Large Scale Production of U235, Mc Graw Hill, New York (1951).

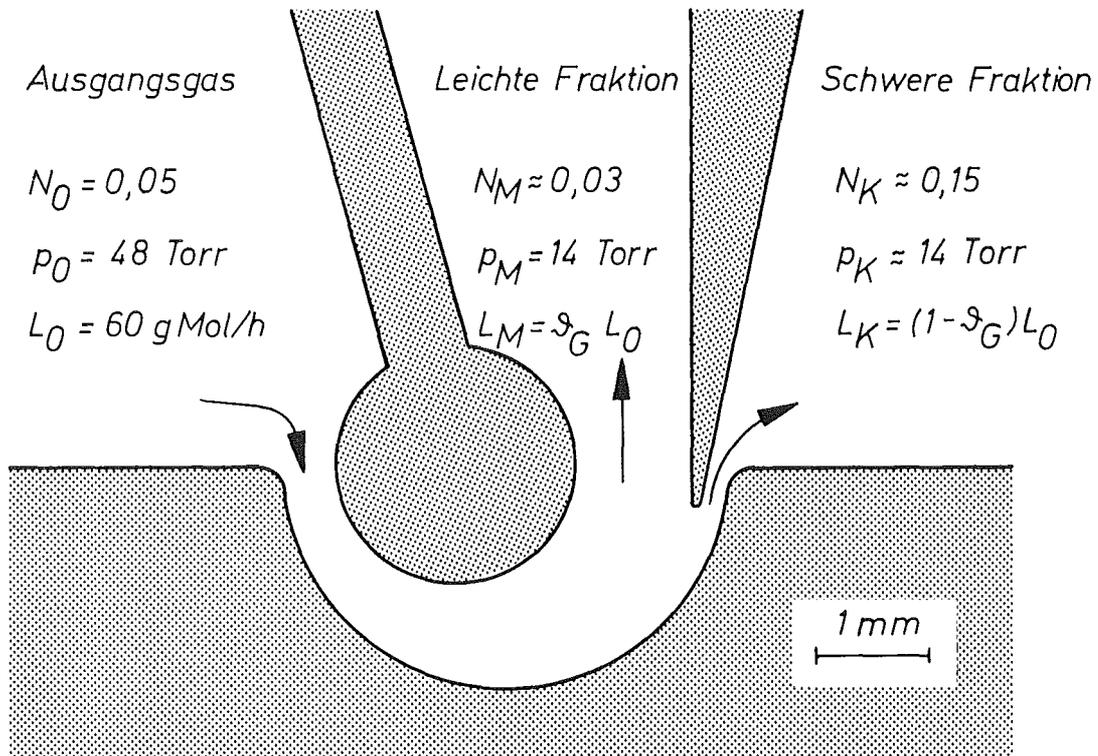


Abb. 1: Schnitt durch das in der Pilotanlage verwendete Trennelement mit den Sollwerten der Betriebsbedingungen. N_0 , N_M und N_K sind die UF_6 -Molenbrüche, p_0 , p_M und p_K die Drücke, L_0 , L_M und L_K die Stromstärken der drei Gasströme. Gesamtabschälverhältnis $\mathcal{S}_G \approx 0,83$.

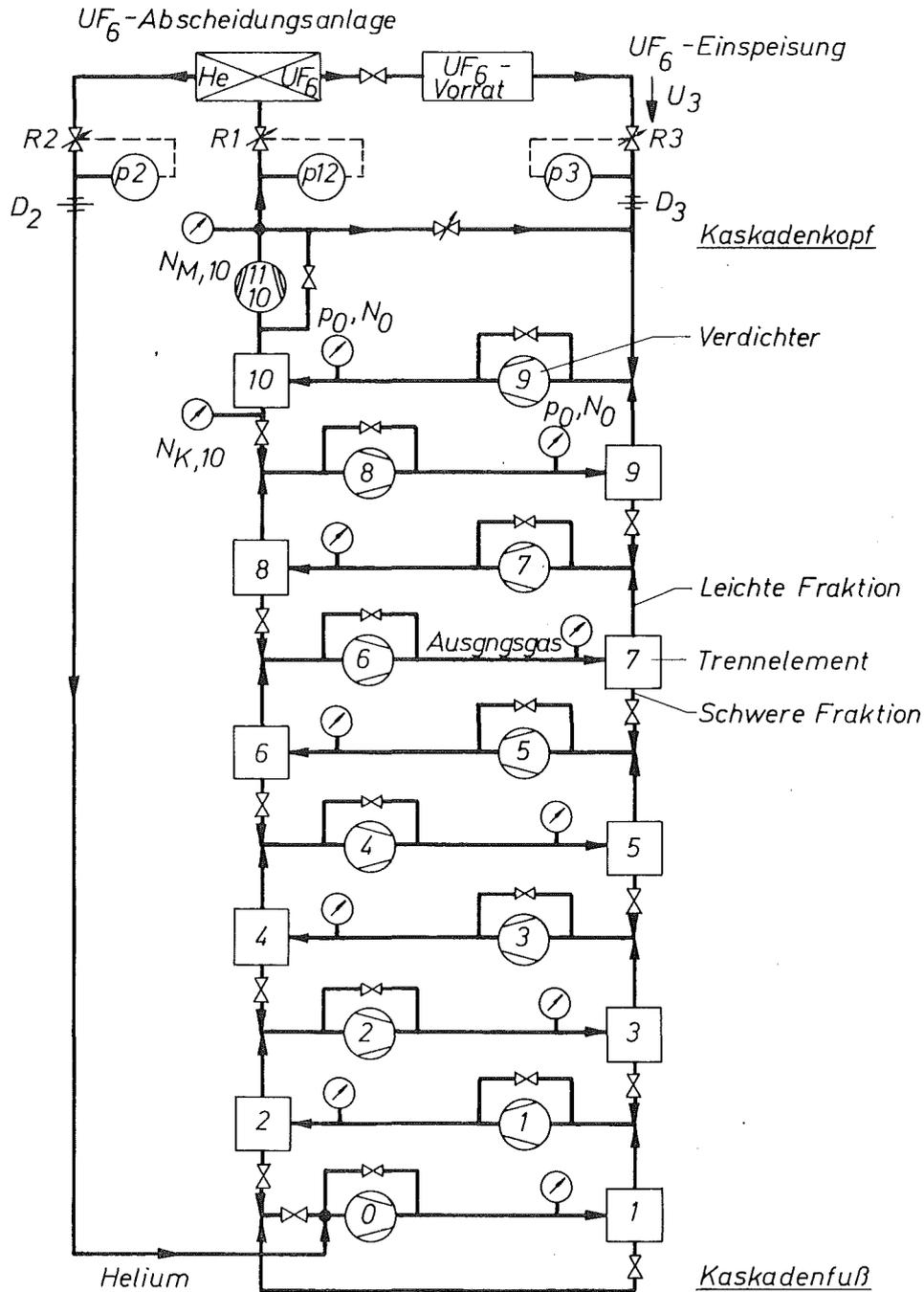


Abb. 2: Fließbild der Pilotanlage mit den bei den vorliegenden Untersuchungen benutzten Ventilen und Meßwertaufnehmern (D_2 und D_3 Meßblenden).

Der Einregelungsvorgang beginnt in der Stufe 10, wo \mathcal{D}_U mit den eingezeichneten Ventilen unter Beobachtung der UF_6 -Konzentrationen $N_{O,10}$, $N_{M,10}$, $N_{K,10}$ und des Düsenvordrucks $P_{O,10}$ eingestellt wird. Für die anschließende Einregelung der \mathcal{D}_U -Werte der übrigen Stufen genügt die Kenntnis der Drücke und UF_6 -Konzentrationen in den Ausgangsgasen⁸⁾.

Für die Einregelung und die Überwachung des Betriebes der Pilotanlage werden also 12 Konzentrationsmeßeinrichtungen benötigt, von denen 10 bei einem Druck in der Umgebung von 50 Torr und einer UF_6 -Konzentration in der Umgebung von 5 Mol-% arbeiten. Die Arbeitsbereiche der beiden übrigen liegen um 60 Torr und 3 Mol-% bzw. 15 Torr und 15 Mol-%. Eine Untersuchung der Fehlerfortpflanzung zeigt, daß für die angestrebte Einregelungsgenauigkeit der \mathcal{D}_U -Werte mit einem maximalen Fehler von $\pm 2\%$ eine maximale Meßunsicherheit der UF_6 -Molkonzentration von $\pm 0,02$ Mol-% zugelassen werden kann.

2.2 Berechnung der Konzentrationsabhängigkeit der Wärmeleitfähigkeit von UF_6 /He-Gemischen

Da experimentelle Werte für die Wärmeleitfähigkeit von UF_6 /He-Gemischen nicht bekannt sind, wurde zur Abschätzung der erreichbaren Meßempfindlichkeit die Konzentrationsabhängigkeit der Wärmeleitfähigkeit des Gemisches nach der von Hirschfelder und Mitarbeitern⁹⁾ angegebenen Methode berechnet. Es wurde dabei das modifizierte Buckingham-Potential zugrunde gelegt, das im Falle der reinen Gase sehr gut mit dem experimentellen Befund übereinstimmende Leitfähigkeitswerte liefert. Dies geht aus dem Vergleich in Tabelle 1 hervor, aus welcher auch die verwendeten Parameterwerte der beiden Gase entnommen werden können.

8) R. Schütte, D. Seidel, W. Fritz, D. Plesch, G. Linder, H.J. Fritsch; Chem. Ing. Technik 44, 1099 (1972)

9) J.O. Hirschfelder, C.F. Curtiss, R.B. Bird; Molecular Theory of Gases and Liquids; Wiley & Sons, verbesserte Ausgabe 1965, Seite 534 ff.

Parameter	He ¹⁰⁾	UF ₆ ¹¹⁾	He/UF ₆
Red.Potentialtopftiefe \mathcal{E}/k (K)	7,5628	582	$\mathcal{E}_{12} = \sqrt{\mathcal{E}_1 \mathcal{E}_2}$
Moleküldurchmesser σ (Å)	2,8038	4,858	$\sigma_{12} = (\sigma_1 + \sigma_2)/2$
Steilheitsmaß s	12,4	14,75	$s_{12} = (s_1 + s_2)/2$
Wärmeleitfähigkeit (24°C)			
a) theoretisch ($10^6 \text{ cal/cm s } ^\circ\text{C}$)	362	15,85	
b) experimentell (")	359	16,0 ¹²⁾	

Tabelle 1: Daten zur Berechnung der Wärmeleitfähigkeit von He/UF₆-Gemischen nach dem modifizierten Buckingham-Potential und Vergleich der theoretisch und experimentell ermittelten Wärmeleitfähigkeitswerte der reinen Gase.

Das Ergebnis ist in Abb. 3 dargestellt. Innerhalb des interessierenden Konzentrationsbereiches 0...20 Mol-% fällt die Wärmeleitfähigkeit um mehr als die Hälfte ihres am Bereichs-Nullpunkt vorhandenen Wertes ab. Damit steht eine ausreichende Empfindlichkeitsreserve zur Erfüllung der oben aufgestellten Anforderungen zur Verfügung.

10) J.E. Kilpatrick, W.E. Keller, E.F. Hammel;
Phys. Rev. 97, 9 (1955)

11) P. Kirch, R. Schütte; Zeitsch. Naturforschg. 22a, 1532 (1967)

12) De Witt; USAEC-Report GAT-280 (1960)

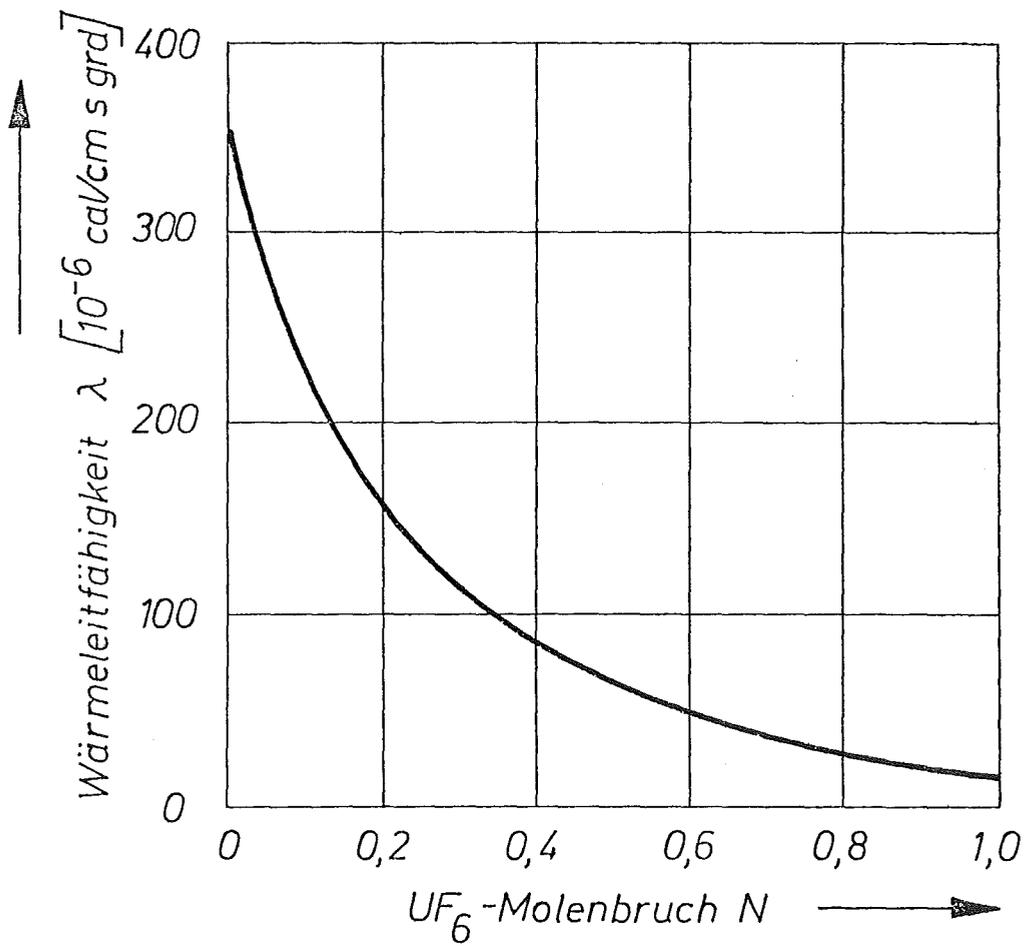


Abb. 3: Mit dem modifizierten Buckingham-Potential berechnete Konzentrationsabhängigkeit der Wärmeleitfähigkeit von UF_6/He -Gemischen bei 24°C .

2.3 Dimensionierung des Heizelementes

Ausgangspunkt der Entwicklung war die bekannte Hitzdraht-Anordnung¹³⁾. Die Meßzelle besteht dabei üblicherweise aus einer kreiszylindrischen Meßkammer, in deren Achse ein elektrisch geheizter Draht ausgespannt ist, welcher den aktiven Zweig einer Widerstands-Meßbrücke bildet. Der Draht dient gleichzeitig als Wärmequelle und als Widerstandsthermometer. Wenn das Verhältnis von gaskinetischer freier Weglänge zu Drahtdurchmesser (Knudsen-Zahl Kn) genügend klein ist und Energieverluste durch Strahlung, Konvektion und Wärmeleitung längs des Drahtes vernachlässigt werden können, läßt sich die Wärmeleitfähigkeit λ des Gemisches und damit seine Zusammensetzung anhand der Beziehung

$$P_{el} \sim Q_o = G \lambda (T_1 - T_2) \quad (3)$$

$$\text{mit } G = 2 \pi l / \ln(D/d) \quad (4)$$

ermitteln (P_{el} dem Draht zugeführte elektrische Leistung, Q_o vom Draht abgegebener Wärmestrom, G Geometriefaktor, l Drahtlänge, d und T_1 Durchmesser bzw. Temperatur des Drahtes, D und T_2 Durchmesser bzw. Wandtemperatur der Meßkammer). Ist die erste Voraussetzung nicht erfüllt, d.h., der Gasdruck zu klein, gilt näherungsweise¹⁴⁾

$$\frac{Q}{Q_o} = \left[1 + \frac{15}{2} \frac{Kn}{a} / \ln(D/d) \right]^{-1} \quad (5)$$

(a thermischer Akkommodationskoeffizient des Gases am Draht).

13) Vgl. z.B. W.C. Gardiner, K. Schäfer; Zscht. Elektrochemie 60, 588 (1956)

14) Nach L. Lees, C.Y. Liu; Phys. Fluids 5, 1137 (1962), sowie F.C. Hurlbut; Phys. Fluids 7, 904 (1964). Gl. (5) wurde bei einatomigen Gasen, großen Durchmesserhältnissen $D/d \gg 1$ und kleinen Temperaturdifferenzen über den ganzen Knudsen-Zahlbereich experimentell bestätigt: A. Dybbs, G.S. Springer; Phys. Fluids 8, 1946 (1965)

In Abb. 4 ist der Verlauf von Gl. (5) für die Akkommodationskoeffizienten $a = 1,0$ und $a = 0,4$ dargestellt. Außerdem ist gestrichelt die bei höheren Drücken zu erwartende Zunahme des Wärmeübergangs durch Konvektion qualitativ eingezeichnet.

Zur Bestimmung des Drahtdurchmessers, bei dem die durch Verdünnungseffekte bedingte Druckabhängigkeit des Wärmestromes genügend klein ist, wird die Gl. (5) auf zwei durch Druck p und Wärmestrom Q ausgezeichnete Kurvenpunkte A_1 und A_2 angesetzt und eine maximale relative Wärmestromänderung $v = (Q_1 - Q_2)/Q_1$ im Druckintervall $p_1 - p_2$ vorgeschrieben. Aus der so entstehenden Formel für den Ausdruck $d \cdot \ln(D/d)$ wird die minimale Drahtstärke d_{\min} ermittelt. Man erhält z.B. für Helium bei 300 K, den Drücken $p_1 = 50$ Torr und $p_2 = 30$ Torr, $v = 2\%$ und der Meßkammerweite $D = 30$ mm eine Drahtstärke d_{\min} von $0,45$ mm¹⁵⁾.

Ein 10 cm langer Nickeldraht dieses Durchmessers besitzt bei 20°C einen elektrischen Widerstand von nur ca. 0,05 Ohm. Der relativ niedere Widerstand bzw. der dadurch bedingte relativ große Heizstrom stellen für eine Widerstandsmeßbrücke einen erheblichen technischen Nachteil dar. Daher wurde als Heizelement eine Drahtwendel benutzt. Nach einigen Vorversuchen wurden für die Drahtwendel die in Tabelle 2 angegebenen Daten festgelegt. Die Tabelle enthält außerdem die Abmessungen der Meßkammer, die mit Rücksicht auf ein kleines Kammervolumen und auf weitgehende Unterdrückung der Konvektion so klein wie möglich gewählt wurde.

15) Dabei wurde $a = 0,385$ für He an gasbeladenen Nickeloberflächen eingesetzt: I. Amdur, L.A. Guildner; J. Am. Chem. Soc. 79, 311 (1957). Der Akkommodationskoeffizient von UF_6/He -Gemischen an Metalloberflächen ist nicht bekannt. Da bei reinen Gasen allgemein eine Zunahme von a mit größer werdendem Molekulargewicht des Gases zu beobachten ist, wurde angenommen, daß $a(UF_6/He)$ zumindest nicht wesentlich unter $a(He)$ liegt.

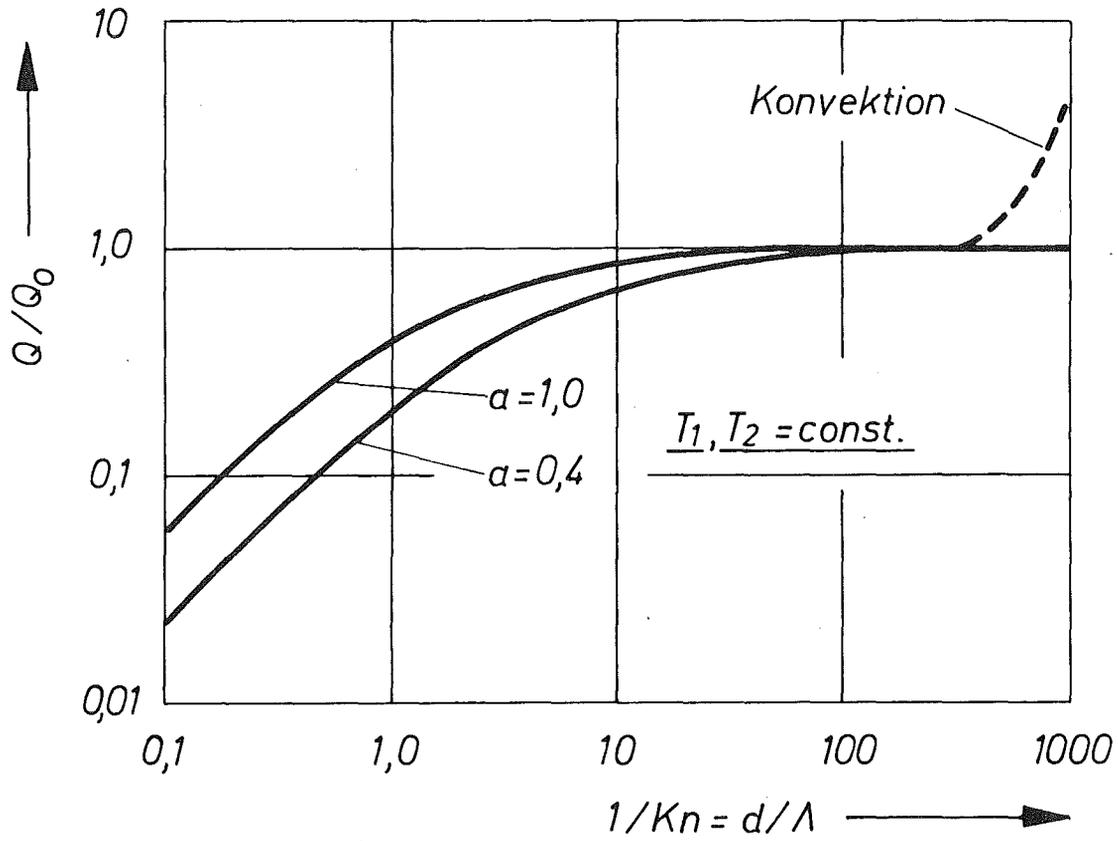


Abb. 4: Grundsätzlicher Verlauf der Wärmeabgabe des Drahtes einer Wärmeleitzone in Abhängigkeit von der mit dem Drahtdurchmesser gebildeten Knudsen-Zahl Kn für verschiedene Akkommodationskoeffizienten a nach Gl. (5); $T_1, T_2 = \text{const}$, $D/d = 100$.

Meßkammer	Lichte Weite	18 mm
	Länge	114 mm
Drahtwendel	Durchmesser	4 mm
	Länge	80 mm
	Ganghöhe	0,4 mm
	Drahtstärke	0,15 mm
	Drahtlänge	2510 mm

Tabelle 2: Abmessungen der Konzentrationsmeßzelle

Probemessungen mit Inertgasen ergaben, daß die Wendel im Kontinuumsbereich der Wärmeleitung wie ein Zylinder gleichen Durchmessers, hinsichtlich der Druckabhängigkeit bei niederen Drücken wie ein Zylinder mit 2 mm Durchmesser wirkt. Die Benutzung der Wendel hat also trotz kleinerer Drahtstärke eine wesentliche Verminderung der Druckabhängigkeit erbracht.

2.4 Aufbau und Herstellung der Meßzellen

Abb. 5 zeigt die für die Pilotanlage bestimmte Meßzelle im Schnitt. Sie besteht aus dem Meßkammergehäuse mit Kühlmantel, der an dem Deckelflansch montierten Drahtwendel und einem Aufsatz, der die elektrischen Bauelemente der Meßbrücke und die Anschlußbuchse aufnimmt. Das aus dem Vollen gedrehte Gehäuse aus Leichtmetall AlMg3 mit einer Wandstärke von 2 mm trägt außen mehrere radiale Rippen, welche zur Führung des Kühlwassers abwechselnd auf einander entgegengesetzten Seiten abgefräst sind. Das Mantelrohr aus rostfreiem Edelstahl wurde mit Epoxydharz auf dem Gehäuse festgeklebt. Die Kammer besitzt einen axialen Gasanschluß mit Außengewinde zum Aufschrauben der Überwurfmutter eines mit Teflon gedichteten Anschlußnippels. Der Diffusionsweg des Gases vom Anschluß bis in die Kammer wurde so kurz und so weit wie möglich gehalten.

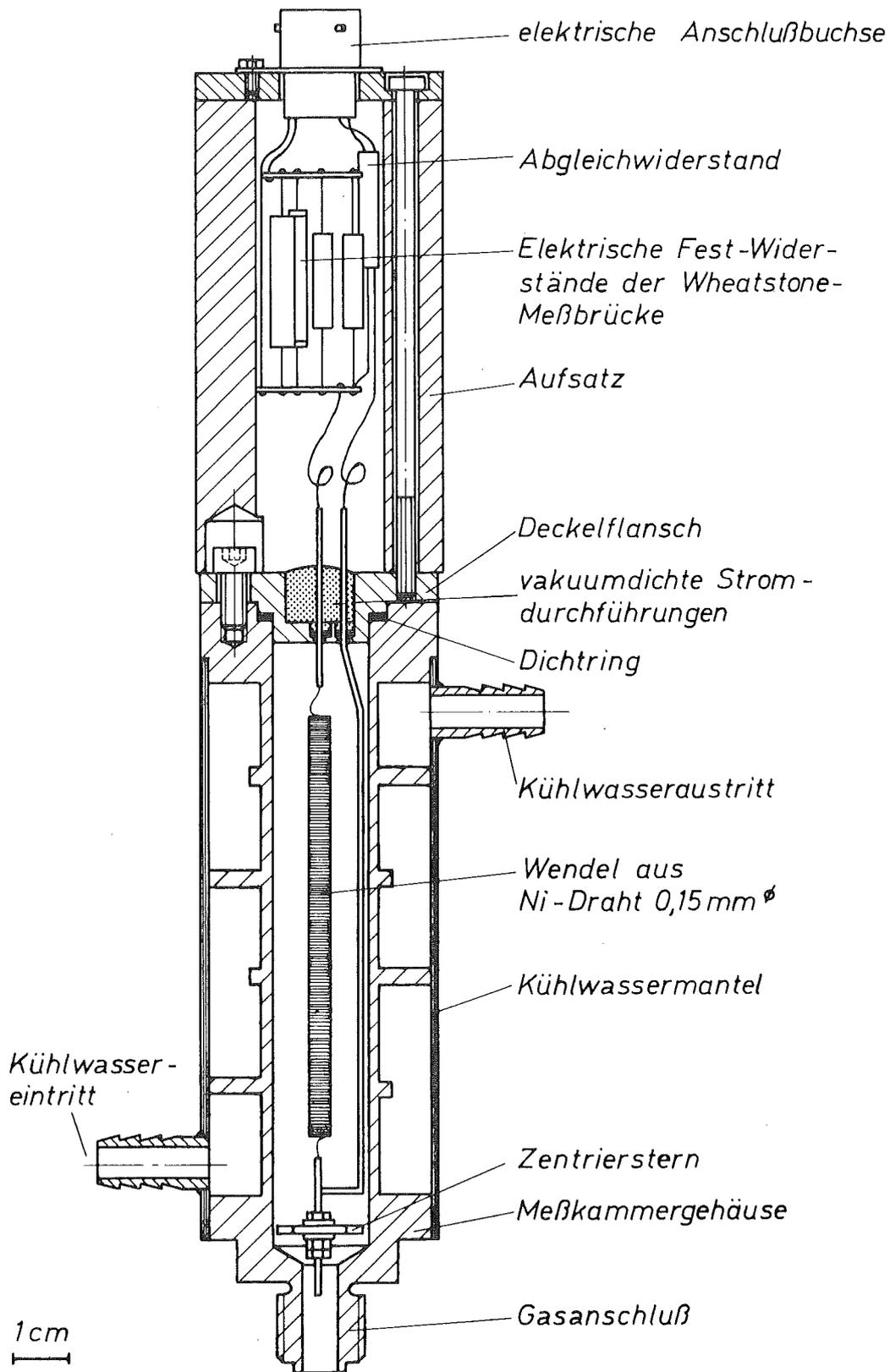


Abb. 5: Aufbau der Meßzelle

Der Deckelflansch aus AlMg3 ist durch vier Schrauben mit dem Gehäuse verbunden. Ein gefangener Dichtring aus Teflon sorgt für die Abdichtung gegen die Atmosphäre. Die Wendel wird von 1 mm starken Nickeldrähten gehalten. Der längere von beiden trägt einen Zentrierstern aus Teflon. Zur Herstellung vakuumdichter, isolierter Stromdurchführungen wurden die Nickeldrähte mit stramm sitzenden Teflonpackungen in Bohrungen des Deckelflansches eingedrückt, welche von außen mit einem Gießharz überschichtet wurden¹⁶⁾.

Die elektrischen Festwiderstände der Wheatstone-Meßbrücke, deren einer Zweig die Heizwendel ist, sind in einem Aufsatz aus Kunststoff untergebracht. Die verwendeten Metalloxydschichtwiderstände haben einen besonders kleinen Temperaturkoeffizienten ($TK = 50 \cdot 10^{-6} / ^\circ C$). Die Aluminiumplatte, welche die elektrische Anschlußbuchse trägt, wird zusammen mit dem Aufsatz durch vier langschäftige Metallschrauben auf dem Deckelflansch montiert.

Die Wendel werden aus kaltgezogenem, harten Reinnickeldraht¹⁷⁾ an einer Spulenwickelmaschine auf Dorne aus Silberstahl gewickelt. Auf diesen Dornen werden sie mit Azeton im Ultraschallbad intensiv gereinigt und sodann einer Wärmebehandlung in Schutzgasatmosphäre unterworfen, um die durch Kaltverformung entstandenen mechanischen Spannungen im Draht auszugleichen. Dabei müssen die Elastizität und die Abmessungen der Wendel erhalten bleiben. Hierzu muß die experimentell bestimmte optimale Glüh Temperatur von $520^\circ C$ während einer Glühzeit von 0,5 Stunden auf etwa $\pm 10^\circ C$ eingehalten werden. Anschließend erfolgt die Befestigung der Wendel an den Halte-drähten durch Punktschweißung.

16) Die in der Vakuumtechnik üblichen glasisolierten Stromdurchführungen können wegen mangelnder Beständigkeit gegenüber UF_6 und HF nicht eingesetzt werden. Die ausreichende UF_6 -Beständigkeit des zur Abdichtung verwendeten Zweikomponentenklebers "Uhu plus" wurde in einem Dauertest experimentell bewiesen.

17) Hersteller: Vereinigte Deutsche Nickelwerke, Schwerte/Ruhr

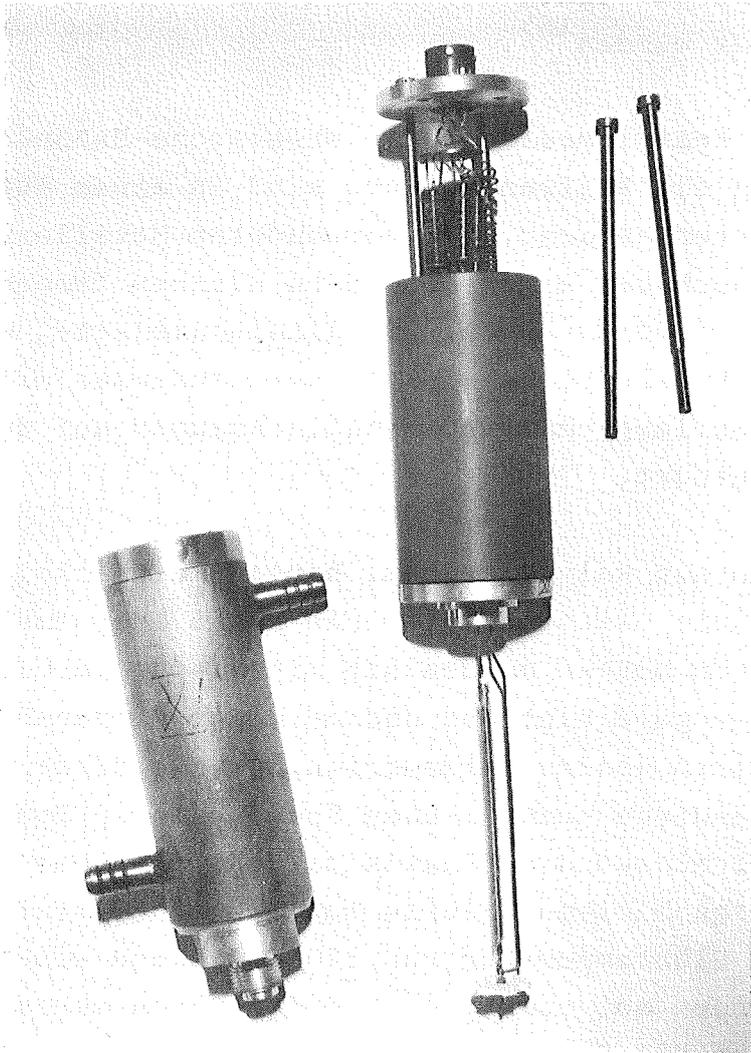


Abb. 6: Ansicht einer geöffneten Meßzelle (vgl. Abb. 5)

Die Ansicht einer geöffneten Meßzelle ist in Abb. 6 wiedergegeben. Es wurden 25 Exemplare in der Institutswerkstatt hergestellt. Die Endmontage schließt neben der Reinigung und Trocknung aller mediumberührten Teile auch die Lecksuche mit einem He-Massenspektrometer ein.

2.5 Anschluß der Meßzellen an die Pilotanlage und Eichung

Der elektrische Stromlaufplan eines Konzentrations-Meßkanals der Pilotanlage ist in Abb. 7 dargestellt. Die Registrierung¹⁸⁾ und Anzeige¹⁹⁾ der Meßsignale sowie der Nullpunkts- und Empfindlichkeitsabgleich erfolgen im Kontrollraum. Zur gemeinsamen Stromversorgung der Meßzellen wird ein hochwertiges Gleichspannungsnetzgerät²⁰⁾ verwendet. Die Ausgangsspannung dieses Gerätes, an deren Konstanz mit Rücksicht auf eine gute Stabilität der Meßwertanzeige hohe Anforderungen zu stellen sind, wird mit einem externen Programmierwiderstand bei kleiner Steuerleistung fein eingestellt. Jede Meßzelle nimmt eine Leistung von 1,6 W auf, die zu gleichen Teilen im Vorwiderstand und im Hezelement verbraucht werden. Zum Schutz der Wendeln gegen Durchbrennen oder Ausglühen beim Evakuieren des Verfahrenskreislaufes ist eine automatische Abschalteneinrichtung vorgesehen. Ein Grenzwertgeber in einem der zur Registrierung der Gasdrücke benutzten Punktschreiber schaltet bei Unterschreiten eines vorgegebenen Druckwertes die Stromversorgung der Meßzellen mit Hilfe eines Kontaktes am Programmier-eingang des Netzgerätes ab.

18) Zwölf-Kanal-Punktschreiber CLP 21; Meßbereich 0...50 mV, Genauigkeitsklasse 0,25. Hersteller: Fa. AEG

19) Digitalvoltmeter LM 1420.2; vierstellige Anzeige im gewählten Meßbereich 200 mV, Meßgenauigkeit $\pm 0,05$ mV. Hersteller: Fa. Solartron, England.

20) Gleichspannung-Netzgerät AS 1412; Stabilisierungsfaktor 10 000:1, Temperaturkoeffizient 0,01 %/°C. Hersteller: Fa. Solartron, England.

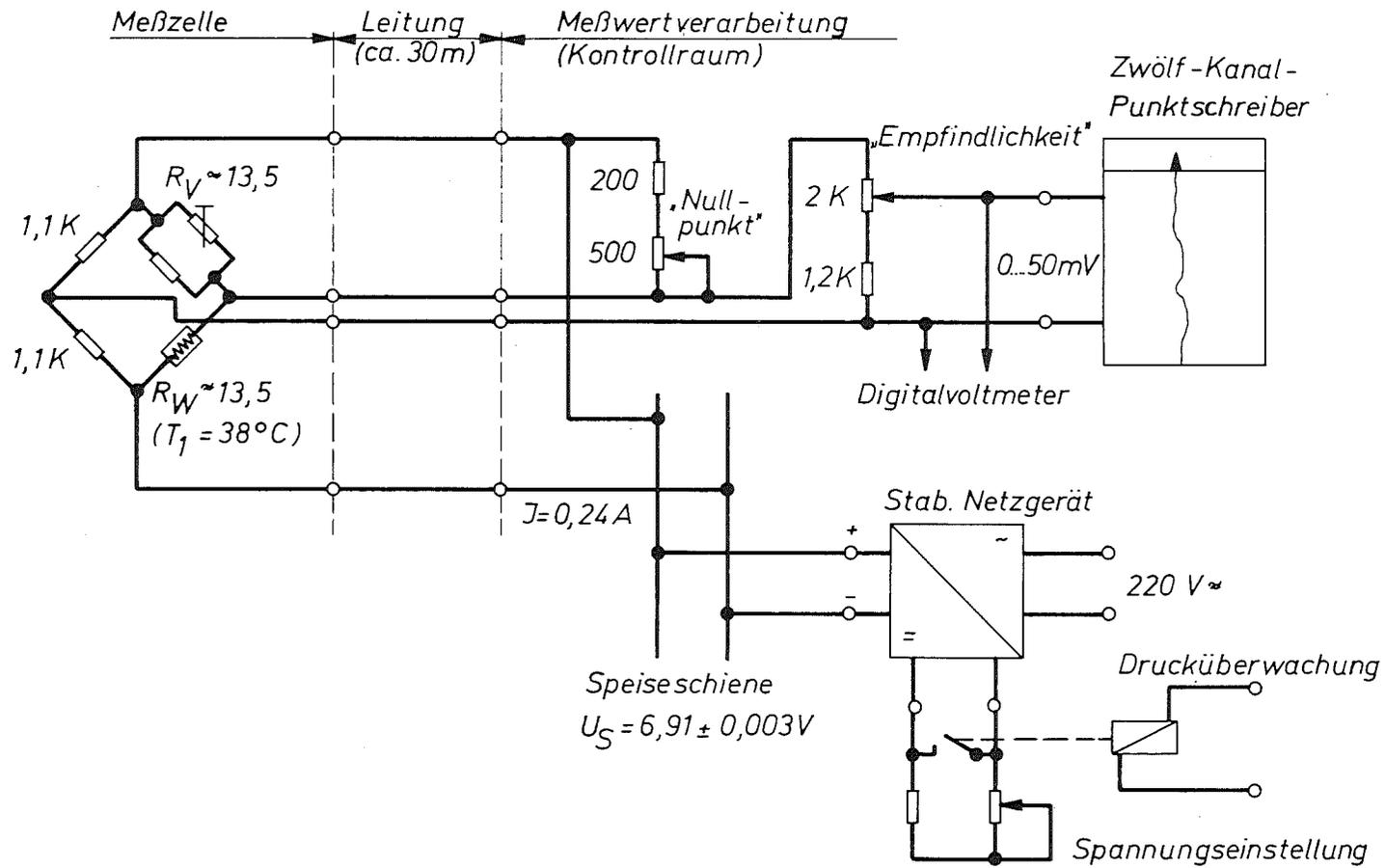


Abb. 7: Stromlaufplan eines Konzentrationsmeßkanals der Pilotanlage (R_V Vorwiderstand, R_W Heizwendelwiderstand)

Die Meßzellen sind über kurze Nebenschlußleitungen an die Verfahrensgasleitungen der Pilotanlage angeschlossen. Dadurch wird sichergestellt, daß die Anschlußbohrungen der Zellen ständig mit frischem Gas gespült werden. Ohne diese Maßnahme träte infolge des langen Diffusionsweges durch das vorgeschaltete Ventil eine untragbar lange Einstelldauer der Konzentrationsanzeige auf, wie Abb. 8 zeigt. Die verbleibende Relaxationszeit von 1 Minute wirkt sich auf die Überwachung des Anlagenbetriebes nicht störend aus, da die Übergangszeiten der Kaskade größer sind.

Hinsichtlich des Kühlmittelflusses sind die Zellen in einer Umlaufleitung in Reihe geschaltet. Die Leitungen aus PVC-Schlauch wie auch die Meßzellen selbst sind mit dickwandigen Moltoprenschaum-Rohren gegen die Umgebung thermisch isoliert. Das mit Korrosionsschutzmittel versehene Kühlwasser wird von einem Laborthermostaten²¹⁾ im geschlossenen Kreislauf umgepumpt. Die Vorlauftemperatur des Kühlmittels von 24°C kann auch bei schwankender Raumtemperatur über mehrere Stunden auf $\pm 0,01^\circ\text{C}$ konstant gehalten werden. In Abb. 9 ist ein Ausschnitt der Pilotanlage wiedergegeben, in welchem zwei der isolierten und mit der Kühlmittelleitung verbundenen Meßzellen zu erkennen sind.

Die Meßzellen werden gemeinsam unter Betriebsbedingungen an der Pilotanlage geeicht. Hierzu wird die Anlage zwischen Kopf- und Fußende kurzgeschlossen und eine Trennung in den einzelnen Trennelementen durch Schließen der Ventile in den Leitungen der schweren Fraktion unterbunden. Das jeweilige Eichgemisch wird so lange durch die Anlage gepumpt, bis sich an den Meßorten eine einheitliche stationäre Gaszusammensetzung eingestellt hat. Am Beginn der Eichung wird bei Füllung mit reinem Helium durch Brückenabgleich in allen Meßkanälen der Nullpunkt eingestellt²²⁾.

21) Auf kleinere Heizleistung umgebauter Ultrathermostat Typ Nbe mit Pt-Widerstandsfühler IP50 und Sollwertgeber Typ 41 der Fa. Haake, Karlsruhe.

22) Den Herren J. Dröge und H. Rupprecht sei für ihre Arbeit bei der Vorbereitung und Durchführung dieser und weiterer Versuche gedankt.

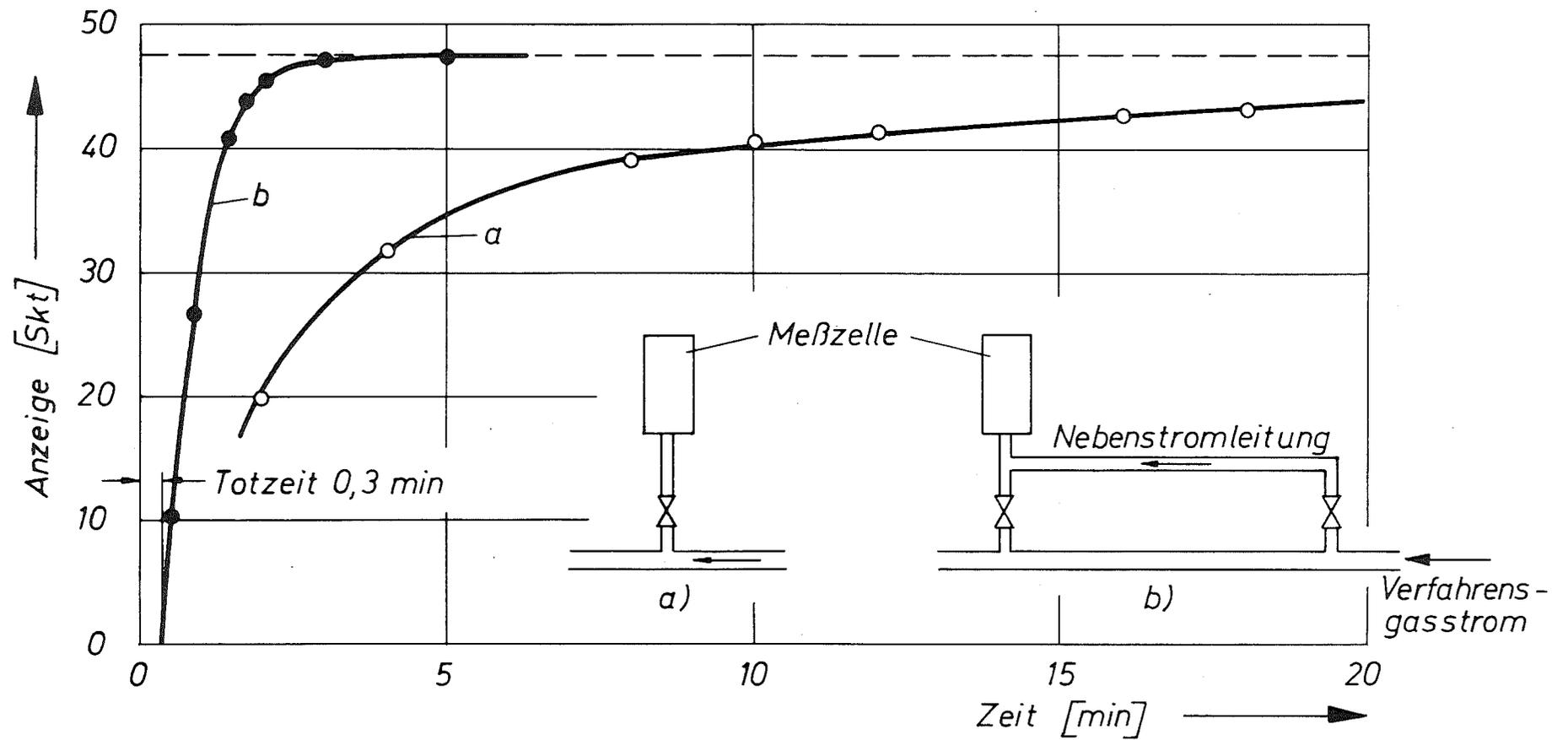


Abb. 8: Zeitabhängigkeit der Konzentrationsanzeige nach einer sprungartigen Änderung des UF_6 -Gehaltes in einem Verfahrensgasstrom der Pilotanlage bei verschiedener Ankopplung der Meßzelle.

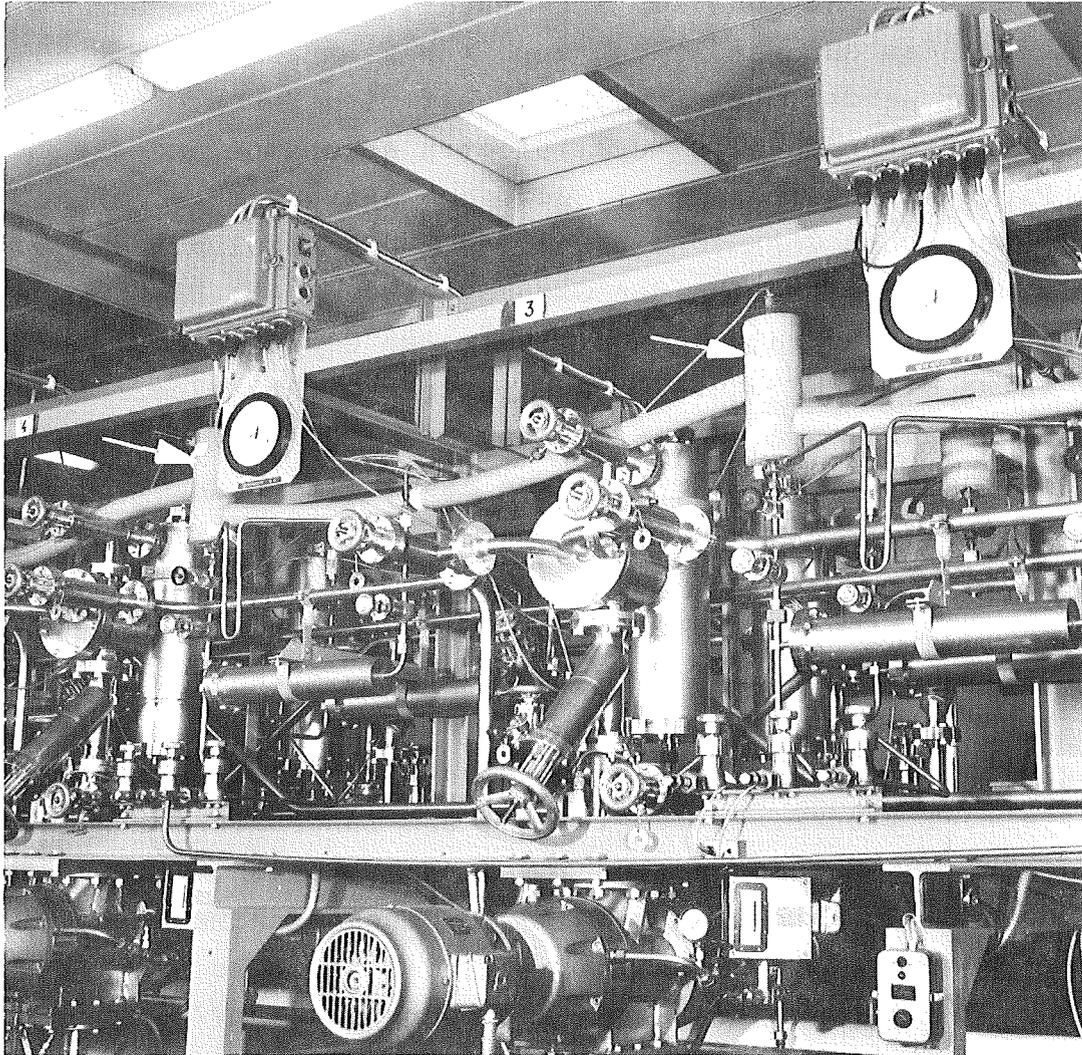


Abb. 9: Teilansicht der Pilotanlage mit 2 Meßzellen (Pfeile)

Zur genauen Bestimmung der Zusammensetzung der Eichgemische sind parallel zu den Verfahrensgasleitungen der Trenndüsenkaskade Probeentnahmebehälter angebracht, die während der Versuche vom Gas durchspült und zur Probenentnahme vom Kreislauf isoliert werden. Der Behälterinhalt wird durch eine mit Flüssigstickstoff gekühlte Metallpipette abgepumpt und das in der Pipette ausgefrorene UF_6 gewogen. Aus dem UF_6 -Gewicht, dem ursprünglichen Gesamtdruck und dem Behältervolumen wird dann die UF_6 -Konzentration der Gasprobe berechnet. Die gravimetrische Eichung hat wegen des extremen Gewichtsverhältnisses (etwa 0,1 g UF_6 auf 700 g Pipettengewicht) eine relativ große Fehlergrenze. Zur Erzielung einer ausreichenden Genauigkeit müssen die gravimetrischen Bestimmungen daher mehrfach wiederholt werden.

In der Abb. 10 sind die Ergebnisse von Eichmessungen im Bereich 0...10 Mol-% UF_6 aufgetragen. Jeder Punkt entspricht dem Mittel der gravimetrischen Werte von 5 Proben, die Balkenlänge gibt die maximale Abweichung der Einzelmessungen vom Mittelwert wieder. Es zeigt sich, daß innerhalb der Fehlergrenze der Eichmessungen eine lineare Beziehung zwischen der UF_6 -Konzentration und der Ausgangsspannung der Meßbrücke besteht. Die Empfindlichkeit der Meßzelle beträgt nach Abb. 10 unter den gewählten Bedingungen 4,8 mV/Mol-% UF_6 . Bei Anzeige der Ausgangsspannung mit dem Digitalvoltmeter kann noch eine Konzentrationsänderung von 0,01 Mol-% nachgewiesen werden. Die Meßzellen für die Konzentrationen in den beiden Fraktionen der 10. Stufe, $N_{M,10}$ und $N_{K,10}$, wurden an der Pilotanlage bei ihrem jeweiligen Arbeitsdruck geeicht.

Die Abhängigkeit der Ausgangsspannung vom Druck p ist ebenfalls aus Abb. 10 zu ersehen. Im Bereich 40 ÷ 60 Torr beträgt der Druckkoeffizient maximal -0,04 mV/Torr. Er ist damit so gering, daß sich bei vielen Messungen eine Korrektur erübrigt. Für längerdauernde Versuchsreihen mit weiter abliegenden Drücken wird zweckmäßigerweise eine Eichung beim mittleren Arbeitsdruck vorgenommen. Die Abhängigkeiten von den beiden

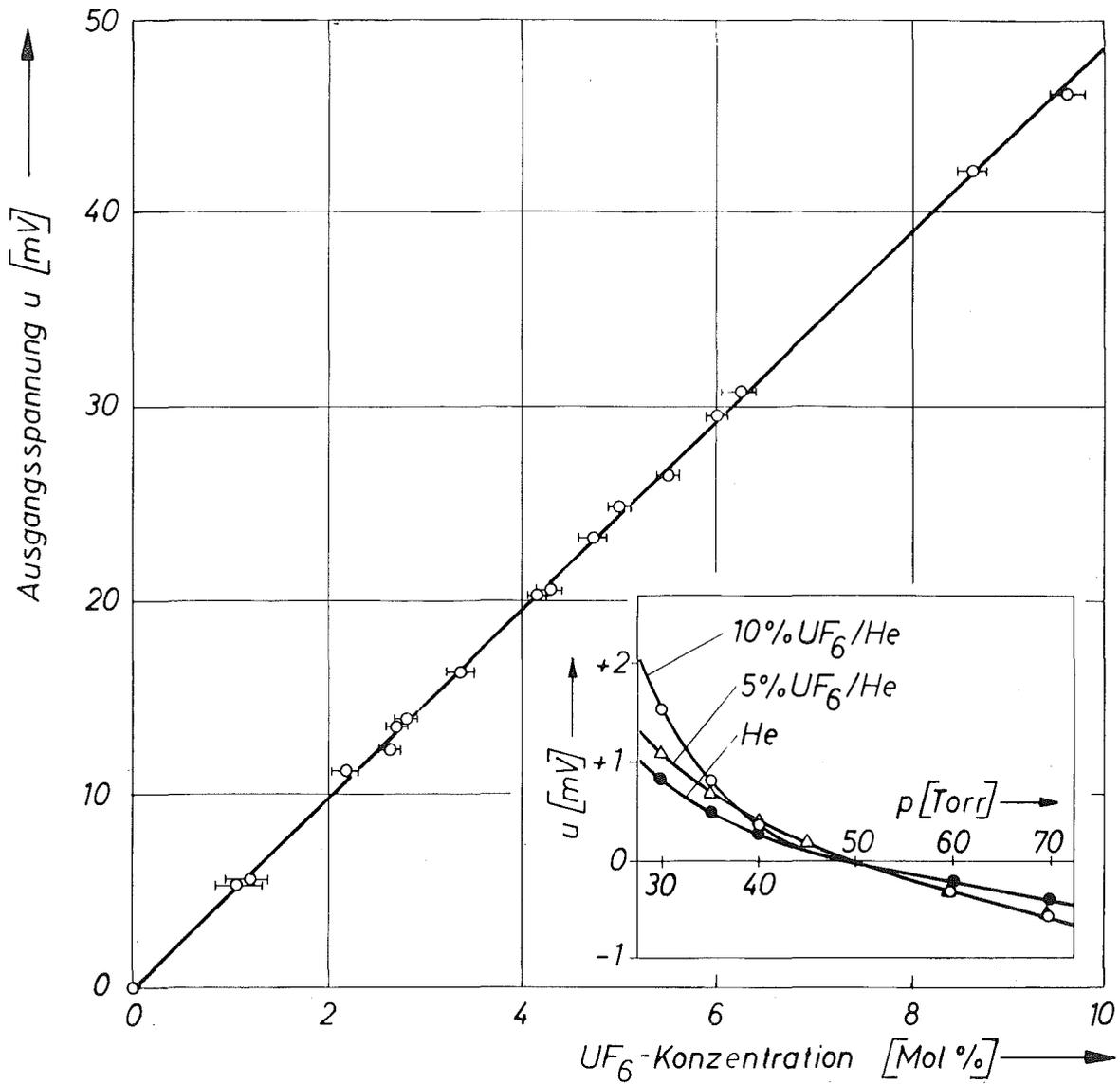


Abb. 10: Ausgangsspannung der Meßbrücke in Abhängigkeit von der UF_6 -Konzentration und vom Druck des Verfahrensgases bei den gewählten Arbeitsbedingungen (Speisespannung $U_s = 6,91$ V, Temperaturen $T_2 = 24^\circ C$ und $T_1 = ca. 38 \div 46^\circ C$).

anderen Einflußgrößen Speisespannung und Kühlwassertemperatur wurden experimentell zu 0,035 mV/mV und 0,05 mV/0,01°C ermittelt. Ohne dauernde Nachregelung von Hand betragen die normalen Schwankungen dieser Größen ± 3 mV bzw. $\pm 0,01^\circ\text{C}$, so daß die Konzentrationsanzeige während eines Versuchstages innerhalb einer Fehlergrenze von $\pm 0,03$ Mol-% konstant bleibt.

2.6 Einfluß der Thermodiffusion

Bei der Untersuchung der UF_6/He -Gemische ist aufgrund des radialen Temperaturgefälles eine teilweise radiale Entmischung von He und UF_6 durch Thermodiffusion zu erwarten, welche die effektive Wärmeleitfähigkeit merklich verändern kann. Der radiale Konzentrationsgradient stört jedoch primär nicht, da er druckunabhängig ist, sich relativ schnell einstellt und bei der Eichung mit erfaßt wird. Die Konvektionsströmung kann den Thermodiffusionseffekt jedoch wie in einem Trennrohr²³⁾ verstärken und zu einer vertikalen, druckabhängigen Entmischung mit längerer Einstelldauer führen. Da am unten liegenden Gasanschluß der Zelle die Meßgaskonzentration wegen des relativ großen Volumens der Pilotanlage praktisch erhalten bleibt, ist in der Zelle selbst mit einer Anreicherung von Helium zu rechnen.

Zur Untersuchung der Frage, ob unter den in der Pilotanlage herrschenden Betriebsbedingungen mit einer Störung der Konzentrationsmessung durch den Trennrohreffekt zu rechnen ist, wurden nach Abb. 11 zwei Meßzellen über ein Rohrkreuzstück konaxial untereinander an die Pilotanlage angeschlossen. In der oberen Zelle A ist eine Verarmung, in der unteren Zelle eine Anreicherung von UF_6 zu erwarten. Die Abbildung zeigt, daß in dem verwendeten 12 % UF_6/He -Gemisch bei höheren Drücken beträchtliche Konzentrationsverschiebungen mit einer Zeitkon-

23) K. Clusius, G. Dickel, Zeitsch. phys. Chemie B 44, 397, 451 (1939)

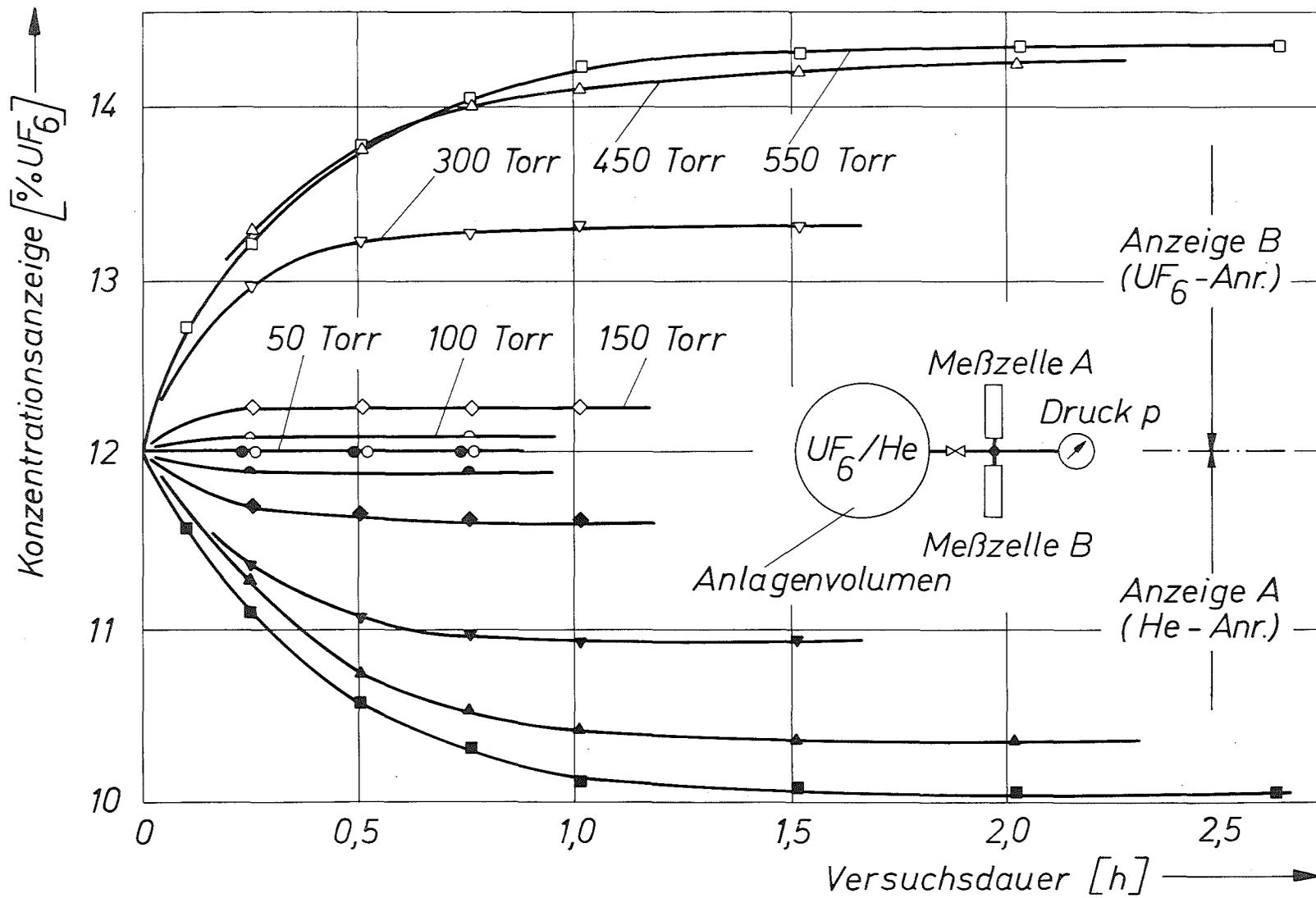


Abb. 11: Durch Thermodiffusion verursachte zeitliche Änderung der Konzentrationsanzeige zweier Meßzellen, die stehend (A) bzw. hängend (B) mit einer 12 Mol-% UF₆/He-Gemisch führenden Verfahrensgasleitung verbunden sind, in Abhängigkeit vom Gasdruck.

stante von etwa 0,5 Stunden auftreten. Bei den in der Pilotanlage herrschenden Drücken in der Nähe und unterhalb von 50 Torr und der vorgesehenen, für die Konvektion ungünstigeren UF_6 -Konzentration von nur 5 Mol-% kann dieser Effekt jedoch mit Sicherheit vernachlässigt werden.

3. Erprobung der Meßzellen an der Pilotanlage

3.1 Einregelung der Uran-Abschälverhältnisse

Bei der Einregelung einer Trenndüsenkaskade mit dem Fließbild nach Abb. 2 kommt es darauf an, in allen Stufen beim gleichen Düsendurchsatz und der vorgesehenen UF_6 -Konzentration $N_O=0,05$ im Ausgangsgas die Uran-Abschälverhältnisse mit ausreichender Genauigkeit auf den Wert $\mathcal{D}_U = 0.5$ einzustellen. Der Wert in der Stufe 10 ergibt sich nach Gl.(1) und Gl.(2) unmittelbar aus den Meßwerten $N_{O,10}$, $N_{M,10}$ und $N_{K,10}$. Die Uran-Abschälverhältnisse der übrigen Stufen (Stufennummer s) lassen sich unter Ausnutzung der Materialstrombilanzen jeder Trenndüse aus den Düsenvordrücken $p_O(s)$ und den Meßwerten der UF_6 -Konzentrationen $N_O(s)$ sukzessiv berechnen⁸⁾. Dabei werden die Anforderungen an die Meßgenauigkeit der Konzentrationsmeßzellen dadurch bestimmt, daß z.B. die durch die Konzentrationsmessung verursachte Meßunsicherheit im Uranabschälverhältnis der Stufe 1 kleiner als $\pm 2\%$ sein soll.

Eine Betrachtung der Fehlerfortpflanzung bei dieser Methode zeigt drei wesentliche Aspekte:

- a) Bei der Berechnung der Abschälverhältnisse heben sich gleichsinnige systematische Fehler der Meßzellenanzeigen auf, die beispielsweise durch Schwankungen der gemeinsamen Speisespannung oder der Thermostatentemperatur hervorgerufen werden,

$$\frac{\Delta \mathcal{D}_U}{\mathcal{D}_U} \approx 0,25 \frac{\Delta N_K}{N_K} + 1,25 \frac{\Delta N_M}{N_M} - 1,5 \frac{\Delta N_O}{N_O} \quad (7)$$

- b) Ein systematischer Eichfehler in allen Düsengaskonzentrationen $N_0(s)$ erzeugt keinen Fehler in der schrittweisen Berechnung von \mathcal{J}_U . Lediglich der relative Urandurchsatz der Stufen wird mit ca. 50 % des Relativ-Fehlers über- bzw. unterbewertet.
- c) Die Fehlerfortpflanzung statistisch verteilter Eichfehler der Meßzellen $\Delta N/N$ oder zufällig auftretender Schwankungen der einzelnen Meßwertanzeigen $\Delta N/N$ führt in Stufe 10 zu einem Relativfehler

$$\frac{\Delta \mathcal{J}_U}{\mathcal{J}_U} \approx 2 \frac{\Delta N}{N} \quad (8)$$

und ergibt für die Abschälverhältnisse in den übrigen Stufen $s = 1 \dots 9$

$$\frac{\Delta \mathcal{J}_{U(s)}}{\mathcal{J}_U} \approx 0.8 \frac{\Delta N_0}{N_0} \sqrt{50-4s} \quad (9)$$

Da in Stufe 1 nur ein maximaler Relativfehler $\Delta \mathcal{J}_{U(1)}/\mathcal{J}_U = \pm 2\%$ zugelassen war, durfte die relative Meßunsicherheit der Konzentrationsmeßzellen den Wert $\Delta N/N = 0,4\%$ im Mittel nicht überschreiten. Die danach zu fordernde mittlere Vergleichbarkeit von $\pm 0,02$ Mol-% UF_6 der Zellen untereinander konnte unter Ausnutzung der Fehlergrenze des verwendeten Digitalvoltmeters von $\pm 0,05$ mV \triangleq $\pm 0,01$ Mol-% UF_6 erreicht werden.

Als Beispiel zeigt Abb. 12 die Auswertung eines Versuches mit der noch nicht vollständig eingeregelter Pilotanlage. Unter Benutzung der in Abb. 12b über der Stufennummer aufgetragenen UF_6 -Konzentrationsmeßwerte N_0 wurde der in Abb. 12a als Kurvenzug eingetragene Verlauf der Uran-Abschälverhältnisse in der Pilotanlage berechnet. Dieses Ergebnis kann mit den als Kreuzen eingezeichneten Meßwerten \mathcal{J}_U verglichen werden, die

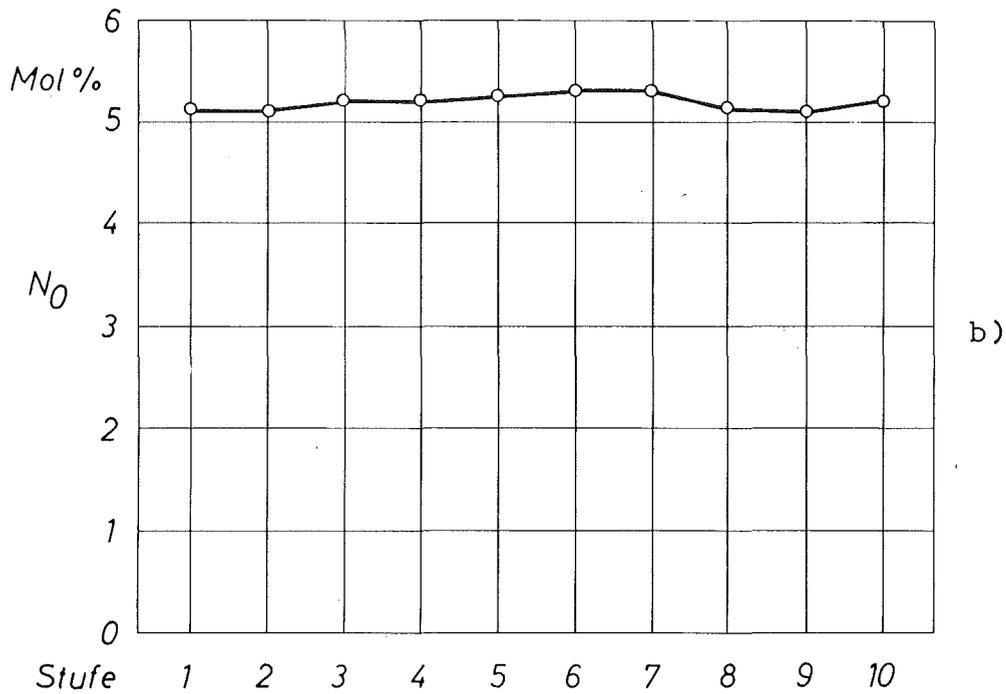
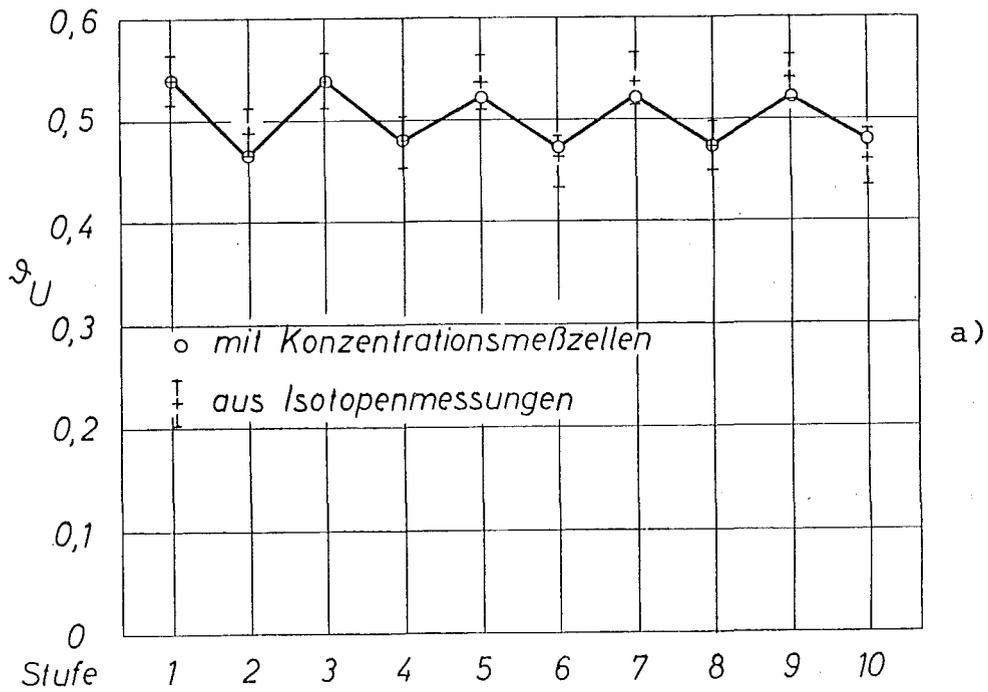


Abb. 12: a) Vergleich der aus den UF_6 -Konzentrationen berechneten Uranabschälverhältnisse $\bar{\alpha}_U$ (o) mit den aus Isotopenhäufigkeitsmessungen gewonnenen Werten (+) bei der nahezu eingeregelter Pilotanlage.

b) Die zur Berechnung von $\bar{\alpha}_U$ benutzten Konzentrationsmeßwerte N_{O_2} im Ausgangsgas der 10 Stufen.

aus Isotopenhäufigkeitsmessungen der drei Uran-Fractionen jeder Stufe erhalten wurden. Diese Kontrollmessungen liefern für jede Stufe einen unabhängigen \mathcal{D}_U -Wert, der jedoch mit einem verhältnismäßig großen Relativfehler behaftet ist, wie die Fehlerbalken in Abb. 12a angeben. Der Vergleich zeigt, daß die mit Hilfe der Konzentrationsmeßwerte berechneten \mathcal{D}_U -Werte innerhalb der Fehlergrenze dieser Messungen bleiben. Die Untersuchung mit Hilfe des Fehlerfortpflanzungsgesetzes ergibt, daß eine solche Übereinstimmung nur erzielt werden kann, wenn die relativen Konzentrationsmeßfehler der Wärmeleitmeßzellen nicht größer als 0,3 % sind. Bei den in der Folge durchgeführten Einregelungen der Pilotanlage in unterschiedliche Betriebszustände unter Benutzung der Meßzellen konnten die Uranabschälverhältnisse auf einen maximalen Abstand von ± 1 % vom Sollwert eingeregelt werden.

3.2 Reaktion der Pilotanlage auf periodische Änderung des UF_6 -Einspeisestroms

Neben der Untersuchung des stationären Verhaltens und der Einregelung einer Trenndüsenkaskade in einen gewünschten Sollzustand, lag eine wesentliche Aufgabenstellung der Pilotanlage in der Messung instationärer Vorgänge in derartigen Kaskaden. Als typisches Beispiel sei die Reaktion der Kaskade auf periodische Schwankungen des UF_6 -Einspeisestromes U3 angeführt. Abb. 13 zeigt die Registrierung eines Versuches, bei welchem der Regelkreis 3 kontinuierlich mit einer sinusförmigen Führungsgröße der Periodendauer von 33,3 min angesteuert wurde. Der Schreiberstreifen gibt den Verlauf der Ausgangsgaskonzentrationen $N_0(s)$ in den zehn Stufen und der Konzentrationen $N_{K,10}$ und $N_{M,10}$ in den beiden Fraktionen der Stufe 10 wieder.

Aus diesen Messungen, bei denen die erzwungene Schwankung der UF_6 -Stromstärke U3 ± 20 % ihres Sollwertes betrug, wird die Dämpfung periodischer Störungen in der Pilotanlage quantitativ

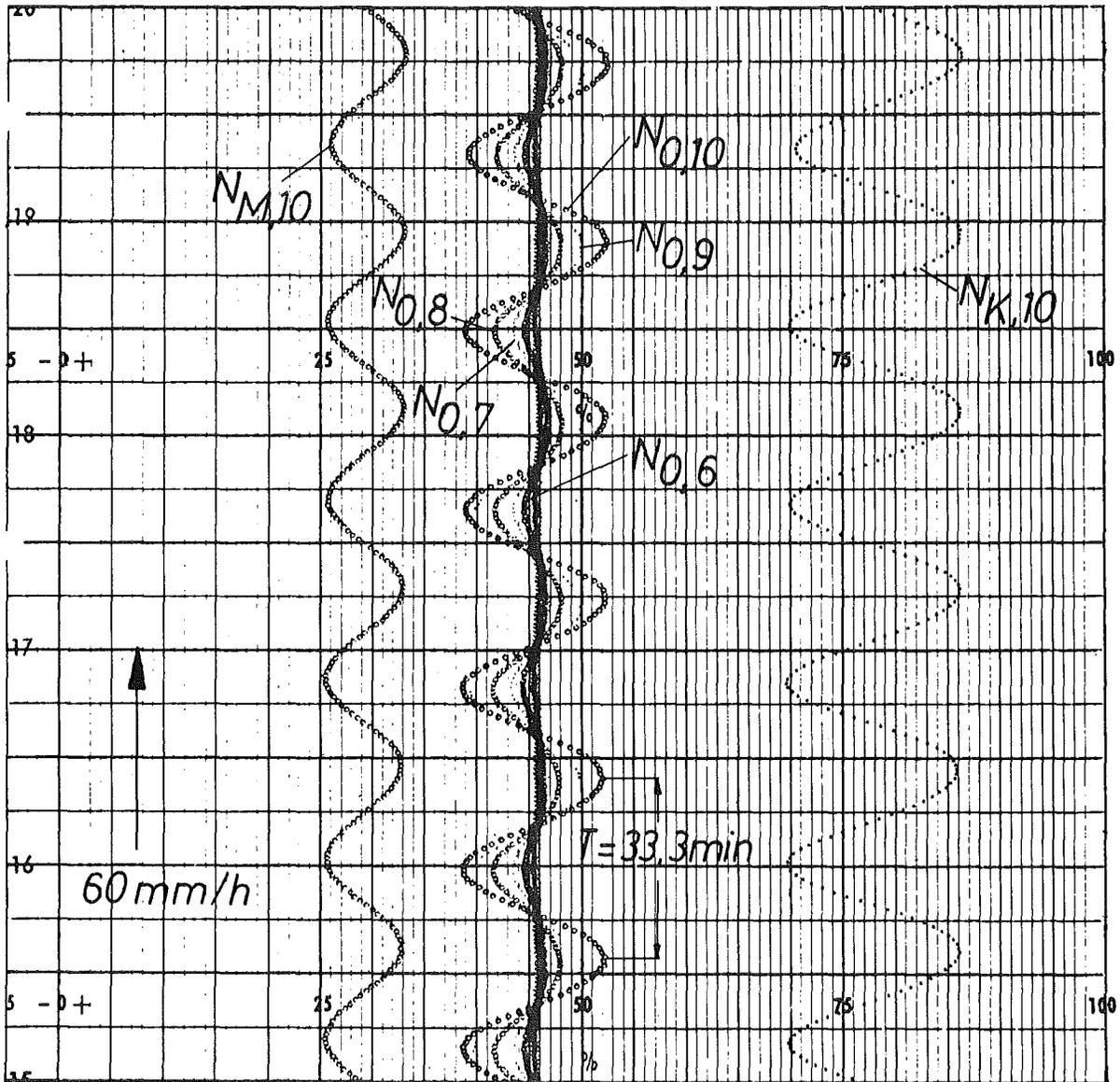


Abb. 13: Registrierung der zeitlichen Änderung der UF_6 -Konzentration $N_{0,1}$ - $N_{0,10}$ im Ausgangsgas der 10. Stufe der Pilotanlage bei periodischer Änderung des UF_6 -Einspeisestroms U_3 um 20 % seines Ruhewertes. $T = 33,3$ min. $N_{M,10}$ und $N_{K,10}$ = UF_6 -Konzentration in der leichten bzw. schweren Fraktion der 10. Stufe. $N_{K,10}$ ist mit halber Empfindlichkeit aufgezeichnet.

ersichtlich. Es ist deutlich zu erkennen, wie die Störungsamplituden der UF_6 -Konzentrationen N_0 unterhalb der Stufe 10, auf welche die Störung unmittelbar einwirkt, mit fallender Stufennummer schnell abnehmen.

4. Diskussion der Ergebnisse

Die im Rahmen der vorliegenden Arbeit entwickelte und erprobte Wärmeleitmeßzelle ist an den relativ niederen Gasdruck der Pilotanlage angepaßt. Technische Trenndüsenanlagen werden bei etwa um den Faktor 10 höheren Gasdrücken arbeiten. Es erhebt sich die Frage, ob das Wärmeleitprinzip als Grundlage für die Konzentrationsmessung auch bei technischen Trenndüsenanlagen zu empfehlen ist.

Aus den Überlegungen in Abschnitt 2.3 geht hervor, daß bei einem höheren Gasdruck mit entsprechend kleinerem Drahtdurchmesser gearbeitet werden kann, wodurch sich die elektrische Meßaufgabe wesentlich vereinfacht. Zur Vermeidung des Konvektionseinflusses wird man den Meßkammerdurchmesser kleiner machen, die Meßkammerlänge aber etwa beibehalten. Man hat dann allerdings dem Thermodiffusionseinfluß und dem Problem der Zeitkonstante erhöhte Aufmerksamkeit zu widmen.

