KfK 2724 November 1978

# Untersuchungen mit molekular angeströmten Sonden zum räumlichen Verlauf der Isotopenentmischung in der Trenndüse bei Rückstau der schweren Fraktion

U. Ehrfeld, W. Ehrfeld, E. Schmid Institut für Kernverfahrenstechnik

Kernforschungszentrum Karlsruhe

.

• • •

## KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE Institut für Kernverfahrenstechnik

KfK 2724

## UNTERSUCHUNGEN MIT MOLEKULAR ANGESTRÖMTEN SONDEN ZUM RÄUMLICHEN VERLAUF DER ISOTOPENENTMISCHUNG IN DER TRENNDÜSE BEI RÜCKSTAU DER SCHWEREN FRAKTION

U. Ehrfeld, W. Ehrfeld, E. Schmid<sup>+)</sup>

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

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH, Karlsruhe

Als Manuskript vervielfältigt Für diesen Bericht behalten wir uns alle Rechte vor

.

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH ISSN 0303-4003

#### Zusammenfassung:

Um die physikalischen Ursachen für die in einer früheren Arbeit gefundene Verbesserung der Uranisotopentrennung in der Trenndüse bei Rückstau der schweren Fraktion zu klären, wurden das Strömungsfeld und der räumliche Verlauf der Entmischung in der Trenndüse unter Verwendung eines Modellgasgemisches aus He und SF<sub>6</sub> mit Hilfe der Molekularsondentechnik untersucht. Die Genauigkeit dieser Meßtechnik wurde im Rahmen der vorliegenden Arbeit wesentlich verbessert, so daß es erstmals möglich war, neben der Gastrennung von He und SF<sub>6</sub> auch die Isotopenentmischung zwischen <sup>34</sup>SF<sub>6</sub> und <sup>32</sup>SF<sub>6</sub> zu erfassen. Die Nachweisgrenze für Änderungen des Isotopenverhältnisses im strömenden Gasgemisch, dessen SF<sub>6</sub>-Gehalt zwischen 1 Mol-% und 20 Mol-% variieren kann, liegt bei 2·10<sup>-4</sup>.

Die Untersuchungen zeigen eine weitgehende Parallele zwischen dem für eine bestimmte Stromfläche definierten lokalen Trenneffekt und der Differenz der statischen Drücke am Innen- und Außenrand eines Strömungsquerschnittes im Strömungsbereich vor dem Abschäler. Die Verbesserung der Trennung durch Rückstau der schweren Fraktion sollte demnach vor allem darauf beruhen, daß durch Rückstau der schweren Fraktion die radiale Druckdifferenz, die als Integral der Zentrifugalkraft über den Strömungsquerschnitt aufgefaßt werden kann, im Strömungsbereich vor dem Abschäler erhöht werden kann. Free Molecular Probe Measurements of Spatial Development of Isotope Separation in the Separation Nozzle

#### Summary

The flow field and the spatial development of separation in the separation nozzle were investigated by means of the free molecular probe technique using a He/SF<sub>6</sub> model gas mixture. The accuracy of this measuring technique was considerably improved so that it was possible for the first time to record the local isotope separation between  ${}^{32}\text{SF}_6$  and  ${}^{34}\text{SF}_6$  in the flow in addition to the gas separation between He and SF<sub>6</sub>. The detection limit for changes of the isotope ratio was 0.02 %, the accuracy of isotope ratio measurements was not adversely affected by variations of the composition of the He/SF<sub>6</sub> mixture ranging from 1 to 20 mole % SF<sub>6</sub>.

The main objective of the study was to analyze the causes of the improvement of the elementary effect of uranium isotope separation which is observed for separation nozzles operated at increased back pressure of the heavy fraction. The investigations reveal that the local separation effect defined for a given streamline is largely parallel to the difference of the static pressures at the inner and outer boundary of the curved flow. By increasing the back pressure of the heavy fraction the static pressure at the deflection wall is enhanced. Consequently, the improvement of the elementary effect of isotope separation can be attributed to an increase of the radial pressure difference and the corresponding radial integral of the centrifugal force, respectively, in the flow region in front of the skimmer of the separation nozzle.

#### Nomenklatur

.

1.	Einleitung	1
2.	Grundlagen des Meßverfahrens	4
	2.1 Bestimmung der Strömungsgrößen und der Gemischtrennung	4
	2.2 Bestimmung der Isotopentrennung	8
	2.3 Auswirkung von Störungen des lokalen thermischen Gleichgewichts bei der Bestimmung der Isotopentrennung	14
3.	Apparatur und Versuchsdurchführung	18
	3.1 Auslegung der Meßapparatur	18
	3.2 Verfahrenskreislauf	19
	3.3 Meßanordnung der Isotopenverhältnis- messung	23
	3.4 Meßgenauigkeit	24
4.	Experimentelle Ergebnisse	26
	4.1 Strömungsfeld und räumlicher Verlauf der Entmischung bei großer Abschäler- weite	27
	4.1.1 Messungen bei gleichen Absaugdrücken von leichter und schwerer Fraktion	27
	4.1.2 Messungen bei Rückstau der schweren Fraktion	32
	4.2 Einfluß der Abschälerweite auf das Strö- mungsfeld und den räumlichen Verlauf der Entmischung	40
	4.2.1 Messungen bei gleichen Absaugdrücken in leichter und schwerer Fraktion	40
	4.2.2 Messungen bei Rückstau der schweren Fraktion	44
5.	Diskussion der Ergebnisse	47
Lit	eraturverzeichnis	52



## Nomenklatur

Α	Trennfaktor		
a	Düsenweite		
В	Eichfaktor (reziproke Nachweisempfindlichkeit der Meßanordnung)		
Ċw	wahrscheinlichste thermische Geschwindigkeit		
D	Verhältnis von Durchmesser zu Länge des zylin- drischen Öffnungskanals der Sonde (Öffnungs- parameter)		
F	Fläche der Sondenöffnung		
f	Abschälerweite der Trenndüse		
G	Ionenstrom		
h <sub>f</sub>	Höhenstellung des Abschälers		
I	Teilcheneinstrom in die Öffnung der Sonde		
j	Stromdichte		
j <sub>max</sub>	maximale Stromdichte in einem radialen Quer- schnitt der Trenndüse		
j <sup>N</sup>	Stromdichte senkrecht zum radialen Querschnitt		
L	Gesamtdurchsatz in der Trenndüse		
m	Molekulargewicht		
n	Teilchendichte		
P <sub>o</sub>	Düsenvordruck		
P1	Absaugdruck der leichten Fraktion		
P <sub>s</sub>	Absaugdruck der schweren Fraktion		
$R(S,D,\alpha)$	Einstromfunktion		
r	Radialkoordinate in der Trenndüse		
r <sub>o</sub>	Krümmungsradius der Umlenkwand (Umlenkradius)		
r <sub>1</sub>	Radialkoordinate des Strahlinnenrandes		
S	Verhältnis von Strömungsgeschwindigkeit zu wahr- scheinlichster thermischer Geschwindigkeit (Ge- schwindigkeitsverhältnis)		
Т	absolute Temperatur		
v	Strömungsgeschwindigkeit		
W(D)	Clausing-Faktor		
×	Molenbruch		
α	Winkel zwischen der Strömungsrichtung und der Flächennormalen der Sondenöffnung (Drehwinkel)		

Δβ	Änderung der Strömungsrichtung zwischen $\Psi = 140^{\circ}$ und $\Psi = 160^{\circ}$	
<sup>δ</sup> lok	relative Änderung des lokalen Isotopenverhält- nisses in der Strömung gegenüber dem Düsengas	
δiok	relative Änderung des Ionenstromverhältnisses	
εA	Elementareffekt der Isotopentrennung (Trenneffekt)	
ϑ	Abschälverhältnis (Verhältnis des Gasstroms in der leichten Fraktion zum Gesamtstrom)	
<b>ð</b> *	Aufteilungsverhältnis innerhalb der Trenndüsen- strömung	
φ	Umlenkwinkel (Azimutalkoordinate in der Trenn- düse)	

Indizes

i, j	Gemischkomponenten
32	leichtes Isotop <sup>32</sup> SF <sub>6</sub>
34	schweres Isotop <sup>34</sup> SF <sub>6</sub>
sf <sub>6</sub>	Isotopengemisch <sup>32</sup> SF <sub>6</sub> , <sup>34</sup> SF <sub>6</sub>
He	leichtes Zusatzgas Helium
gem	Gesamtgemisch He, <sup>32</sup> SF <sub>6</sub> , <sup>34</sup> SF <sub>6</sub>

#### 1. Einleitung

Zur kommerziellen Anreicherung von Uran-235 wurde am Kernforschungszentrum Karlsruhe das Trenndüsenverfahren als Alternative zum Gasdiffusions- und Zentrifugenverfahren entwickelt /1/. In der Trenndüse werden zur Entmischung der Uranisotope die Zentrifugalkräfte in einer gekrümmten Gasströmung ausgenutzt, die aus Uranhexafluorid und einem leichten Zusatzgas in hohem molarem Überschuß besteht. Aufgrund des niedrigen mittleren Molekulargewichts des Gasgemischs lassen sich bereits bei geringen Expansionsverhältnissen große Strömungsgeschwindigkeiten und damit hohe Zentrifugalkräfte für die Isotopentrennung erreichen. Ein weiterer Vorteil des leichten Zusatzgases besteht darin, daß die Isotopentrennung durch die unterschiedliche Sedimentationsgeschwindigkeit der Isotope im Zentrifugalfeld der Strömung verstärkt wird /2/.

Im Rahmen der technischen Realisierung des Trenndüsenverfahrens wird gegenwärtig das in Abb. 1 gezeigte Düsensystem eingesetzt /3/, /4/. Hierbei wird ein Gasstrom L



Abb. 1: Schnitt durch ein schlitzförmiges Trenndüsensystem.

an einer zylindrischen Wand umgelenkt und dann durch einen Abschäler in zwei Fraktionen  $\vartheta$ L und  $(1 - \vartheta)$ L aufgeteilt, die an leichtem Isotop angereichert bzw. verarmt sind. Unter optimalen Betriebsbedingungen wird mit dieser Anordnung eine relative Änderung des Isotopenverhältnisses von etwa 1.5 % zwischen den beiden Fraktionen erreicht /5/.

Zur Erzeugung von Kernbrennstoff für Leichtwasserreaktoren, dessen Gehalt an Uran-235 um einen Faktor 3 - 5 über dem von Natururan liegen muß, ist es beim Trenndüsenverfahren wie bei den anderen kommerziellen Anreicherungsverfahren notwendig, den elementaren Trennvorgang vielfach zu wiederholen. Bei der hierfür erforderlichen Kaskadenschaltung ist das Aufteilungsverhältnis der UF<sub>6</sub>-Ströme auf einen bestimmten Sollwert festgelegt, der beim Trenndüsenverfahren o.25 oder o.33 beträgt /3/, /6/. Da das Uranaufteilungsverhältnis empfindlich von der Abschälerposition abhängt und Toleranzschwankungen bei der technischen Fertigung von Trenndüsen nicht vollständig zu vermeiden sind, wird der Abstand des Abschälers von der Umlenkwand so gewählt, daß bei gleichen Absaugdrücken von leichter und schwerer Fraktion ein über dem Sollwert liegender Anteil des gesamten UF<sub>6</sub>-Stroms mit der schweren Fraktion abgeführt wird. Der Gasstrom der schweren Fraktion wird dann mit Hilfe von Drosselventilen in den zugehörigen Absaugleitungen der Kaskadenstufen soweit zurückgestaut, bis das Uranabschälverhältnis den durch die Kaskadenschaltung vorgegebenen Sollwert annimmt /6/.

Durch Trennversuche mit  $H_2/UF_6$ -Gemisch konnte in einer früheren Arbeit /7/ gezeigt werden, daß sich der Elementareffekt der Uranisotopentrennung für ein bestimmtes Uranabschälverhältnis  $\vartheta_u$  deutlich verbessern läßt, wenn man den Abstand des Abschälers wesentlich größer wählt, als dies für die Feinregelung von  $\vartheta_u$  durch Rückstau der schweren Fraktion erforderlich wäre. Wegen der starken Abhängigkeit des elementaren Trenneffekts vom Abschälverhältnis und der

- 2 -

gleichzeitigen Veränderung beider Größen bei Variation der Abschälerweite und des Rückstaus der schweren Fraktion lassen sich aus den üblichen Trennversuchen nur indirekte Schlüsse auf die gasdynamischen Ursachen der gefundenen Verbesserung ziehen. In der vorliegenden Arbeit wurden daher die Vorgänge in der Trenndüse bei Rückstau der schweren Fraktion mit der Molekularsondentechnik /8/ untersucht. Bei diesem Verfahren läßt sich die Abhängigkeit des Trenneffektes an jeder Stelle in der Strömung unabhängig von den am Abschäler eingestellten Betriébsbedingungen untersuchen. Wie üblich mußte zum Schutz der Pumpen anstelle des hochkorrosiven UF<sub>6</sub>-Gemisches ein SF6/He-Gemisch verwendet werden. Da aus Trennversuchen mit UF6 bekannt war, daß sich die Isotopentrennung deutlich anders als die bei den Sondenversuchen bisher ausschließlich erfaßte Gemischtrennung verhalten kann, wurde die Molekularsonden technik erstmals auch zur Erfassung des räumlichen Verlaufs der Isotopentrennung (S<sup>32</sup>/S<sup>34</sup>) eingesetzt.

Die Sondenmessungen wurden an einem Trenndüsenmodell durchgeführt, dessen charakteristische Abmessungen um einen Faktor 1500 größer waren als die technischer Trenndüsensysteme. Der optimale Betriebsdruck dieses Trenndüsenmodells, der nach den Ähnlichkeitsgesetzen der Gaskinetik umgekehrt proportional zu dessen charakteristischen Abmessungen ist, war mit 0,2 Torr ausreichend niedrig, um eine annähernd molekulare Anströmung der Sonde zu gewährleisten. Zum Betrieb des Trenndüsenmodells diente eine Roots-Pumpenanlage mit einem Saugvermögen von 100 000 m<sup>3</sup>/h.

Die Messungen zeigen eine weitgehende Parallele zwischen dem für ein bestimmtes Aufteilungsverhältnis der Strömung definierten lokalen Trenneffekt und der lokalen Differenz der statischen Drücke am Innen- und Außenrand der gekrümmten Strömung. Der gefundene Verbesserungseffekt beruht demnach vor allem darauf, daß sich durch Erweitern des Abschälerkanals bei entsprechend stärkerem Rückstau der schweren Fraktion die radiale Druckdifferenz vor dem Abschäler erhöhen läßt.

#### 2. Grundlagen des Meßverfahrens

## 2.1 <u>Bestimmung der Strömungsgrößen und der Gemisch-</u> trennung

Abb. 2 zeigt das Prinzip des Meßverfahrens zur Bestimmung der Strömungsgrößen und der Gemischtrennung. Die Sonde,



Abb. 2: Schematische Darstellung des Meßverfahrens mit molekular angeströmter Drucksonde und Massenspektrometer. Das Diagramm zeigt qualitativ den Zusammenhang zwischen dem Drehwinkel α und dem Ionenstrom einer Gemischkomponente.

bestehend aus einem einseitig verschlossenen Röhrchen mit einer seitlichen Öffnung, wird senkrecht zur Strömung ausgerichtet. Die Anströmung der Sonde erfolgt molekular, d. h. die mittlere freie Weglänge in der Strömung ist groß gegen den Sondendurchmesser. Die Sonde ist um ihre Achse drehbar, so daß die seitliche Öffnung unter beliebigem Winkel  $\alpha$  zur Strömungsrichtung orientiert werden kann. In einem an die Sonde angeschlossenen Massenspektrometer wird das in die Sondenöffnung einströmende Gasgemisch analysiert. Für jede Gaskomponente wird der Zusammenhang zwischen dem am Massenspektrometer registrierten Ionenstrom G und dem Drehwinkel  $\alpha$ der Sonde aufgenommen.

Bei lokalem thermischen Gleichgewicht ist der Teilcheneinstrom I<sub>i</sub> einer Gaskomponente i durch folgende Beziehung gegeben /8/

$$I_{i} = \frac{F \cdot n_{i} \cdot c_{wi}}{2\sqrt{\pi}} R(S_{i}, D, \alpha) \cdot W(D).$$
(1)

Hierbei ist n die Teilchendichte, F die Fläche der seitlichen Öffnung der Sonde, D das Verhältnis von Durchmesser zu Länge des zylindrischen Öffnungskanals der Sonde (Öffnungsparameter),  $c_w$  die wahrscheinlichste thermische Geschwindigkeit und S das Verhältnis von Strömungsgeschwindigkeit zu wahrscheinlichster thermischer Geschwindigkeit (Geschwindigkeitsverhältnis). Das Produkt R(S<sub>i</sub>,D,α)·W(D) gibt die Wahrscheinlichkeit dafür an, daß ein Molekül der Komponente i, die in der Strömung ein partielles Geschwindigkeitsverhältnis S; besitzt, auf den unter dem Winkel a gegenüber der Strömung orientierten zylindrischen Öffnungskanal auftrifft und diesen durchquert /9/. Im ruhenden Gas (S = O) nimmt die Funktion R den Wert 1 an und die Wahrscheinlichkeit für das Durchqueren des Öffnungskanals wird allein durch den Clausing-Faktor W(D) bestimmt.

Liegt eine molekulare Strömung zwischen Sonde und Massenspektrometer vor, und ist der Ionenstrom einer Komponente proportional zur Partialdichte dieser Komponente in der Ionenquelle, dann kann der Einstrom I<sub>i</sub> über einen experimentell zu bestimmenden Eichfaktor B<sub>i</sub> direkt aus dem Ionenstrom G<sub>i</sub> dieser Komponente ermittelt werden

$$I_{i} = B_{i} G_{i}$$
(2)

Der Eichfaktor B<sub>i</sub> hängt außer von der Gasart von den Leitwerten der Sonde und der Zuleitungen zum Massenspektrometer, sowie von der Empfindlichkeit des Massenspektrometers ab.

Bei lokalem thermischen Gleichgewicht lassen sich die Geschwindigkeitsverhältnisse jeder Komponente aus dem Verhältnis der Ionenströme bestimmen, die für diese Komponente bei mindestens zwei verschiedenen Drehwinkels registriert wurden. Die Stromdichten ergeben sich aus den Ionenströmen bei stromaufwärts ( $\alpha = 0^{\circ}$ ) und stromabwärts ( $\alpha = 180^{\circ}$ ) gerichteter Sondenöffnung. Der statische Druck kann bei Kenntnis der Gastemperatur aus dem bei senkrechter Orientierung der Sondenöffnung zur Strömungsrichtung ( $\alpha = 90^{\circ}$ ) registrierten Ionenstrom ermittelt werden<sup>1)</sup>.

Aus dem Verlauf der Stromdichten der einzelnen Gemischkomponenten in verschiedenen Strömungsquerschnitten können die zugehörigen Molstromflächen bzw. die Molstrom-

In der vorliegenden Arbeit wurde die Gastemperatur unter der Annahme einer isoenergetischen Zustandsänderung in der Strömung aus der Ruhetemperatur des Gases vor dem Eintritt in die Düse und dem lokalen Geschwindigkeitsverhältnis berechnet. Nach früheren Untersuchungen /10/ sind die Unterschiede zwischen der tatsächlichen Temperaturverteilung und der isoenergetischen Temperaturverteilung so gering, daß durch diese Annahme keine wesentlichen Fehler bei der Bestimmung des statischen Drucks verursacht werden.

linien ermittelt werden. Hierbei wird in verschiedenen radialen Querschnitten ( $\varphi$  = const.) der Gesamtstrom L<sub>i</sub> beim Radius r in einen inneren Teilstrom  $\vartheta_i^*(r)L_i$  und einen äußeren Teilstrom (1-  $\vartheta_i^*(r))L_i$  zerlegt, wobei das lokale Aufteilungsverhältnis  $\vartheta_i^*(r)$  gemäß der Beziehung

$$\vartheta_{i}^{*}(\mathbf{r}) = \frac{\int_{r_{1}}^{r} j_{i}^{N}(\mathbf{r}) d\mathbf{r}}{\int_{r_{1}}^{r} j_{i}^{N}(\mathbf{r}) d\mathbf{r}}$$
(3)

r<sub>1</sub> = innerer Strahlrand r<sub>0</sub> = Umlenkradius r<sub>1</sub> <sup>e</sup> r <sup>e</sup> r<sub>0</sub>

durch Integration über die den radialen Querschnitt durchsetzende Stromdichtekomponente  $j_i^N(r)$  bestimmt wird (vgl. Abb. 3). Die Stromlinien verbinden die Punkte



gleichen Aufteilungsverhältnisses in aufeinanderfolgenden radialen Querschnitten. Das unmittelbar am Abschäler vorliegende Aufteilungsverhältnis ist mit dem üblicherweise bei der Trenndüse verwendeten Begriff des Abschälverhältnisses  $\vartheta$ , das als Verhältnis des Gasstroms in der leichten Fraktion zum Gesamtstrom in der Trenndüse definiert ist, identisch.

Die Trennung zweier Komponenten i und j kann dann an jedem Ort in der Strömung durch den Trennfaktor

$$A = \frac{\vartheta_{j}^{*} (1 - \vartheta_{i}^{*})}{\vartheta_{i}^{*} (1 - \vartheta_{j}^{*})}$$
(4)

beschrieben werden. Es kann also der Verlauf der Trennung entlang einer vorgegebenen Stromlinie gemessen werden, auch wenn die Stromlinie ihre räumliche Lage ändert.

#### 2.2 Bestimmung der Isotopentrennung

Die Entmischung der Isotope beschreibt man zweckmäßigerweise durch die Abweichung des Isotopentrennfaktors von eins, den sogenannten Elementareffekt  $\epsilon_A$  der Isotopentrennung. Die Bestimmung von  $\epsilon_A$  wird im folgenden am Beispiel der Schwefelisotope im SF<sub>6</sub> erläutert. Bezeichnet der Index 32 das leichte Isotop:  ${}^{32}SF_6$  und der Index 34 das schwere Isotop  ${}^{34}SF_6$ , so gilt

$$\epsilon_{A} = \frac{\vartheta_{32}^{*}(1-\vartheta_{34}^{*})}{\vartheta_{34}^{*}(1-\vartheta_{32}^{*})} - 1 = \frac{\vartheta_{32}^{*}-\vartheta_{34}^{*}}{\vartheta_{34}^{*}(1-\vartheta_{32}^{*})} .$$
 (5)

Während zur Ermittlung der vergleichsweise großen Gemischtrennung zwischen He und SF<sub>6</sub> deren Aufteilungsverhältnisse  $\mathfrak{F}_{He}^{*}$  und  $\mathfrak{F}_{SF_{h}}^{*}$  entsprechend G1. (3) aus unabhängig voneinander gemessenen radialen Stromdichteverläufen bestimmt werden, wäre eine solche Vorgehensweise zur Messung der Isotopentrennung bei weitem zu ungenau, da die relative räumliche Verschiebung der Isotope extrem gering ist. Eine ausreichende Genauigkeit in der Bestimmung des Trenneffekts kann dagegen dadurch erreicht werden, daß zunächst der radiale Stromdichteverlauf des häufigen Moleküls<sup>32</sup>SF<sub>6</sub> in der bekannten Weise unmittelbar gemessen, der Stromdichteverlauf des seltenen Moleküls <sup>34</sup>SF<sub>R</sub> jedoch durch Messung des radialen Verlaufs des Stromdichteverhältnisses j<sub>34</sub>/j<sub>32</sub> mittelbar bestimmt wird. Das Aufteilungsverhältnis des seltenen Moleküls ergibt sich dann zu

$$\vartheta_{34}^{\star} + \frac{\int_{r_{1}}^{r} j_{32}^{N}(r) \cdot \frac{j_{34}^{N}(r)}{j_{32}^{N}(r)} dr}{\int_{r_{1}}^{r} j_{32}^{N}(r) \cdot \frac{j_{34}^{N}(r)}{j_{32}^{N}(r)} dr}$$
(6)

Bei lokalem thermischen Gleichgewicht sind die Strömungsgeschwindigkeiten der verschieden schweren Moleküle gleich groß, so daß das Verhältnis der Stromdichten durch das Verhältnis der Teilchendichten  $n_{34}/n_{32}$ , das sogenannte Isotopenverhältnis, ersetzt werden kann.

$$\vartheta_{34}^{*} = \frac{\prod_{r_{1}}^{r} j_{32}^{N}(r) \cdot \frac{n_{34}}{n_{32}}(r) dr}{\int_{32}^{r} j_{32}^{N}(r) \cdot \frac{n_{34}}{n_{32}}(r) dr}$$
(6a)

Die Messung des lokalen Isotopenverhältnisses erfolgt in einem Massenspektrometer, das mit einem Doppelauffänger zum gleichzeitigen Nachweis der Isotope ausgerüstet ist. Das am Massenspektrometer gemessene Ionenstromverhältnis und das lokale Isotopenverhältnis stehen bei lokalem thermischen Gleichgewicht nach Gl. (1) und (2) in folgendem Zusammenhang:

$$\frac{G_{34}}{G_{32}} = \frac{B_{32}}{B_{34}} \cdot \frac{c_{w34}}{c_{w32}} \cdot \frac{R(S_{34}, D, \alpha)}{R(S_{32}, D, \alpha)} \cdot \frac{n_{34}}{n_{32}} \cdot (7)$$

Man erkennt, daß das Ionenstromverhältnis nicht wie bei der Messung im ruhenden Gas (R = 1) durch eine von den Massen unabhängige Proportionalitätsgröße mit dem lokalen Isotopenverhältnis verknüpft ist, sondern daß bei der Messung im strömenden Gas zusätzlich ein massenabhängiger Term  $(R(S_{34},D,\alpha)/R(S_{32},D,\alpha) \text{ auftritt}^2)$ . Dieser Term trägt dem Sachverhalt Rechnung, daß der Einstrom in die Sonde beim strömenden Gas nicht mehr allein durch die ungerichtete thermische Bewegung gegeben ist, sondern daß der thermischen Geschwindigkeit die gerichtete Strömungsgeschwindigkeit überlagert ist. Das Verhältnis der Einstromfunktionen, im folgenden mit Einstromverhältnis bezeichnet, ist also von den Absolutwerten der Geschwindigkeitsverhältnisse abhängig, und deshalb, wegen der Beziehung S<sub>32</sub>/S<sub>34</sub> =  $\sqrt{m_{32}/m_{34}}$  auch vom Massenverhältnis. Das Einstromverhältnis hängt außerdem vom Drehwinkel α und vom Öffnungsparameter D ab.

<sup>2)</sup> Der Term (B<sub>32</sub>/B<sub>34</sub>)·(c<sub>w34</sub>/c<sub>w32</sub>) ist massenunabhängig, weil im Verhältnis B<sub>32</sub>/B<sub>34</sub> das Verhältnis der Leitwerte der Ionenquelle für beide Massen enthalten ist und dieses Verhältnis der Leitwerte bei den molekularen Strömungsbedingungen in der Ionenquelle des Massenspektrometers dem Verhältnis c<sub>w32</sub>/c<sub>w34</sub> proportional ist.

Abb. 4 zeigt das Einstromverhältnis als Funktion des Geschwindigkeitsverhältnisses bei stromaufwärts gerichteter Sondenöffnung. Für große Geschwindigkeitsverhältnisse



<u>Abb. 4:</u> Abhängigkeit des Einstromverhältnisses vom SF<sub>6</sub>-Geschwindigkeitsverhältnis, berechnet für die Isotope  ${}^{34}$ SF<sub>6</sub> und  ${}^{32}$ SF<sub>6</sub> beim Drehwinkel  $\alpha = 0^{\circ}$ für einen Öffnungsparameter D = 3.5.

konvergiert das Einstromverhältnis gegen die Wurzel aus dem Massenverhältnis, da hier der Einstrom in die Sonde aufgrund der gerichteten Bewegung der Moleküle massenunabhängig ist, der Ausstrom aus der Ionenquelle dagegen entsprechend der thermischen Geschwindigkeit also massenabhängig erfolgt. Für kleinere Geschwindigkeitsverhältnisse ist, entsprechend dem größeren Anteil des ungerichteten Gaseinstroms in die Sonde, die Abweichung des Einstromverhältnisses von eins geringer. Die Abhängigkeit des Einstromverhältnisses vom Drehwinkel für verschiedene Geschwindigkeitsverhältnisse ist in Abb. 5 dargestellt. Im Bereich von  $\alpha$  = 0<sup>0</sup> ist die Ab-



<u>Abb. 5:</u> Abhängigkeit des Einstromverhältnisses vom Drehwinkel für verschiedene SF<sub>6</sub>-Geschwindigkeitsverhältnisse SSF6 (Öffnungsparameter D = 3.5).

hängigkeit vom Drehwinkel sehr schwach, während bei größeren Werten von α das Einstromverhältnis sich besonders bei hohen Geschwindigkeitsverhältnissen stark mit dem Drehwinkel ändert. Für die Bestimmung des Isotopenverhältnisses ist es i. a. zweckmä-Big, die Messung beim Drehwinkel  $\alpha = 0^{\circ}$  durchzuführen, da zum einen eine fehlerhafte Drehwinkeleinstellung von einigen Grad praktisch keinen Einfluß auf das Meßergebnis hat und zum andern der Gaseinstrom und damit die Nachweisempfindlichkeit bei  $\alpha = 0^{\circ}$  am größten ist.

Eine Bestimmung des Isotopenverhältnisses bei  $\alpha \approx 90^{\circ 3}$ hätte demgegenüber zwar den Vorteil, daß hier der Einstrom in die Sonde allein durch die ungerichtete thermische Bewegung gegeben und das Ionenstromverhältnis da-

<sup>3)</sup> Für die ideale Lochblende (D = ∞) nimmt das Einstromverhältnis exakt beim Winkel α = 90° den Wert eins an, während bei einem zylindrischen Öffnungskanal der Wert eins bereits bei etwas kleineren Winkeln erreicht wird.

her für alle Geschwindigkeitsverhältnisse gleich dem Isotopenverhältnis ist. Nachteilig wäre jedoch, daß das Einstromverhältnis bei  $\alpha = 90^{\circ}$  stark vom Drehwinkel abhängt und außerdem die Nachweisempfindlichkeit wesentlich geringer ist als bei  $\alpha = 0^{\circ}$ . Alle Verhältnismessungen wurden daher bei stromaufwärts gerichteter Sondenöffnung durchgeführt.

Für die Bestimmung des Trenneffektes ist die Messung des Absolutwertes des Isotopenverhältnisses nicht erforderlich. Man bestimmt stattdessen die relative Änderung des Isotopenverhältnisses gegenüber einem Referenzgas, wobei als Referenzgas zweckmäßigerweise das Düsengas verwendet wird.

Die relative Änderung des lokalen Ionenstromverhältnisses

$$\delta_{1ok}^{\prime} = \frac{(G_{34}/G_{32})_{1ok} - (G_{34}/G_{32})_{Ref}}{(G_{34}/G_{32})_{Ref}}$$
(8)

kann mit Gl. (7) durch die Beziehung

$$\delta_{1ok} = \frac{(B_{32}/B_{34})_{1ok}}{(B_{32}/B_{34})_{Ref}} \frac{(n_{34}/n_{32})_{1ok}}{(n_{34}/n_{32})_{Ref}} \frac{R(S_{34},D,\alpha)}{R(S_{32},D,\alpha)} - 1 \quad (9)$$

ausgedrückt werden. Durch eine geeignete Versuchsdurchführung läßt sich erreichen, daß die Verhältnisse (B<sub>32</sub>/B<sub>34</sub>)<sub>lok</sub> und (B<sub>32</sub>/B<sub>34</sub>)<sub>Ref</sub> gleich sind und sich herauskürzen (siehe hierzu Kapitel 3.). Die relative Änderung des lokalen Isotopenverhältnisses

$$\delta_{lok} = \frac{(n_{34}/n_{32})_{lok} - (n_{34}/n_{32})_{Ref}}{(n_{34}/n_{32})_{Ref}}$$
(10)

steht dann mit der relativen Änderung des lokalen Ionenstromverhältnisses  $\delta_{\rm lok}$  in folgendem Zusammenhang

$$\delta_{lok} + 1 = (\delta'_{lok} + 1) \frac{R(S_{32}, D, \alpha)}{R(S_{34}, D, \alpha)}$$
(11)

Die beiden Größen sind also über das Einstromverhältnis miteinander verknüpft. Das Aufteilungsverhältnis des seltenen Moleküls kann dann aus dem radialen Verlauf von  $\delta_{lok}(r)$  mit der aus Gl. (6a) und (10) folgenden Beziehung

$$\vartheta_{34}^{*}(\mathbf{r}) = \frac{\int_{r_{1}}^{r} j_{32}^{N}(\mathbf{r}) (\delta_{10k}(\mathbf{r})+1) d\mathbf{r}}{\int_{r_{1}}^{0} j_{32}^{N}(\mathbf{r}) (\delta_{10k}(\mathbf{r})+1) d\mathbf{r}}$$
(12)

berechnet werden.

## 2.3 <u>Auswirkung von Störungen des lokalen thermischen</u> <u>Gleichgewichts bei der Bestimmung der Isotopen-</u> trennung

Aus früheren Untersuchungen mit molekular angeströmten Sonden ist bekannt, daß in Teilbereichen der Trenndüsenströmung Störungen des lokalen thermischen Gleichgewichts auftreten /8/. Diese äußern sich einmal in einer Asymmetrie der lokalen Geschwindigkeitsverteilung der Moleküle im Schwerpunktsystem der Strömung, zum anderen können bei Gasgemischen lokal Unterschiede in der Strömungsgeschwindigkeit (Schlupf), sowie in der Temperatur der einzelnen Komponenten vorliegen. Eine Asymmetrie der Geschwindigkeitsverteilung kann nach /8/ näherungsweise durch eine bimodale Verteilungsfunktion beschrieben werden, bei der angenommen wird, daß die asymmetrische lokale Geschwindigkeitsverteilung als Überlagerung zweier Maxwell-Halbraumverteilungen mit unterschiedlichen Geschwindigkeitsverhältnissen wiedergegeben werden kann. Der gestörten Geschwindigkeitsverteilung kann ein Effektivwert des Geschwindigkeitsverhältnisses zugeordnet werden, der als arithmetisches Mittel aus den Geschwindigkeitsverhältnissen der beiden Halbraumverteilungen ermittelt wird. Bestimmt man das lokale Isotopenverhältnis einmal vereinfachend unter Zugrundelegung dieses Effektivwertes des Geschwindigkeitsverhältnisses und zum anderen unter Zugrundelegung der einzelnen Halbraumverteilungen, so läßt sich anhand von Modellrechnungen zeigen, daß der mit dieser Vereinfachung verbundene Fehler im allgemeinen gering ist. Selbst bei einer stark gestörten Geschwindigkeitsverteilung, bei der die Geschwindigkeitsverhältnisse der Halbraumverteilungen sich um den Faktor zwei unterscheiden, beträgt dieser Fehler maximal 0,3 o/oo, was etwa dem statistischen Meßfehler bei der Bestimmung des Isotopenverhältnisses entspricht (vgl. Kapitel 3.4)<sup>4)</sup>. Bei der Auswertung der Messungen wurde deshalb immer der Effektivwert des Geschwindigkeitsverhältnisses zugrunde gelegt.

<sup>4)</sup> Der Fehler ist in dem Bereich am größten, in welchem sich das Einstromverhältnis am stärksten mit dem Geschwindigkeitsverhältnis ändert, d. h. im Bereich zwischen S = 0.5 und 1.0 (vgl. Abb. 4). Bei höheren und niedrigeren Geschwindigkeitsverhältnissen wird dieser Fehler geringer, da hier das Einstromverhältnis weniger stark vom Geschwindigkeitsverhältnis abhängt.

Liegt ein Geschwindigkeitsschlupf zwischen den Isotopen in Strömungsrichtung vor, so kann der Elementareffekt der Isotopentrennung nur dann nach Gl. (5) - (12) richtig ermittelt werden, wenn auch bei unterschiedlichen Strömungsgeschwindigkeiten die Größe ( $\delta_{lok}(r)$  + 1), die in Gl. (12) zur Berechnung von  $\vartheta_{34}^{*}$  verwendet wird, gleich dem Stromdichteverhältnis der Isotope ist. Für hohe Geschwindigkeitsverhältnisse ist diese Bedingung weitgehend erfüllt, denn bei stromaufwärts gerichteter Sondenöffnung wird der Teilcheneinstrom in die Sonde und damit der Ionenstrom G einer Komponente im wesentlichen durch die Teilchendichte und die Strömungsgeschwindigkeit festgelegt, d. h. der Ionenstrom ist annähernd proportional zur Stromdichte. Der Ionenstrom ist weiterhin umgekehrt proportional zur thermischen Ausströmgeschwindigkeit der Moleküle aus der Ionenquelle und damit proportional zur Wurzel aus dem Molekulargewicht. Da das Einstromverhältnis R(S<sub>32</sub>,D,  $\alpha = 0^{\circ}$ )/R(S<sub>34</sub>,D,  $\alpha = 0^{\circ}$ ) für hohe Geschwindigkeitsverhältnisse (S > 1) gegen die Wurzel aus dem Molekulargewichtsverhältnis konvergiert, ist die Größe

$$\delta_{lok} + 1 = \frac{R(S_{32}, D, \alpha = 0^{\circ})}{R(S_{34}, D, \alpha = 0^{\circ})} \left(\frac{G_{34}}{G_{32}}\right)_{lok} \left(\frac{G_{32}}{G_{34}}\right)_{Ref}$$

für hohe Geschwindigkeitsverhältnisse annähernd proportional zum Stromdichteverhältnis der Isotope. Für niedrige Geschwindigkeitsverhältnisse wird der Einstrom in die Sonde in zunehmendem Maß durch die thermische Geschwindigkeit der Moleküle in der Strömung bestimmt und die Größe  $\delta_{lok}$  + 1 weicht bei einem Geschwindigkeitsschlupf vom Stromdichteverhältnis ab. Erfolgt die Berechnung des lokalen Isotopenverhältnisses dann mit dem unter der Annahme von lokalem thermischen Gleichgewicht ermittelten Einstromverhältnis, so ergibt sich ein Auswertefehler, der bei kleinen Geschwindigkeitsverhältnissen (S  $\leq$  0.1) etwa so groß ist wie der relative Unterschied in den Strömungsgeschwindigkeiten. Bei niedrigen Geschwindigkeitsverhältnissen sind i. a. jedoch auch die Stromdichten der Isotope gering, so daß größere Fehler bei der Berechnung des Trenneffektes höchstens in den Randzonen der Strömung ( $\vartheta^*$ < 0.1 bzw.  $\vartheta^*$ > 0.9) auftreten sollten. Durch eine analoge Überlegung kann man zeigen, daß auch ein Temperaturunterschied zwischen den Isotopen nur zu einem relativ geringen Fehler im Trenneffekt führen sollte.

Legt man die aus Sondenmessungen bekannte Asymmetrie der Geschwindigkeitsverteilung der Trenndüsenströmung zugrunde und nimmt man weiter an, daß sich die Strömungsgeschwindigkeiten der Isotope nicht stärker als die Wurzel aus den Molekulargewichten<sup>5)</sup> unterscheiden, so kann man davon ausgehen, daß der durch Störungen des lokalen thermischen Gleichgewichts verursachte Fehler bei der Bestimmung des Trenneffekts den statistischen Meßfehler im Isotopenverhältnis kaum übersteigen dürfte. Daher wurden in der vorliegenden Arbeit alle Messungen vereinfachend unter der Annahme von lokalem thermischen Gleichgewicht ausgewertet.

<sup>5)</sup> Die Frage des Geschwindigkeitsschlupfes in ternären Gasgemischen wurde durch Messungen an frei expandierenden Gasstrahlen im Übergangsgebiet zwischen Kontinuumsströmung und freier Molekularströmung in /11/ untersucht. Der hierbei beobachtete Geschwindigkeitsschlupf war immer merklich kleiner als die Wurzel aus dem relativen Massenunterschied der Gemischkomponenten.

#### 3. Apparatur und Versuchsdurchführung

#### 3.1 Auslegung der Meßapparatur

Der Druckbereich, in dem das Molekularsonden-Meßverfahren angewandt werden kann, ist durch den Durchmesser der Sonde, der klein gegen die mittlere freie Weglänge in der Strömung ist, nach oben begrenzt. Um in einem weiten Druckbereich messen zu können, ist es also wünschenswert, den Sondendurchmesser möglichst klein zu machen. Einer beliebigen Verkleinerung des Sondendurchmessers sind jedoch nicht nur aus mechanischen Gründen Grenzen gesetzt, sondern auch aus Gründen der Einstellzeit der Meßanordnung, da der Leitwert der Sonde die bestimmende Größe für die Einstellzeit und damit für die Meßzeit darstellt.

In früheren Arbeiten hat sich bereits gezeigt /8/, daß ein Durchmesser des Sondenröhrchens von etwa 0.4 mm hinsichtlich Festigkeit, Herstellbarkeit und Einstellzeit als untere Grenze anzusehen ist. Um eine molekulare Anströmung der Sonde zu gewährleisten, darf daher der mittlere Druck für He/SF<sub>6</sub>-Gemische mit einigen Mol-% SF<sub>6</sub> einige Zehntel Torr nicht überschreiten. Das bedeutet, daß der Betriebsdruck des bei Sondenmessungen eingesetzten Trennelementes um mindestens drei Größenordnungen niedriger sein muß als bei technischen Trennelementen. Dementsprechend müssen die charakteristischen Abmessungen des Trennelements, wie Düsenweite und Umlenkradius, um denselben Faktor größer sein, damit ähnliche Verhältnisse für die Strömung und Entmischung gewährleistet sind<sup>6)</sup>. Die Länge des Düsenschlitzes muß bei den für die

<sup>6)</sup> Entsprechend den Skalierungsgesetzen der Gaskinetik ist beim Trenndüsenverfahren der optimale Betriebsdruck umgekehrt proportional zu den charakteristischen Abmessungen der Trenndüse.

Trenndüsenströmung charakteristischen Reynolds-Zahlen (Re ≈ 100) etwa das zehnfache der Düsenweite betragen, damit sich in der Mittelebene des Trennelements eine von den seitlichen Begrenzungsflächen nicht gestörte, ebene Strömung ausbilden kann.

Bei der durch Schlitzlänge und Düsenweite gegebenen Querschnittsfläche ergibt sich je nach Betriebsdruck und Expansionsverhältnis ein Volumendurchsatz von 50 000 – 100 000 m<sup>3</sup>/h. Bei dem aus der großen Schlitzlänge resultierenden hohen Gasverbrauch kommt aus Wirtschaftlichkeitsgründen nur ein Verfahrenskreislauf in Frage. Diese Anforderungen hinsichtlich des Saugvermögens, sowie des Kreislaufbetriebs erfüllt eine im Institut für Kernverfahrenstechnik installierte Roots-Gebläseanlage.

#### 3.2 Verfahrenskreislauf

In Abb. 6 ist schematisch der Verfahrenskreislauf dargestellt. Das Verfahrensgas – ein Gemisch aus He, <sup>32</sup>SF<sub>6</sub> und <sup>34</sup>SF<sub>6</sub> – strömt aus dem Gasbehälter über ein motorisch steuerbares Regelventil in die Trennelementkammer. Dort stellen sich in einem Puffer ein konstanter Düsenvordruck und eine konstante Ruhetemperatur ein. Der Absaugdruck wird über einen Schieber eingestellt. Das Verfahrensgas wird über einen weiteren Pufferbehälter von der Roots-Gebläseanlage angesaugt, verdichtet und wieder dem Gasbehälter zugeleitet.

Die Roots-Gebläseanlage besitzt ein Saugvermögen von 100 000 m<sup>3</sup>/h bei Ansaugdrücken zwischen 0.01 und 0.5 Torr. Sie besteht aus zwei gleichen, parallel geschalteten Pumpsträngen, die in jeweils sechs Stufen des Verfahrensgases bis auf Atmosphärendruck verdichten können. Um

- 19 -



Abb. 6: Fließschema der Versuchsanordnung

einen verschmutzungsfreien Verfahrenskreislauf zu gewährleisten, werden zur Verdichtung des Gases ausschließlich Roots-Pumpen eingesetzt. Öldämpfe aus den Getrieberäumen der Roots-Pumpen werden dadurch vom Verfahrensgas ferngehalten, daß die Getrieberäume durch Drehschieberpumpen auf einem niedrigeren Druck gehalten werden als die Schöpfräume. Weiterhin trägt die hohe Dichtigkeit der Anlage (Leckrate < 10<sup>-4</sup> Torr l/sec) dazu bei, eine ausreichende Reinheit des Verfahrensgases über einen längeren Zeitraum sicherzustellen. Die bei der Verdichtungsarbeit anfallende Wärme wird in den ersten beiden Stufen über die große Oberfläche der Pumpengehäuse abgeführt. Bei den nachfolgenden Stufen wird die Wärme durch eine interne Gasumlaufkühlung abgegeben. Überströmventile schützen die einzelnen Stufen vor Überlastung. Druckund Temperaturschalter überwachen zusätzlich die Anlage. Zur Eichung des Massenspektrometers mit reinen Gasen, sowie zur Nullpunkteinstellung der Druckmeßgeräte kann die Trennelementkammer mit einem Turbomolekularpumpstand evakuiert werden.

Das Trennelement, an dem die Untersuchungen durchgeführt wurden, ist in Abb. 7 dargestellt. Die Trenndüsengeometrie ist der der technischen Trennelemente ähnlich und um den Faktor 1500 vergrößert. Das Trennelement ist auf einer Grundplatte aufgebaut. Der Umlenkradius r<sub>o</sub> beträgt 150 mm, die Düsenweite a 60 mm und die Schlitzlänge 500 mm. Die Abschälerweite f war bei den Messungen auf 21 mm bzw. 48 mm eingestellt. Die Höhenstellung h<sub>f</sub> des Abschälers betrug bei beiden Abschälerweite 122 mm. Im Absaugraum der schweren Fraktion ist eine aus mehreren Lamellen bestehende Drossel eingebaut, mit der der Gasstrom der schweren Fraktion geregelt werden kann.

Die Sonde besteht aus einem einseitig verschlossenen VA-Röhrchen mit einem Außendurchmesser von 0.4 mm, einem Innendurchmesser von 0.2 mm und einer seitlichen Öffnung von etwa 0.02 mm Durchmesser. Das Sondenröhrchen ist an seinem offenen Ende schachtelhalmartig mit stabileren



Abb. 7:Das bei den Messungen verwendete Trennelement<br/>mit Rückstaumöglichkeit der schweren Fraktion<br/>durch bewegliche Lamellen.<br/>Abmessungen:<br/>Düsenweitea = 60 mm<br/>150 mm<br/>e 150 mm<br/>f° = 21 bzw. 48 mm<br/>Höhenstellung des Abschälers h\_f = 122 mm<br/>Verrundungsradius d. Abschälerschneide: 6 mm

Röhrchen verlötet. Die Gesamtlänge beträgt 280 mm. Die Sonde ist in einem in Polarkoordinaten verstellbaren Schlitten eingebaut und um ihre Achse drehbar gelagert. Der Antrieb des Schlittens, sowie die Drehung der Sonde um ihre Achse erfolgen mit Schrittmotoren. Die Radialund Azimutalkoordinaten werden über Präzisionspotentiometer erfaßt, der Drehwinkel wird mit einem Winkelcodierer registriert.

#### 3.3 Meßanordnung der Isotopenverhältnismessung

Das Prinzip der Meßanordnung zur Bestimmung der Isotopentrennung ist in Abb. 8 dargestellt. Einem magnetischen



#### <u>Abb. 8:</u> Prinzip der Meßanordnung zur Bestimmung der Isotopentrennung in der Strömung.

Massenspektrometer, das zum gleichzeitigen Nachweis der Isotope mit einem Faraday-Doppelauffänger ausgerüstet ist, werden über ein automatisches Umschaltventil abwechselnd Gasproben zugeführt, die zum einen aus der Strömung, zum andern aus dem als Referenzgas dienenden, ruhenden Düsengas entnommen werden. Da die Referenzmessung ebenso wie die Sondenmessung unter molekularen Bedingungen erfolgen soll, wird das Düsengas über eine Öffnung entnommen, deren charakteristische Abmessung klein gegen die mittlere freie Weglänge im Düsengas ist. Die Größe der Öffnung ist variabel, so daß der Gaseinstrom in die Öffnung dem Gaseinstrom in die Sonde angepaßt und dadurch die Messung der Ionenstromverhältnisse in beiden Gasproben bei gleichem Signalpegel erfolgen kann. Das Verhältnis der Eichfaktoren  $B_{34}/B_{32}$  ist dann für beide Gasproben gleich, so daß sich eventuelle Änderungen der Eichfaktoren als Funktion des Signalpegels bei der Messung der relativen Isotopenverschiebung nicht fehlerhaft auswirken können. Unterschiedliche Heliumanteile in den beiden Gasproben wirken sich, wie durch Kontrollmessungen festgestellt wurde, auf das Verhältnis der Eichfaktoren bei SF<sub>6</sub>-Anteilen größer 1 Mol-% innerhalb der Meßgenauigkeit nicht aus.

Das Gaseinlaßsystem ist so konzipiert, daß durch den Umschaltvorgang zwischen Sonde und Referenz nur eine extrem geringe Verzögerung der Einstellzeit für die Isotopenverhältnismessung auftritt. Dies wird dadurch erreicht, daß das Umschaltventil einerseits ein extrem kleines Totvolumen besitzt, und andererseits der nicht zu analysierende Gasstrom jeweils über eine Pumpe abgeeugt wird, deren Saugvermögen dem der Ionenquelle angepaßt ist, so daß die stationären Strömungsverhältnisse in den Zuleitungen zum Massenspektrometer beim Umschalten zwischen den Gasproben nicht oder nur unwesentlich geändert werden. Diese Anordnung wirkt sich überdies positiv auf die Meßgenauigkeit aus, da die Gasbelastung der Ionenquelle gleichbleibend ist.

#### 3.4 Meßgenauigkeit

Der Fehler, mit dem die Änderung des lokalen Isotopenverhältnisses angegeben werden kann, hängt zu einen von dem Meßfehler bei der massenspektrometrischen Messung der Ionenstromverhältnisse und zum andern von den Meßfehlern für die Strömungsgröße S und den Sondenparameter D ab, die δ<sub>lok</sub> über das Einstromverhältnis beeinflussen. Bei

- 24 -

Störungen des thermischen Gleichgewichts kommen außerdem die in Kapitel 2.3 diskutierten Auswertefehler hinzu.

Bestimmend für den statistischen Meßfehler bei der Verhältnismessung ist die Größe des Ionenstroms des seltenen Isotops. Tabelle 1 zeigt die bei den Experimenten ermittelte Standardabweichung des Einzelwertes  $\Delta \delta^{7}$  in Abhängigkeit vom Ionenstrom des seltenen Isotops.

Ionenstrom des	Standardabweichung
seltenen Isotops	Δδ
< $1 \cdot 10^{-13}$ A	3 0/00 - 1 0/00
$1 \cdot 10^{-13}$ A - $5 \cdot 10^{-13}$ A	1 0/00 - 0.4 0/00
$5 \cdot 10^{-13}$ A - $2 \cdot 10^{-12}$ A	< 0.4 0/00
> $2 \cdot 10^{-12}$ A	< 0.2 0/00



In Strömungsbereichen, in denen ein  $SF_6$ -Aufteilungsverhältnis von größer 0.1 erreicht wurde, war die  $SF_6$ -Stromdichte hinreichend groß, so daß die Ionenströme des seltenen Isotops bei den in der vorliegenden Arbeit beschriebenen Untersuchungen über  $10^{-12}$  A waren. Die Standardabweichung für  $SF_6$ -Aufteilungsverhältnisse größer 0.1 lag daher unterhalb von 0.2 o/oo.

$$\Delta \delta = \sqrt{\frac{n}{\sum_{i=1}^{n} (\overline{\delta} - \delta_i)^2 / (n-1)}}.$$

Hierbei ist  $\overline{\delta}$  der Mittelwert und  $\delta$ , der Einzelwert der Messung. n ist die Anzahl der Messungen.

Die Standardabweichung des Einzelwertes ist definiert durch

Die Auswirkung möglicher Fehler in der Bestimmung des Geschwindigkeitsverhältnisses S und des Öffnungsparameters D auf das Einströmverhältnis wurde anhand numerischer Abschätzungen untersucht. Hierbei zeigte sich, daß bei einem angenommenen Meßfehler im Geschwindigkeitsverhältnis und im Öffnungsparameter von jeweils ± 10 % das Einstromverhältnis maximal um 0.4 o/oo vom tatsächlichen Wert abweichen kann, d. h. bei den hier angenommenen Fehlern kann der Meßwert des Isotopenverhältnisses mit einem Absolutfehler von maximal ± 0.4 o/oo behaftet sein. Fehler in der Stromdichtebestimmung haben im Elementareffekt der Isotopentrennung einen vergleichsweise geringen Einfluß, da der radiale Verlauf der Stromdichte des leichten Isotops bei der Berechnung der Aufteilungsverhältnisse sowohl des leichten als auch des schweren Isotops verwendet wird.

#### 4. Experimentelle Ergebnisse

Bei den Untersuchungen zum Einfluß des Rückstaus muß man dem Sachverhalt Rechnung tragen, daß die Einstellung eines vorgegebenen Sollabschälverhältnisses sowohl mit einer Änderung der Abschälerweite als auch mit einer Änderung des Absaugdrucks der schweren Fraktion verbunden ist. Die Sondenmessungen wurden dementsprechend bei zwei verschiedenen Abschälerweiten durchgeführt, wobei der Absaugdruck der schweren Fraktion jeweils zwischen dem Absaugdruck der leichten Fraktion und dem maximalen Rückstaudruck bei geschlossenem Drosselventil der schweren Fraktion variiert wurde. Dabei wurden immer volle Strömungsquerschnitte ausgemessen und für jede Stromfläche bzw. jedes Aufteilungsverhältnis der zugeordnete Wert des Trenneffektes bestimmt, so daß die Wirkung des Rückstaus auf die Trenneigenschaften des Zentrifugalfeldes vollständig und eindeutig erfaßt werden konnte.

Da sich bereits bei Trennversuchen mit UF<sub>6</sub> gezeigt hatte /7/, daß die durch Rückstau mögliche Verbesserung des Elementareffekts der Isotopentrennung im Bereich des optimalen Betriebspunktes der Trenndüse unabhängig vom Einlaßdruck, vom Expansionsverhältnis der leichten Fraktion und von der Gemischkonzentration ist, wurde bei den vorliegenden Untersuchungen auf eine Variation dieser Betriebsparameter verzichtet. Bei allen Messungen wurde ein Düsenvordruck von 0.2 Torr und ein Expansionsverhältnis der leichten Fraktion von 2.5 eingestellt – als Verfahrensgas wurde ein He/SF<sub>6</sub>-Gemisch mit 4 Mol-% SF<sub>6</sub> verwendet.

- 4.1 <u>Strömungsfeld und räumlicher Verlauf der Entmischung</u> bei großer Abschälerweite
- 4.1.1 <u>Messungen bei gleichen Absaugdrücken von leichter</u> und schwerer Fraktion

Die Abbildungen 9 und 10 geben einen Überblick über das Strömungsfeld und den räumlichen Verlauf der Gemisch- und



Abb. 9: Verlauf der SF<sub>6</sub>-Stromlinien  $\vartheta_{SF}^{*}$  = 0.1, 0.3, 0.5 0.7 und 0.9 in der Trenndüse bei<sup>6</sup>großer Abschälerweite (f = 48 mm) für gleiche Absaugdrücke in leichter und schwerer Fraktion.



<u>Abb. 10a:</u> Abhängigkeit des Gemischgeschwindigkeitsverhältnisses und der Differenz zwischen dem statischen Druck und dem Absaugdruck der leichten Fraktion in der Trenndüse vom SF<sub>6</sub>-Aufteilungsverhältnis und vom Umlenkwinkel $\varphi$ bei großer Abschälerweite (f = 48 mm) für gleiche Absaugdrücke in leichter und schwerer Fraktion. Die gerasterte Fläche kennzeichnet die Position des Abschälers.





Abb. 1ob: Abhängigkeit des logarithmischen Gemischtrennfaktors und des Elementareffekts der Isotopentrennung in der Trenndüse vom SF<sub>6</sub>-Aufteilungsverhältnis und vom UmlenkwinkelΨ bei großer Abschälerweite (f = 48 mm) für gleiche Absaugdrücke in leichter und schwerer Fraktion. Die gerasterte Fläche kennzeichnet die Position des Abschälers. Т

Isotopentrennung bei gleichen Absaugdrücken in leichter und schwerer Fraktion. Die Abschälerweite ist hierbei mit f = 48 mm (f/r<sub>o</sub> = 0.32) auf einen Wert eingestellt, bei dem das SF<sub>6</sub>-Aufteilungsverhältnis bei gleichen Absaugdrücken in leichter und schwerer Fraktion deutlich unter dem Sollabschälverhältnis der Trenndüse ( $\vartheta_u$  = 0.25 bzw. 0.33) liegt.

In Abb. 9 ist der Stromlinienverlauf der schweren Gemischkomponente in die Trenndüsenkontur eingezeichnet. Am Einlauf in die Trenndüse weisen insbesondere die Stromlinien für große Aufteilungsverhältnisse eine zur Krümmung der Umlenkwand entgegengesetzte Krümmung auf. Innerhalb des Umlenkbereiches besitzen die Stromlinien annähernd die Form konzentrischer Kreise. Am Ende der Umlenkung werden die inneren Stromlinien deutlich zu kleineren Radien verschoben, wie aus dem Verlauf der auf den Abschäler zulaufenden Stromlinie  $\vartheta_{SF_6}^* = 0.1$  hervorgeht.

Abb. 10a zeigt in dreidimensionaler Darstellung das Gemischgeschwindigkeitsverhältnis<sup>8)</sup> und die Differenz zwischen dem statischen Druck in der Strömung und dem Absaugdruck der leichten Fraktion in Abhängigkeit vom SF<sub>6</sub>-Aufteilungsverhältnis und vom Umlenkwinkel  $\varphi$ . Das Gemischgeschwindigkeitsverhältnis besitzt am Beginn der Umlenkung ( $\varphi = 0^{\circ}$ ) das für eine Anlaufströmung typische

$$S_{gem} = \frac{x_{He} \cdot \sqrt{m_{He}} \cdot S_{He} + x_{SF_6} \cdot \sqrt{m_{SF_6}} \cdot S_{SF_6}}{\sqrt{x_{He} \cdot m_{He} + x_{SF_6} \cdot m_{SF_6}}}$$

Hierbei sind x<sub>He</sub> und x<sub>SF</sub> die lokalen Molenbrüche, S<sub>He</sub> und S<sub>SF6</sub> die lokalen<sup>6</sup>partiellen Geschwindigkeitsverhältnisse und m<sub>He</sub> und m<sub>SF6</sub> die Molekulargewichte der Gemischkomponenten.

<sup>8)</sup> Das Gemischgeschwindigkeitsverhältnis S wird als Verhältnis der mittleren Massengeschwindigkeit und der mittleren thermischen Geschwindigkeit berechnet. Es gilt

trapezförmige Profil. Nach einer Umlenkung um 30<sup>0</sup> hat sich bereits ein parabelförmiges Profil ausgebildet, was auf den starken Einfluß der Reibung hinweist. Die Strömung wird etwa bis zum Umlenkwinkel  $\varphi$  = 120<sup>0</sup> beschleunigt und es wird dort ein maximales Gemischgeschwindigkeitsverhältnis von etwa 0.8 erreicht. Weiter stromabwärts wird die Strömung wieder abgebremst, wobei sich vor dem Abschäler eine ausgeprägte Stauzone ausbildet. Der statische Druck ist im Einlaufquerschnitt (  $\varphi = 0^{\circ}$ ) nahezu unabhängig vom SF<sub>6</sub>-Aufteilungsverhältnis, d. h. im Einlaufquerschnitt liegen keine größeren radialen Druckunterschiede vor. Im Bereich zwischen  $\Psi = 0^{\circ}$  und  $\Psi = 90^{\circ}$ fällt der statische Druck am Strahlinnenrand (  $\vartheta^{\star_{=}}$  O ) bis auf den Absaugdruck p<sub>l</sub> der leichten Fraktion ab. An der Umlenkwand erfolgt der azimutale Druckabfall im wesentlichen im Winkelbereich zwischen  $\Psi = 30^{\circ}$  und  $\Psi = 90^{\circ}$ . Für größere Umlenkwinkel bleibt der statische Druck an der Umlenkwand annähernd konstant und liegt um etwa 50 % über dem Absaugdruck der leichten Fraktion. Auch im Verlauf des statischen Drucks ist die Stauzone vor dem Abschäler deutlich zu erkennen.

Abb. 10b zeigt die Abhängigkeit des Elementareffekts  $\varepsilon_A$ der Isotopentrennung und des logarithmischen Gemischtrennfaktors lnA vom SF<sub>6</sub>-Aufteilungsverhältnis und vom Umlenkwinkel  $\varphi$ . Man erkennt, daß  $\varepsilon_A$  und lnA mit zunehmendem Umlenkwinkel und abnehmendem Aufteilungsverhältnis monoton ansteigen. Am Einlauf der Trenndüse ( $\varphi = 0^\circ$ ) sind  $\varepsilon_A$  und lnA negativ, d. h. die schwere Komponente ist hier als Folge der vorangegangenen gegensinnigen Stromlinienkrümmung (vgl. Abb. 9) am Strahlinnenrand angereichert. Diese gegensinnige Entmischung wird in den Strömungsbereichen an der Umlenkwand erst im Winkelbereich zwischen  $\varphi = 30^\circ$ und  $\varphi = 60^\circ$  aufgehoben. Merkliche Unterschiede im räumlichen Verlauf von Isotopen- und Gemischtrennung sind insbesondere bei größeren Umlenkwinkeln zu erkennen. Zum einen ist bei kleinen SF6-Aufteilungsverhältnissen die relative Zunahme des Trenneffektes in Strömungsrichtung stärker als die des logarithmischen Gemischtrennfaktors. Zum anderen ist erkennbar, daß der Trenneffekt an der Umlenkwand in Strömungsrichtung allmählich einer Sättigung zustrebt, während der logarithmische Gemischtrennfaktor noch beinahe unvermindert ansteigt. In den radialen Strömungsquerschnitten vor dem Abschäler ist die Abhängigkeit des Trenneffekts vom SF6-Aufteilungsverhältnis deutlich steiler als die des logarithmischen Gemischtrennfaktors.

#### 4.1.2 Messungen bei Rückstau der schweren Fraktion

Abb. 11 zeigt den Verlauf der SF<sub>6</sub>-Stromlinien bei Rückstau der schweren Fraktion. Wie aus Vergleich mit Abb. 9 hervorgeht, wird bis  $\varphi \approx 90^{\circ}$  die Lage der Stromlinien durch Rückstau im Rahmen der Meßgenauigkeit nicht verändert. Im Umlenkwinkelbereich zwischen  $\varphi = 90^{\circ}$  und  $\varphi = 140^{\circ}$ 



Abb. 11: Verlauf der SF<sub>6</sub>-Stromlinien  $\vartheta_{SF6}^{*}$ = 0.1, 0.3, 0.5,0.7 und 0.9 in der Trenndüse bei großer Abschälerweite (f= 48 mm) und Rückstau der schweren Fraktion (Rückstauverhältnis p<sub>s</sub>/p<sub>1</sub>= 1.71).

werden die Stromlinien durch den Rückstau zunehmend zu kleineren Radien verlagert,d.h. die Stromlinienkrümmung wird in diesem Bereich insgesamt verstärkt. Im Strömungsbereich vor dem Abschäler ( $\varphi = 140^{\circ}$  bis  $\varphi = 160^{\circ}$ ) nimmt die Krümmung der inneren, in die leichte Fraktion laufenden Stromlinien noch weiter zu, während die Krümmung der äußeren Stromlinien deutlich abnimmt (vgl. auch Abb.19).

Die zunehmende Verdrängung des Strahls von der Umlenkwand mit wachsendem Rückstau der schweren Fraktion wird durch Abb. 12 verdeutlicht, in der für einen radialen Querschnitt unmittelbar vor dem Abschäler ( $\Psi = 160^{\circ}$ ) der auf den Umlenkradius normierte Abstand der SF6-Stromlinien von der Umlenkwand in Abhängigkeit vom Rückstauverhältnis  $p_s/p_1$  dargestellt ist. Bei schwachem Rückstau ( $p_s/p_1 < 1.5$ ) reagieren zunächst insbesondere die Strom-



<u>Abb. 12:</u> Die durch Rückstau bewirkte radiale Verschiebung  $(r_0-r)/r_0$  der SF<sub>6</sub>-Stromlinien im Strahlquerschnitt vor dem Abschäler ( $\varphi$  =160<sup>0</sup>) bei großer Abschäler-weite (f =48 mm). Der gerasterte Bereich gibt die Lage des Abschälers an.

linien am Strahlinnenrand auf den erhöhten Druck der schweren Fraktion und entfernen sich von der Umlenkwand, während die äußeren Stromlinien ihre Lage kaum verändern, der Strahl weitet also auf. Bei einem Rückstauverhältnis von etwa 1.7 setzt eine beinahe sprungartige Verdrängung der Stromlinien von der Umlenkwand ein, hier führt bereits eine geringe Änderung des Rückstauverhältnisses zu einer großen Strahlverschiebung und damit auch zu einer großen Änderung im Abschälverhältnis. Bei vollständig geschlossenem Drosselventil im Absaugkanal der schweren Fraktion wird ein maximales Rückstauverhältnis von 1.78 erreicht. Der maximal erreichbare Absaugdruck der schweren Fraktion ist also deutlich höher als der statische Druck, der sich am Außenrand des Zentrifugalfeldes bei gleichen Absaugdrücken in leichter und schwerer Fraktion einstellt (vgl. Abb. 10a).

Abb. 13 zeigt den Einfluß des Rückstaus der schweren Fraktion auf den radialen Verlauf des Gemischgeschwindigkeitsverhältnisses, des statischen Drucks und des SF<sub>6</sub>-Aufteilungsverhältnis. In der linken Bildhälfte sind die Meßergebnisse für den radialen Querschnitt beim Umlenkwinkel  $\Psi$  = 140<sup>0</sup>, in der rechten Bildhälfte für den unmittelbar vor dem Abschäler liegenden Querschnitt (  $\Psi$  = 160<sup>0</sup>) aufgetragen.

Man erkennt, daß das maximale Gemischgeschwindigkeitsverhältnis im Querschnitt bei  $\Psi = 140^{\circ}$  mit zunehmendem Rückstau abnimmt und daß das Maximum von S<sub>gem</sub> entsprechend der radialen Verschiebung des Strahls zu kleineren Radien verlagert wird. Beim Umlenkwinkel  $\Psi = 160^{\circ}$  steigt mit zunehmendem Rückstau das Geschwindigkeitsverhältnis des in die leichte Fraktion strömenden Gases an, während der in die schwere Fraktion strömende Teil immer langsamer wird. Bei starkem Rückstau (p<sub>s</sub>/p<sub>1</sub> = 1.75) bildet sich an der Umlenkwand eine Zone mit sehr niedrigem Geschwindigkeitsverhält-



<u>Abb. 13:</u> Einfluß des Rückstaus der schweren Fraktion auf den radialen Verlauf des Gemischgeschwindigkeitsverhältnisses, des statischen Drucks und des SF<sub>6</sub>-Aufteilungsverhältnisses bei großer Abschälerweite (f = 48 mm) im Querschnitt bei  $\Psi$  = 140<sup>0</sup> und im unmittelbar vor dem Abschäler liegenden Querschnitt bei  $\Psi$  = 160<sup>0</sup>. Der gerasterte Bereich gibt die Abschälerposition an.

nis aus, die stromabwärts zunehmend breiter wird. Das Profil des Geschwindigkeitsverhältnisses weist hierbei den für eine Strömungsablösung typischen Wendepunkt auf. Der statische Druck an der Umlenkwand wird in beiden Querschnitten mit zunehmendem Rückstau angehoben, während der statische Druck am Strahlinnenrand annähernd konstant bleibt. Beim Rückstauverhältnis 1.75 ist die radiale Druckdifferenz zwischen Umlenkwand und Strahlinnenrand fast doppelt so groß wie bei gleichen Absaugdrücken in leichter und schwerer Fraktion. Die Druckdifferenz im Strömungsbereich zwischen Umlenkwand und Abschäler ist, verglichen mit der zwischen Abschäler und Strahlinnenrand, gering und verschwindet ganz bei starkem Rückstau. In der Stauzone unmittelbar vor dem Abschäler erreicht der statische Druck ein Maximum.

Die Änderungen im radialen Verlauf des SF<sub>6</sub>-Aufteilungsverhältnisses mit zunehmendem Rückstau verdeutlichen wieder die Verschiebung des Strahls zu kleineren Radien. Im Querschnitt bei  $\varphi = 160^{\circ}$  ergeben sich bei Rückstau ( $p_s/p_1 = 1.75$ ) aufgrund einer Rückströmung an der Umlenkwand formal Aufteilungsverhältnisse  $\Im_{SF_6}^{*}$  größer eins. In Abb. 14, in der die Normalkomponente der SF<sub>6</sub>-Stromdichte über dem Radius im Querschnitt bei  $\varphi = 160^{\circ}$  aufgetragen ist, ist diese Rückströmung, die hier etwa 4 % des gesamten Gasstroms ausmacht, unmittelbar ersichtlich.



#### Abb. 14:

Nachweis der Rückströmung an der Umlenkwand bei starkem Rückstau der schweren Fraktion, gezeigt am radialen Verlauf der Normalkomponente der SF<sub>6</sub>-Stromdichte im Querschnitt beim Umlenkwinkel  $\Psi = 160^{\circ}$  (Rückstauverhältnis  $p_s/p_1 = 1.75$ , Abschälerweite f = 48 mm). Abb. 15 zeigt die Rückstauabhängigkeit der Isotopen- und Gemischtrennung für ein vorgegebenes SF<sub>6</sub>-Aufteilungsverhältnis  $\vartheta_{\rm SF_6}^{\ast}$  = 1/3 bei den Umlenkwinkeln  $\varphi$  = 140° und  $\varphi$  = 160°. Mit zunehmendem Rückstauverhältnis steigen  $\varepsilon_A$ 



<u>Abb. 15:</u> Die für ein vorgegebenes SF -Aufteilungsverhältnis  $\Im_{SF}^{s}$  = 1/3 gemessene Rückstauabhängigkeit der Isotöpen- und Gemischtrennung bei großer Abschälerweite (f = 48 mm) für die Strahlquerschnitte bei den Umlenkwinkeln  $\Psi$  = 140° und  $\Psi$  = 160°.

und lnA in beiden Querschnitten zunächst nur sehr langsam an. Erst bei einem Rückstauverhältnis größer 1.6 erfolgt ein relativ steiler Anstieg der Trennung bis zum Rückstauverhältnis 1.75. Die relative Zunahme des Elementareffekts der Isotopentrennung ist im Querschnitt bei

 $\Psi = 160^{\circ}$  deutlich größer als bei  $\Psi = 140^{\circ}$ , während die relative Zunahme des logarithmischen Gemischtrennfaktors in beiden Querschnitten etwa gleich groß ist. Bei maximalem Rückstau ( $p_s/p_1 = 1.78$ ) fällt die Trennung beim Umlenkwinkel  $\Psi = 160^{\circ}$  wieder ab.

Wie aus Abb. 16 hervorgeht, steigen unter dem Einfluß des Rückstaus Isotopen- und Gemischtrennung für alle SF<sub>6</sub>-

- 37 -



<u>Abb. 16:</u> Die im Fall großer Abschälerweite (f = 48 mm) als Folge des Rückstaus der schweren Fraktion über der gesamten Strahlbreite gemessene Zunahme der Isotopen- und Gemischtrennung (Umlenkwinkel  $\varphi$  = 140° und  $\varphi$  = 160°).

Aufteilungsverhältnisse, d. h. im gesamten Strahlquerschnitt, an. Die relative Zunahme des Gemischtrennfaktors ist bei beiden Umlenkwinkeln etwa gleich groß und vom Aufteilungsverhältnis weitgehend unabhängig. Hingegen nimmt der Trenneffekt beim Umlenkwinkel  $\Psi = 140^{\circ}$  bevorzugt für kleine Aufteilungsverhältnisse, beim Umlenkwinkel  $\Psi = 160^{\circ}$  bevorzugt für große Aufteilungsverhältnisse bei Rückstau zu.

In Abb. 17 sind zusammenfassend die wichtigsten Ergebnisse zum Einfluß des Rückstaus der schweren Fraktion auf



<u>Abb. 17:</u> Einfluß des Rückstaus der schweren Fraktion auf den Trenneffekt, den logarithmischen Gemischtrennfaktor und das Gemischgeschwindigkeitsverhältnis für ein vorgegebenes SF<sub>6</sub>-Aufteilungsverhältnis  $\vartheta_{\rm SF}^{*}$  = 1/3, sowie auf die radiale Druckdifferenz zwischen <sup>6</sup>Außenund Innenrand der Strömung bei großer Abschälerweite (f = 48 mm) im Strahlquerschnitt beim Umlenkwinkel  $\Psi$  = 140<sup>°</sup>.

die Strömung und die Trenneigenschaften für ein  $SF_6$ -Aufteilungsverhältnis 1/3 am Beispiel des Strömungsquerschnittes  $\Psi$  = 140<sup>0</sup> dargestellt. Man erkennt, daß ein Anstieg der Gemisch- und Isotopentrennung direkt mit einem entsprechenden Anstieg der radialen Druckdifferenz im Strahl korreliert ist. Es ist weiter ersichtlich, daß die Zunahme der radialen Druckdifferenz und die Zunahme der Trennung nicht etwa auf einer Erhöhung der Azimutalgeschwindigkeit beruhen, sondern im Gegenteil sogar mit einer Abnahme des Geschwindigkeitsverhältnisses verbunden sind.

### 4.2 <u>Einfluß der Abschälerweite auf das Strömungsfeld und</u> den räumlichen Verlauf der Entmischung

## 4.2.1 <u>Messungen bei gleichen Absaugdrücken in leichter</u> und schwerer Fraktion

Abb. 18 zeigt einen Vergleich der Strömungsprofile für die Abschälerweiten f = 48 mm (f/r<sub>o</sub> = 0.32) und f = 21 mm (f/r<sub>o</sub> = 0.14) bei gleichen Absaugdrücken in leichter und schwerer Fraktion. In Abhängigkeit vom Radius sind das Gemischgeschwindigkeitsverhältnis, der statische Druck und das SF<sub>6</sub>-Aufteilungsverhältnis im Querschnitt bei  $\Psi$  = 140<sup>o</sup>, sowie in einem Querschnitt unmittelbar vor dem Abschäler ( $\Psi$  = 160<sup>o</sup> für f = 48 mm bzw.  $\Psi$  = 164<sup>o</sup> für f = 21 mm) dargestellt<sup>9</sup>.

Im Querschnitt bei  $\varphi$  = 140<sup>0</sup> werden bei der kleinen Abschälerweite im gesamten mittleren Strahlbereich um bis zu 20 % höhere Geschwindigkeitsverhältnisse erzielt. Im Querschnitt unmittelbar vor dem Abschäler liegt das Maximum des Geschwindigkeitsverhältnisses bei der kleinen Ab-

<sup>9)</sup> Da bei der Verkleinerung der Abschälerweite die Abschälerhöhenstellung beibehalten wird, rückt die Abschälerschneide zu einem größeren Umlenkwinkel (vgl. Abb. 7).



<u>Abb. 18:</u> Vergleich der Strömungsprofile für große und kleine Abschälerweiten bei gleichen Absaugdrükken in leichter und schwerer Fraktion im Strahlquerschnitt beim Umlenkwinkel  $\varphi = 140^{\circ}$  und in Strahlquerschnitten unmittelbar vor dem Abschäler ( $\varphi = 160^{\circ}$  für f = 48 mm und  $\varphi = 164^{\circ}$  für f = 21 mm). Die gerasterten Bereiche geben die Abschälerpositionen an.

schälerweite in der leichten Fraktion, bei der großen Abschälerweite in der schweren Fraktion.

Der statische Druck an der Umlenkwand ist im Querschnitt bei  $\varphi$  = 140<sup>0</sup> für beide Abschälerweiten gleich hoch; im inneren Strahlbereich ist der statische Druck bei der kleinen Abschälerweite um etwa 10 % niedriger und liegt sogar unter dem Absaugdruck der leichten Fraktion. Auch im Querschnitt unmittelbar vor dem Abschäler ist der statische Druck im inneren Strahlbereich bei der kleinen Abschälerweite deutlich niedriger als bei großer Abschälerweite und liegt ebenfalls unter dem Absaugdruck der leichten Fraktion. Unmittelbar an der Umlenkwand ist der statische Druck bei der kleinen Abschälerweite dagegen um etwa 10 % höher als bei der großen Abschälerweite. Die Druckabsenkung am Strahlinnenrand und die Druckanhebung an der Umlenkwand beim Verkleinern der Abschälerweite hat zur Folge, daß die radiale Druckdifferenz im Querschnitt vor dem Abschäler bei f = 21 mm um etwa 50 % größer ist als bei f = 48 mm. Der Druckanstieg im Bereich vor dem Abschäler ist bei der kleinen Abschälerweite wesentlich ausgeprägter als bei der großen Abschälerweite; der statische Druck in dieser Stauzone übersteigt sogar den Druck an der Umlenkwand.

Aus dem Verlauf des SF<sub>6</sub>-Aufteilungsverhältnisses ist zu entnehmen, daß bei Verkleinern der Abschälerweite der Strahl bei  $\varphi$  = 140<sup>0</sup> geringfügig und im Querschnitt unmittelbar vor dem Abschäler deutlich zu kleineren Radien verschoben wird.

Weitere Aufschlüsse über das Zentrifugalfeld können aus Abb. 19 entnommen werden, in der die Änderung der Strömungsrichtung  $\Delta\beta^{10}$  zwischen den beiden Strahlquerschnitten bei  $\Psi = 140^{\circ}$  und  $\Psi = 160^{\circ}$  dargestellt ist. Man erkennt, daß bei der großen Abschälerweite lediglich die in die leichte Fraktion laufenden SF6-Stromlinien (  $\mathfrak{F}_{SF6}^{*} < 0.1$ )

<sup>10)</sup> Die Größe Δβ kann als Maß für die mittlere Stromlinienkrümmung im Strömungsbereich vor dem Abschäler aufgefaßt werden. Verlaufen die Stromflächen konzentrisch zur Umlenkwand, ist definitionsgemäß Δβ gleich 20°.





Anderung der Strömungsrichtung  $\Delta\beta$  zwischen den Strahlquerschnitten bei  $\varphi$  = 140° und  $\varphi$  = 160° bei großer und kleiner Abschälerweite (f = 48 mm und 21 mm) für gleiche Absaugdrücke in leichter und schwerer Fraktion. Die Skizze rechts oben gibt die Definition der Winkeländerung  $\Delta\beta$  an.

stärker umgelenkt werden, als in einer zur Umlenkwand konzentrischen Strömung , während bei allen übrigen in die schwere Fraktion laufenden Stromlinien die Krümmung im Mittel nur halb so groß ist wie bei konzentrischer Umlenkung. Bei der kleinen Abschälerweite ist die mittlere Krümmung für die SF<sub>6</sub>-Aufteilungsverhältnisse in der leichten Fraktion ( $\vartheta_{SF6}^{*} < 0.7$ ) deutlich größer und nur für die unmittelbar an der Umlenkwand in die schwere Fraktion strömenden Bereiche kleiner als bei einem zur Umlenkwand konzentrischen Stromlinienverlauf.

Aus Abb. 20 geht hervor, daß für gleiche Absaugdrücke in leichter und schwerer Fraktion bei der kleineren Abschälerweite für alle SF6-Aufteilungsverhältnisse ein um 20 – 30 % höherer Elementareffekt der Isotopentrennung erreicht wird. Der logarithmische Gemischtrennfaktor ist bei der kleineren Abschälerweite für SF6-Aufteilungsverhältnisse  $\Im_{SF6}^{*}$  0.7 ebenfalls deutlich höher als bei der großen Abschälerweite, die mit der Verkleinerung der Abschälerweite verbundene Zunahme von InA ist allerdings nur etwa halb so groß wie die Zunahme von  $\varepsilon_A$ .



<u>Abb. 20:</u> Vergleich des Trennverhaltens bei großer und kleiner Abschälerweite im Falle gleicher Absaugdrücke in leichter und schwerer Fraktion anhand der Abhängigkeit der Isotopen- und Gemischtrennung vom SF<sub>6</sub>-Aufteilungsverhältnis im Strömungsquerschnitt unmittelbar vor dem Abschäler ( $\Psi$  = 160° für f = 48 mm und  $\Psi$  = 164° für f = 21 mm).

#### 4.2.2 Messungen bei Rückstau der schweren Fraktion

Abb. 21 gibt einen Überblick über den Einfluß des Rückstaus und der Abschälerweite auf das Verhalten der Strömung und der Entmischung in der Trenndüse. Aufgetragen sind in Abhängigkeit vom Rückstauverhältnis der Trenneffekt, der logarithmische Gemischtrennfaktor und das Gemischgeschwindigkeitsverhältnis jeweils beim SF<sub>6</sub>-Aufteilungsverhältnis  $\mathfrak{F}_{SF}^*$  = 1/3, sowie die radiale Druckdifferenz im Querschnitt bei  $\Psi$  = 140°.

Bei der kleinen Abschälerweite bleibt der Trenneffekt bis hin zum maximal erreichbaren Rückstauverhältnis, das für



<u>Abb. 21:</u> Vergleich des Rückstaueinflusses auf Strömung und Entmischung bei großer und kleiner Abschälerweite (f = 48 mm und 21 mm). Dargestellt sind der Trenneffekt, der logarithmische Gemischtrennfaktor und das Gemischgeschwindigkeitsverhältnis für ein vorgegebenes SF<sub>6</sub>-Aufteilungsverhältnis <sup>3</sup>S<sub>F</sub> = 1/3, sowie die radiale Druckdifferenz zwischen Außen- und Innenrand der Strömung in Abhängigkeit vom Rückstauverhältnis im Strahlquerschnitt beim Umlenkwinkel φ = 140°.

f = 21 mm p<sub>s</sub>/p<sub>1</sub> = 1.62 beträgt, annähernd konstant<sup>11)</sup>. Bei der großen Abschälerweite ist der Trenneffekt für die Stromfläche  $\vartheta_{SF_6}^{*}$  = 1/3 bei gleichen Absaugdrücken

<sup>11)</sup> Die Abhängigkeit des maximal erreichbaren Rückstauverhältnisses von der Abschälerweite wurde in /7/ ausführlich untersucht. Es zeigte sich, daß das maximal erreichbare Rückstauverhältnis mit abnehmender Abschälerweite kleiner wird.

in beiden Fraktionen, wie bereits Abb. 20 zu entnehmen war, deutlich niedriger als bei der kleinen Abschälerweite. Durch Rückstau der schweren Fraktion kann jedoch der Trenneffekt bei der großen Abschälerweite über den Wert bei kleiner Abschälerweite angehoben werden. Der Anstieg des Trenneffekts erfolgt bei der großen Abschälerweite jedoch erst bei Rückstauverhältnissen, die größer sind als das maximale Rückstauverhältnis bei der kleinen Abschälerweite. Beim Gemischtrennfaktor ergibt sich ein ähnliches Verhalten, wobei allerdings ein leichter Anstieg bei der kleinen Abschälerweite mit zunehmendem Rückstau zu beobachten ist.

Die radiale statische Druckdifferenz liegt bei jeweils gleichem Rückstauverhältnis bei der kleinen Abschälerweite – ebenso wie der Trenneffekt und der logarithmische Gemischtrennfaktor – über dem entsprechenden Wert bei großer Abschälerweite. Bei der kleinen Abschälerweite erreicht man jedoch nicht so hohe Absolutwerte von  $\Delta p_{stat}$ bzw.  $\varepsilon_A$  und lnA wie bei großer Abschälerweite, bei der das maximale Rückstauverhältnis deutlich höher ist. Das Gemischgeschwindigkeitsverhältnis liegt bei kleinerer Abschälerweite geringfügig über den entsprechenden Werten bei großer Abschälerweite und nimmt ebenfalls mit zunehmendem Rückstauverhältnis ab.

#### 5. Diskussion der Ergebnisse

Die vorliegenden Messungen zeigen eine weitgehende Parallele zwischen dem für ein bestimmtes Aufteilungsverhältnis der Strömung definierten lokalen Trennund der lokalen Differenz der statischen Drücke effekt am Innen- und Außenrand der gekrümmten Strömung<sup>12)</sup>. Eine Vergrößerung der Abschälerweite bei gleichen Absaugdrücken in leichter und schwerer Fraktion führt zu einer Verminderung des statischen Drucks an der Umlenkwand und einer Druckerhöhung am Strahlinnenrand, d.h. die radiale Druckdifferenz im Strömungsbereich vor dem Abschäler wird mit zunehmender Abschälerweite geringer, dementsprechend nehmen auch der Elementareffekt der Isotopentrennung und der Gemischtrennfaktor für alle Aufteilungsverhältnisse ab. Ursache für die geringe radiale Druckdifferenz ist zum einen die Nachexpansion des in die schwere Fraktion eintretenden Gasstromes, dessen statischer Druck deutlich höher ist als der Absaugdruck der schweren Fraktion, wenn kein Rückstau erfolgt. Bei der Nachexpansion ändert die Stromlinienkrümmung entsprechend der Geometrie des Absaugraumes der schweren Fraktion ihr Vorzeichen. Der damit verbundene Abbau des Zen-

<sup>12)</sup> Es sei an dieser Stelle nochmals darauf hingewiesen, daß in der vorliegenden Arbeit streng zwischen den Begriffen "Abschälverhältnis" und "Aufteilungsverhältnis" unterschieden wird. Mit Abschälverhältnis wird der Anteil der Strömung bezeichnet, der durch den Abschäler vom Gesamtstrom abgetrennt und mit der leichten Fraktion aus dem Trennelement abgeführt wird. Das Aufteilungsverhältnis bezeichnet hingegen den nach Gl.(3) aus dem Stromdichteverlauf berechneten Teilstrom zwischen der inneren Berandung der Strömung und einer Stromfläche,d.h. einer Fläche, über die kein Nettotransport der jeweils betrachteten Gemischkomponente erfolgt.

trifugalfeldes wirkt sich umso weiter stromaufwärts vom Abschäler aus, je größer die Abschälerweite ist, da diese Dimension unmittelbar die Ausdehnung des Einflußbereichs der Nachexpansion bestimmt. Mit zunehmender Abschälerweite wird zum anderen der Abstand zwischen dem Abschäler und dem Düsenblech vermindert, was zu erhöhten Druckverlusten im Absaugkanal der leichten Fraktion führt. Dementsprechend wird die Druckabsenkung am Strahlinnenrand mit zunehmender Abschälerweite geringer; insbesondere kommt es bei großer Abschälerweite zu keiner Überexpansion am Strahlinnenrand, bei der der statische Druck unter dem Absaugdruck der leichten Fraktion absinkt. Die Verminderung der entmischenden Zentrifugalkräfte wird also sowohl durch die verminderte Stromlinienkrümmung aufgrund der Nachexpansion der schweren Fraktion als auch durch den zunehmenden Strömungswiderstand aufgrund des schmäler werdenden Absaugkanals der leichten Fraktion verursacht <sup>13)</sup>.

Eine Erhöhung des Absaugdrucks der schweren Fraktion durch Rückstau führt zu einer Zunahme der Trennung.

<sup>&</sup>lt;sup>13)</sup>Bei Labortrennversuchen mit H<sub>2</sub>/UF<sub>6</sub>-Gemischen stellt man fest, daß der Elementareffekt der Isotopentrennung mit abnehmendem Uranabschälverhältnis im Bereich sehr kleiner Abschälverhältnisse abfällt, während die Modellrechnungen zur Entmischung in der Trenndüse /2/ eine kontinuierliche Zunahme des Trenneffekts mit abnehmendem Aufteilungsverhältnis liefern. Diese scheinbare Diskrepanz zwischen Theorie und Experiment kann nach den Sondenmessungen auf den Abbau des Zentrifugalfeldes bei Vergrößerung der Abschälerweite zurückgeführt werden, der Trenneffekt nimmt zwar auch bei großer Abschälerweite kontinuierlich mit zunehmendem Aufteilungsverhältnis zu, der Absolutwert des Trenneffekts bei vorgegebenem Aufteilungsverhältnis nimmt jedoch mit zunehmender Abschälerweite ab.

Eine deutliche Steigerung des Elementareffekts der Isotopentrennung und des Gemischtrennfaktors setzt insbesondere dann ein, wenn der Gaseinstrom in die schwere Fraktion so stark gedrosselt wird, daß es zu einer deutlichen Zunahme des statischen Drucks an der Umlenkwand kommt. Die Drosselung des Gaseinstroms bzw. die damit verbundene Erhöhung des Absaugdrucks der schweren Fraktion führt zu einer Verminderung des Geschwindigkeitsverhältnisses und der Stromdichte am Außenrand des Zentrifugalfeldes. Da hierbei der Gasdurchsatz durch die Trenndüse nicht verändert wird und keine zusätzlichen Strömungsverluste<sup>14)</sup> auftreten, kann die Wirkung des Rückstaus im wesentlichen als eine weitgehend verlustfreie Umsetzung von dynamischem Druck in statischen Druck am Außenrand der Strömung aufgefaßt werden, durch welche die radiale Druckdifferenz im Strahl vergrößert und die Strömung auf kleinere Bahnradien abgedrängt wird.<sup>15)</sup>.

<sup>14)</sup> Die Strömungsverluste können direkt aus der Entropiezunahme in der Strömung bestimmt werden. Die Entropieänderung zwischen dem Ruhezustand des Gases und dem Zustand in einem Strömungsquerschnitt wird hierbei aus dem mit der Stromdichte gemittelten Staudruck des Gemisches berechnet. Der Nachweis, daß die Strömungsverluste in der Trenndüse durch den Rückstau innerhalb der Fehlergrenze nicht beeinflußt werden, wurde bereits in einer früheren Untersuchung erbracht/12/.

<sup>15)</sup> Neben der Drosselung des Gasstroms durch das Regelventil der schweren Fraktion sind für das Druckfeld im Strömungsbereich vor dem Abschäler zwangsläufig auch die Form des Abschälers und der Strömungswiderstand des Kanals zwischen Abschäler und Umlenkwand maßgebend. Der Strömungswiderstand dieses Kanals bewirkt, allerdings nur bei entsprechend kleiner Abschälerweite, auch ohne Drosselung des Gasstroms durch das Regelventil bereits einen Aufstau der Strömung bzw. eine Erhöhung des statischen Drucks an der Umlenkwand.

Der statische Druck am Strahlaußenrand kann umso mehr erhöht werden, je größer die Abschälerweite ist, davorausgesetzt am Abschäler liegt immer das Sollabschälverhältnis vor – dem gleichen Gasstrom ein größerer Strömungsquerschnitt zur Verfügung steht, die Strömungsgeschwindigkeit der schweren Fraktion ist bei der großen Abschälerweite deshalb geringer, ihr statischer Druck höher. Diese Möglichkeit zur Erhöhung des statischen Drucks am Außenrand kann, wie insbesondere aus Abb. 21 zu entnehmen ist, die Nachteile der ungünstigeren Absaugbedingungen bei größerer Abschälerweite überkompensieren.

Die Vergrößerung der radialen Druckdifferenz durch Rückstau ist zum einen durch die Ablösung der Strömung von der Umlenkwand begrenzt, da hier die Strömung bei weiterer Drosselung des Gaseinstroms in die schwere Fraktion nur zu kleineren Bahnradien verschoben wird, ohne daß der statische Druck am Außenrand noch nennenswert ansteigt. Zum anderen ist für die Begrenzung der radialen Druckdifferenz der Strömungswiderstand des Absaugkanals der leichten Fraktion entscheidend: denn je größer der in die leichte Fraktion abgeführte Gasstrom ist, umso höher ist der Druckverlust im Raum zwischen Düsenblech und Abschäler, so daß zwangsläufig der statische Druck am Innenrand des Zentrifugalfeldes ansteigen muß. Man beobachtet deshalb bei großer Abschälerweite und starkem Rückstau wieder eine Abnahme der radialen Druckdifferenz ( vgl. Abb. 21 ).

Die bei den Untersuchungen zum Rückstau beobachtete enge Korrelation zwischen der radialen Druckdifferenz einerseits und der Isotopen- und Gemischtrennung andererseits wird verständlich, wenn man den Radialterm der Impuls-

- 50 -

gleichung der Strömung betrachtet <sup>17)</sup>. Hiernach ist die Differenz der statischen Drücke zwischen dem Innenrand und dem Außenrand der Strömung gleich dem Integral der Zentrifugalkraft über den radialen Strahlquerschnitt bzw. gleich der Änderung der potentiellen Energie zwischen dem Innenrand und dem Außenrand des Zentrifugalfeldes. In diesem Sinn kann der Rückstau der schweren Fraktion als eine spezielle Maßnahme betrachtet werden, durch welche ein für die Trennung nicht ausnutzbarer hoher dynamischer Druck am Außenrand des Strömungsfeldes in statischen Druck umgewandelt wird und entsprechend der Impulsgleichung der Strömung die entmischenden Zentrifugalkräfte erhöht werden. Als allgemeines Ergebnis der vorliegenden Untersuchungen kann man demnach festhalten, daß es für die Trennung im gesamten Strömungsfeld günstig ist, wenn die äußeren Strömungsbereiche - ausgehend vom Ruhezustand des Gases - nur schwach expandiert werden, so daß die Strömungsgeschwindigkeiten und die Reibungsverluste gering und der statische Druck hoch ist. Für die Strömungsbereiche am Strahlinnenrand sollten die Randbedingungen hingegen so gewählt werden, daß möglichst hohe Geschwindigkeiten und entsprechend niedrige statische Drücke erzielt werden.

Herrn Prof. Dr. E.W. Becker danken wir für das der Arbeit entgegengebrachte Interesse und für wertvolle Diskussionen.

<sup>17)</sup>Vernachlässigt man Geschwindigkeitsänderungen in Strömungsrichtung, so gilt

$$\Delta p = \int_{\Gamma_1}^{\Gamma_0} \frac{\rho v^2}{r} dr$$

(ρ = Massendichte, v = Strömungsgeschwindigkeit)

#### Literaturverzeichnis

- /1/ Becker, E,W., Bier, W., Ehrfeld, W., Schubert, K., Schütte, R., Seidel, D.: Physics and Technology of Separation Nozzle Process. Proceedings of the Paris Conference Progress in Nuclear Energy Series 1976, Pergamon Press Oxford and New York
- /2/ Becker, E.W., Bier, W., Ehrfeld, W., Eisenbeiß, G.: Die physikalischen Grundlagen der Uran-235-Anreicherung nach dem Trenndüsenverfahren – Die Wirkung des leichten Zusatzgases. Z. f. Naturforschung, 26a (1971) S. 1377
- /3/ Becker, E.W., Syllus Martins Pinto C., Völcker, H.: Development and Technical Implementation of the Separation Nozzle Process for Enrichment of Uranium 235. Winter Meeting of the American Nuclear Society, San Francisco (1977)
- /4/ Becker, E.W., Bier, W., Fritz, W., Happe, P., Plesch, D., Schubert, K., Schütte, R., Seidel, D.: Current Status of Separation Nozzle Technology. Proceedings of the International Conference on Uranium Isotope Separation, London (1975)
- /5/ Becker, E.W., Berkhahn, W., Bley, P., Ehrfeld, U., Ehrfeld, W., Knapp, U.: Physics and Development Potential of the Separation Nozzle Process. Proceedings of the International Conference on Uranium Isotope Separation, London (1975)
- /6/ Schütte, R.: Das gasdynamische Betriebsverhalten und die Kriterien der inhärenten Stabilität von Trenndüsenkaskaden zur U-235-Anreicherung. KFK 1986 (1974).
- /7/ Bley, P., Ehrfeld, W., Heiden, U.: Uranisotopenentmischung in der Trenndüse bei Rückstau der schweren Fraktion. KFK 2580 (1978)
- /8/ Bier, K., Brandtstädter, H., Ehrfeld, U., Ehrfeld, W.: Untersuchung des Strömungsverlaufs von He/Ar- und He/SF<sub>6</sub>-Gemischen in der Trenndüse mit molekular angeströmten Drucksonden. KFK 1440 (1971)

- /9/ Hughes, P.C.: Theory for the Free-Molecular Impact Probe at an Arbitrary Angle of Attack. UTIAS Report No. 1o3 (1965)
- /1o/ Ehrfeld, U., Ehrfeld, W.: Untersuchungen zum Einfluß von Wärmetransportvorgängen auf den Strömungsverlauf und die Entmischung in der Trenndüse mit molekular angeströmten Druck- und Temperatursonden. KFK 1634 (1972)
- /11/ Cattolica, R.J., Gallagher, R.J., Anderson J.B., Talbot, L.: Velocity Slip and Translational Non-Equilibrium of Ternary Gas Mixtures in Free Jet Expansions. AIAA 10th Fluid and Plasmadynamics Conference, Albuquerque (1977)

,

/12/ Ehrfeld, U. (1976) unveröffentlicht.