

KERNFORSCHUNGSZENTRUM

KARLSRUHE

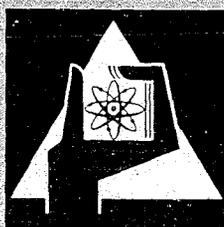
Juli 1968

KFK 826

Institut für Kernverfahrenstechnik

Entmischung der Uranisotope in einer zehnstufigen
Trenndüsen-Versuchsanlage

E. W. Becker, G. Frey, R. Schütte, D. Seidel



GESELLSCHAFT FÜR KERNFORSCHUNG M. B. H.

KARLSRUHE

Entmischung der Uranisotope in einer zehnstufigen Trenndüsen-Versuchsanlage

Von E. W. Becker, G. Frey, R. Schütte und D. Seidel, Karlsruhe

Die meisten in Betrieb befindlichen oder für die unmittelbare Zukunft geplanten Kernreaktoren benötigen für die Erstausrüstung und für den fortlaufenden Betrieb Uran mit künstlich erhöhtem Uran-235-Gehalt. Bei den schnellen Brutreaktoren ist zwar ein laufender Betrieb ohne Uran-235 möglich, doch wird für die Erstausrüstung auch bei diesen Reaktoren Kernbrennstoff mit erhöhtem Uran-235-Gehalt in Erwägung gezogen. Die Trennung der Uranisotope wird daher noch für mehrere Jahrzehnte eine wichtige Aufgabe der Kerntechnik sein.

Die Kernreaktoren der westlichen Welt werden überwiegend aus den Diffusions-Trennanlagen der USA mit Uran-235-Konzentrat versorgt. Wegen ihrer militärischen Vorgeschichte haben diese Anlagen eine so große Trennkapazität, daß sie z. Z. noch nicht von der Reaktortechnik ausgelastet werden können. In 5—10 Jahren wird der Bedarf an Uran-235 für Kernreaktoren aber so stark gestiegen sein, daß die Kapazität der z. Z. vorhandenen Anlagen nicht mehr ausreicht. Da die Planung und der Bau neuer Trennanlagen einige Jahre erfordert, hat man sich schon jetzt mit der Frage zu befassen, nach welchem Verfahren die für die Zukunft vorzusehenden Trennanlagen arbeiten sollen. Neben dem Diffusionsverfahren wurde bisher hauptsächlich das Zentrifugenverfahren in Erwägung gezogen.

Wir haben in den letzten Jahren ein weiteres Verfahren zur Anreicherung von Uran-235 entwickelt, das auf der teilweisen räumlichen Entmischung verschieden schwerer Komponenten in einer auf gekrümmten Bahnen laufenden Überschallströmung beruht [1]—[10]. Die als Trenndüsenverfahren bezeichnete Methode vermeidet die feinporigen Membranen des Diffusionsverfahrens und die mechanisch hoch belasteten Teile des Zentrifugenverfahrens.

Wie bei den anderen Methoden muß der elementare Entmischungseffekt durch Zusammenschalten von Trennelementen in einer Kaskade vervielfacht werden. Für die Beurteilung der wirtschaftlichen Aussichten des Verfahrens ist eine genaue Kenntnis der gasdynamischen Stabilität bzw. des Regelverhaltens einer solchen Kaskade erforderlich. Wir haben daher eine zehnstufige Trenndüsen-Versuchsanlage für die Entmischung der Uranisotope erstellt, über deren Aufbau [11] und Inbetriebnahme in der vorliegenden Arbeit kurz berichtet werden soll.

Aufbau der Anlage

Abb. 1a zeigt einen Querschnitt der verwendeten Trenndüse zusammen mit den vorgesehenen Betriebsbedingungen [9], [10]. Ein Gemisch von 5 Mol-% UF₆ und 95 Mol-% Helium wird mit der Stromstärke L unter dem Düsenvor-

Im Institut für Kernverfahrenstechnik des KFK wurde in den letzten Jahren eine als Trenndüsen-Verfahren bezeichnete Methode zur Anreicherung von U-235 entwickelt. Sie vermeidet die Schwierigkeiten, die beim Diffusionsverfahren durch feinporige Membranen und beim Zentrifugenverfahren durch mechanisch hochbelastete Teile gegeben sind. Zur Beurteilung der wirtschaftlichen Aussichten wurde eine 10stufige Trenndüsen-Versuchsanlage erstellt, über deren Aufbau und Inbetriebnahme berichtet wird. Die Anlage, die am 23. 11. 67 erstmals mit He/UF₆-Gemisch in Betrieb genommen wurde, arbeitet stabil und liefert die vorgesehene Entmischung.

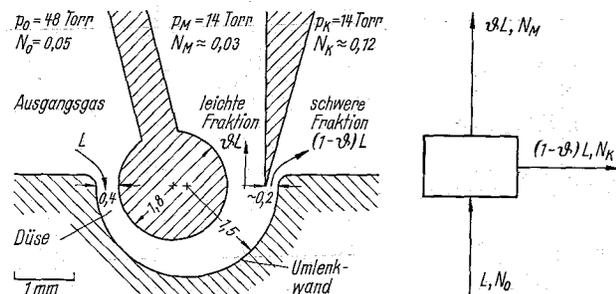


Abb. 1a (links): Querschnitt der Trenndüse mit vorgesehenen Betriebsbedingungen.

N_0 , N_K und N_M sind Molenbrüche des UF₆ in dem als Arbeitsgas benutzten He/UF₆-Gemisch
Maßangaben in mm

Abb. 1b (rechts): Ersatzschaltbild für das Trennelement.

druck $P_0 = 48$ Torr einer gekrümmten Laval-Düse zugeführt. Sie besteht aus einer Umlenkwand mit einem Krümmungsradius $r = 1,5$ mm und einem dazu exzentrisch angebrachten Vollzylinder von 1,8 mm Durchmesser. Die engste Düsenweite beträgt 0,40 mm. In der Düse expandiert das Gasgemisch auf den Druck $P_M = 14$ Torr. An der Stelle, wo die Strömung die Umlenkwand verläßt, ist in 0,2 mm Abstand von der Wand eine messerförmige Schneide angebracht, die als Abschäler bezeichnet wird. Durch den Abschäler wird der Strahl in eine leichte Fraktion mit der molaren Stromstärke ϑL und eine schwere Fraktion mit der molaren Stromstärke $(1 - \vartheta) L$ aufgespalten.

Der mit den Molenbrüchen n_M und n_K des U-235 in der leichten bez. schweren Fraktion des UF₆ gebildete elementare Trenneffekt

$$\varepsilon_A = \frac{n_M(1-n_K)}{(1-n_M)n_K} - 1 \quad (1)$$

beträgt unter den in Abb. 1a angegebenen Betriebsbedingungen

$$\varepsilon_A \approx 8 \cdot 10^{-3} \quad (1a)$$

Aus den in Abb. 1a angegebenen UF₆-Molenbrüchen N_0 , N_M und N_K im Ausgangsgas, in der leichten und schweren Fraktion, ergibt sich das Gesamtabschälverhältnis

$$\vartheta = \frac{N_0 - N_K}{N_M - N_K} \approx 0,8 \quad (2)$$

und das UF₆-Abschälverhältnis

$$\vartheta_{UF_6} = \frac{N_M}{N_0} \vartheta \approx 0,5 \quad (3)$$

Abb. 1b zeigt das im folgenden benutzte Ersatzschaltbild des Trennelementes.

Anschrift der Verfasser:

Prof. Dr. E. W. Becker, Dr. G. Frey, Dr. R. Schütte, Dr. D. Seidel, alle Institut für Kernverfahrenstechnik der Universität und des Kernforschungszentrums Karlsruhe, 75 Karlsruhe, Postfach Kernreaktor.

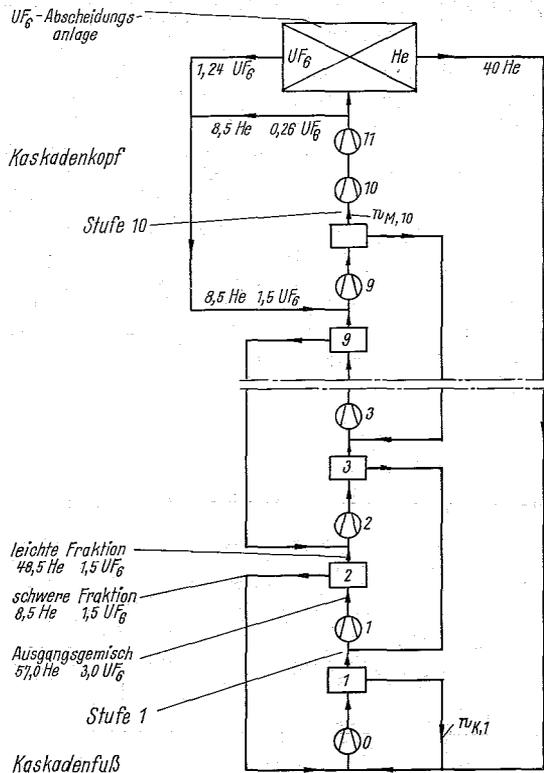


Abb. 2: Prinzipschaltbild der Trenndüsenkaskade für den Betrieb ohne Produktentnahme.

Die Zahlen vor He bzw. UF₆ bezeichnen die Stromstärken in gMol/h

Für den vorgesehenen Wert des UF₆-Abschälverhältnisses $\vartheta_{UF_6} = 0,5$ hat die Zusammenschaltung der Stufen so zu erfolgen, daß die leichte Fraktion eines Trennelementes über den zu dieser Stufe gehörenden Verdichter der folgenden Stufe zugeleitet wird, während dieser Verdichter gleichzeitig die schwere Fraktion der übernächsten Stufe ansaugt¹⁾. Für den Betrieb der Kaskade ohne Produktentnahme ist das entsprechende Prinzipschaltbild in Abb. 2

¹⁾ Auf Grund der Voruntersuchungen [8], [10] erscheint es nicht ausgeschlossen, daß bei einer großtechnischen Anlage $\vartheta_{UF_6} = 0,33$ günstiger wäre. Die leichte Fraktion müßte dann der übernächsten Stufe zugeführt werden.

angegeben. Die dort eingetragenen Stromstärken der verschiedenen Verfahrensgasströme (in gMol/h) stellen die Auslegungswerte für die verwendeten Trenndüsen mit 100 mm Düsenlänge (in Abb. 1a senkrecht zur Zeichenebene) dar. Man bemerkt, daß infolge der Entmischung zwischen Helium und UF₆ ein Nettostrom an Helium zum Kaskadenkopf auftritt, während die UF₆-Ströme bei exakter Einhaltung von $\vartheta_{UF_6} = 0,5$ lediglich zwischen den Stufen der Kaskade zirkulieren²⁾.

Der Nettotransport an Helium erfordert die Abtrennung eines entsprechenden Heliumstromanteils aus der leichten Fraktion der Kopfstufe 10. Diese Aufgabe übernimmt die in Abb. 2 eingezeichnete UF₆-Abscheidungsanlage, die das zu verarbeitende Gemisch über den Kompressor 11 erhält. Sie besteht aus 2 Tieftemperaturfallen, in denen das UF₆ im Wechselbetrieb mit flüssigem Stickstoff ausgefroren wird. Das von UF₆ befreite Helium strömt zum Kaskadenfuß, während der aus dem Verfahrensgas ausgeschiedene UF₆-Anteil in den Kaskadenkopf zurückgeleitet oder dort durch neues UF₆ ersetzt wird. Im zweiten Fall, bei dem infolge des UF₆-Ersatzes die Isotopenzusammensetzung am Kaskadenkopf konstant bleibt, ergibt sich eine maximale Anreicherung des schweren Isotopes am Kaskadenfuß. Im ersten Fall hängt die Isotopenverschiebung gegenüber dem Ausgangsmaterial vom Verhältnis der in der Kaskade und in der UF₆-Abscheidungsanlage vorhandenen UF₆-Mengen ab.

Für den mit den Molenbrüchen $n_{M,10}$ und $n_{K,1}$ des leichten Isotopes in der leichten Fraktion am Kaskadenkopf bzw. in der schweren Fraktion am Kaskadenfuß gebildeten Kaskaden-Anreicherungsfaktor

$$A_K = \frac{n_{M,10}(1-n_{K,1})}{n_{K,1}(1-n_{M,10})} \quad (4)$$

ist in beiden Fällen

$$A_K = (\varepsilon_A + 1)^{10} \approx 1,083 \quad (4a)$$

zu erwarten.

Zur Wiederverdichtung des in den Trenndüsen expandier-

²⁾ In einer produzierenden Trenndüsenkaskade würde eine Einspeisung von Ausgangsmaterial in Form von UF₆ an einer geeigneten Stelle im Mittelteil der Kaskade erfolgen. Die Entnahme von angereicherterem Produkt-UF₆ bzw. an U-235 verarmtem Abfall-UF₆ geschähe am Kopf bzw. Fuß der Kaskade. Die entsprechenden, relativ geringen Materialströme würden sich den in Abb. 2 angegebenen Zirkulationsströmen überlagern.

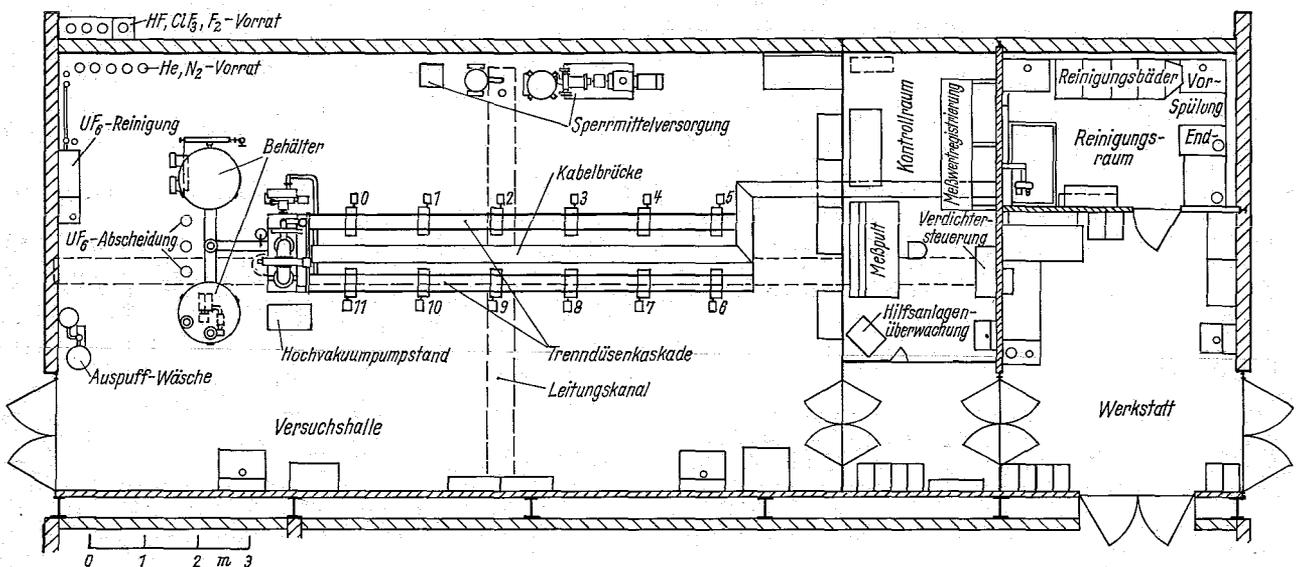


Abb. 3: Aufstellungsplan der Anlage.

ten Verfahrensgases werden UF_6 -feste Rootsverdichter³⁾ verwendet, die, zusammen mit den übrigen Details der einzelnen Trennstufe, in einer früheren Arbeit [9], [10] beschrieben sind. Das zum Abdichten und Kühlen der Wellendurchführungen benutzte Halocarbonöl wird von einer zentralen Sperrmittelversorgung umgepumpt und rückgekühlt.

Zum Evakuieren der Anlage und zum Entgasen der inneren Oberflächen ist ein Hochvakuumpumpstand vorgesehen. Er enthält eine Oldiffusionspumpe mit einer Saugleistung von 3000 l/s, die über eine mit flüssigem Stickstoff gekühlte Falle an eine Hauptvakuumleitung angeschlossen ist. Das Vorvakuum wird von einer 2stufigen Sperrschieberpumpe (Saugleistung 90 m³/h) mit vorgeschalteter Roots Pumpe (Saugleistung 400 m³/h) aufrechterhalten. Alle Teile, die mit dem Verfahrensgas in Berührung kommen, bestehen aus vakuumerschmolzenem austenitischem Edelstahl, Werkstoff Nr. 1.4571.

Die Anlage wurde entsprechend dem Aufstellungsplan Abb. 3 in einer Halle von 8,4 m · 22,5 m Grundfläche untergebracht. Die 10 Stufen der Trenndüsenkaskade sind, zusammen mit den Kompressoren 0 und 11, in U-Form angeordnet, wodurch sich ein relativ kurzes Leitungssystem ergibt. Die Kühlwasser-, Sperrmittel- und Starkstromleitungen sind in Kanälen im Fußboden verlegt. Die Kabel der elektrischen Meßwertübermittlung⁴⁾ liegen in einer über der Trennkaskade aufgehängten Brücke. Abb. 4 zeigt die Trenndüsenkaskade, vom Kontrollturm aus gesehen.

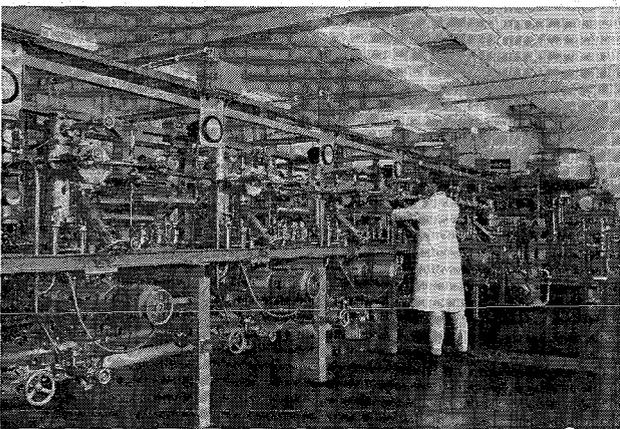


Abb. 4: Ansicht der Trenndüsenkaskade, vom Kontrollturm aus gesehen (im Hintergrund ein Vorratsbehälter und ein Teil der UF_6 -Abscheidungsanlage).

Inbetriebnahme der Anlage

Vor der Inbetriebnahme der Anlage⁵⁾ wurden die Einzelstufen der Kaskade sowie Abschnitte der UF_6 -Abscheidungsanlage und des Hochvakuumpumpstandes mit einem Lecksuch-Massenspektrometer verbunden und einzeln in ein Plastikzelt eingehüllt, in das Helium eingeblasen wurde. Durch Registrierung der Anzeige des Lecksuchgerä-

³⁾ Bei einer technischen Realisierung des Trenndüsenverfahrens würden Turboverdichter verwendet werden. Bei der Pilot-Anlage wurden Rootsverdichter trotz ihres wesentlich schlechteren Wirkungsgrades benutzt, da sie sich ohne große Schwierigkeiten für den gewünschten, sehr kleinen Durchsatz bauen lassen. Dabei mußte eine Beschränkung des Absolutdruckes und des Kompressionsverhältnisses in Kauf genommen werden. Bei der technischen Realisierung mit Turboverdictern würde nach dem heutigen Stand der Entwicklung der optimale Ansaugdruck $P_M = 150$ Torr und der optimale Düsen-vordruck $P_0 = 600$ Torr betragen.

⁴⁾ Die meßtechnische Ausrüstung der Anlage, an der maßgeblich Herr Dipl.-Ing. Plesch beteiligt war, soll an anderer Stelle beschrieben werden.

⁵⁾ Die Trenndüsenkaskade mit UF_6 -Abscheidungsanlage und Hochvakuumpumpstand wurde nach den im Institut für Kernverfahrenstechnik erarbeiteten Konstruktionsunterlagen von der Fa. W. C. Heraeus, Hanau, gebaut. Die UF_6 -festen Rootsverdichter lieferte die Fa. E. Leybold's Nachf., Köln.

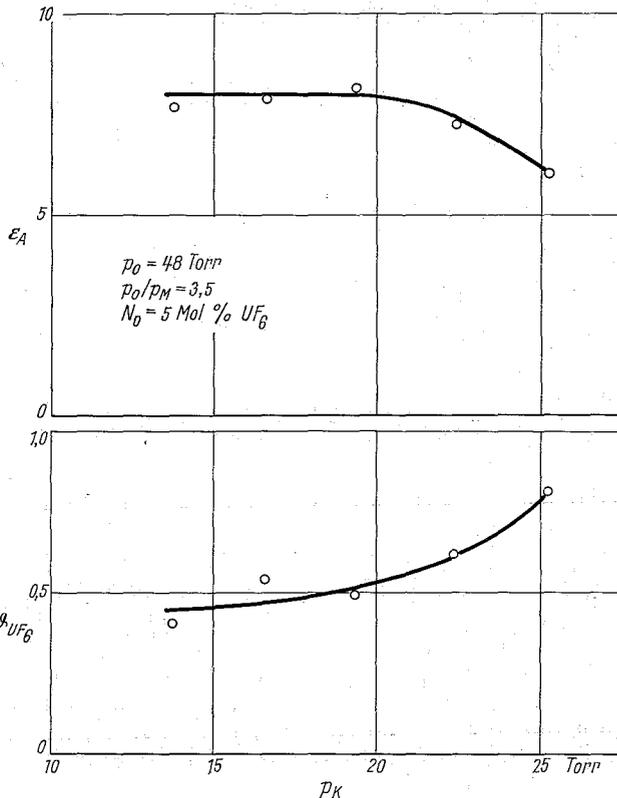


Abb. 5: Die Abhängigkeit des elementaren Trenneffektes ε_A und des UF_6 -Abschälverhältnisses φ_{UF_6} vom Gegendruck P_K der schweren Fraktion, gemessen an einem repräsentativen Trennelement.

ε_A in Einheiten von 10^{-3}

tes auf einem Linienschreiber war eine Unterscheidung zwischen dem Heliumeinstrom durch ein Leck und der im allgemeinen wesentlich größeren Heliumpermeation durch die Viton-O-Ringe möglich, da die beiden Effekte mit verschiedenen Zeitkonstanten verlaufen. Für die Eichung wurde ein aus der Zeltatmosphäre versorgtes Standardleck benutzt. Messungen des Druckanstieges in den abgesperrten Einzelstufen ergaben Maximalwerte von $2 \cdot 10^{-4}$ Torr/h. Vor dem Einfüllen des He/UF_6 -Gemisches wurde die Anlage bei $70^\circ C$ ausgeheizt⁶⁾ und anschließend mit einem Gemisch aus Chlortrifluorid und Stickstoff passiviert.

Der zu der benutzten Schaltung gehörende Wert des UF_6 -Abschälverhältnisses $\varphi_{UF_6} = 0,5$ läßt sich durch geeignete Wahl des Abschälerabstandes beim Zusammenbau der Trennelemente nur mit einer gewissen Fehlergrenze einstellen. In der früheren Arbeit [9], [10] wurde zunächst vorgesehen, die Feinregulierung von φ_{UF_6} durch Verändern des Expansionsverhältnisses P_0/P_M durchzuführen. Es zeigte sich jedoch, daß eine Regulierung von φ_{UF_6} durch Verändern von P_0/P_K regelungstechnische Vorteile bieten kann. Die Trennelemente wurden daher beim Zusammenbau so eingestellt, daß sich bei $P_0/P_K = P_0/P_M = 3,5$ ein UF_6 -Abschälverhältnis von etwa 0,45 ergibt. Für alle Elemente wurde dann in der früher beschriebenen einstufigen Apparatur [9], [10] die in Abb. 5 gezeigte Abhängigkeit des Elementareffektes ε_A und des UF_6 -Abschälverhältnisses φ_{UF_6} vom Expansionsverhältnis P_0/P_K der schweren Fraktion bei konstantem Expansionsverhältnis P_0/P_M der leichten Fraktion aufgenommen. P_0/P_K wurde dabei mit einem in der Absaugleitung der schweren Fraktion liegenden Drosselventil verändert. Auf Grund dieser

⁶⁾ Die Kaskade wurde abschnittsweise unter einem Zelt aus flammgeschützten Planen erwärmt. Die Beheizung erfolgte durch elektrische Heizlüfter, die die Zeltatmosphäre umwälzten.

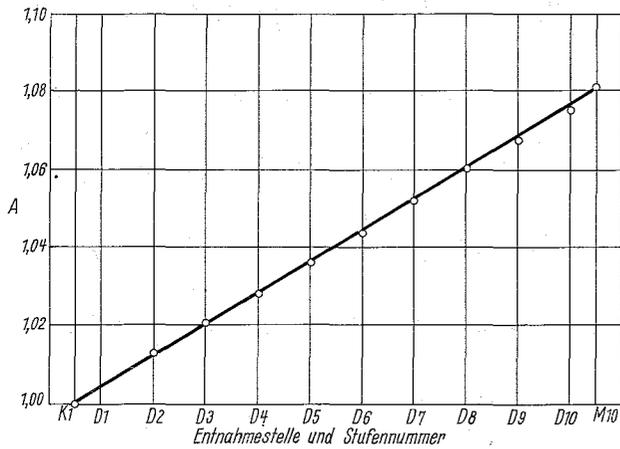


Abb. 6: Der Verlauf des gegen die schwere Fraktion der Stufe 1 gemessenen U-235-Anreicherungsfaktors A (Gl. 5) längs der Kaskade.

Entnahmestellen: K bzw. M — schwere bzw. leichte Fraktion
D — Düsengas

Eichkurven ließen sich die vorgesehenen Betriebsbedingungen in der Trennkaskade mit den Regelventilen unter Beobachtung der Drücke relativ leicht einstellen.

Die Anlage wurde am 23. 11. 67 erstmals mit He/UF₆-Gemisch in Betrieb genommen. Sie arbeitete von Anfang an stabil. Abb. 6 zeigt den Verlauf des Anreicherungsfaktors längs der Anlage (Gl. 5).

$$A = \frac{n(1-n_{K,1})}{n_{K,1}(1-n)} \quad (5)$$

Dabei bedeutet $n_{K,1}$ den Molenbruch des leichten Isotops in der schweren Fraktion am Kaskadenfuß und n den Molenbruch des

leichten Isotops an den auf der Abszisse angegebenen Entnahmestellen der Kaskade (K = schwere Fraktion, M = leichte Fraktion, D = Düsengas, 1, 2 . . . Stufennummer). Für den mit den Molenbrüchen $n_{M,10}$ und $n_{K,1}$ gebildeten max. Anreicherungsfaktor A_K (Gl. 4) entnimmt man aus Abb. 6 den Wert 1,082, der innerhalb der Fehlergrenze mit dem aus dem elementaren Trenneffekt ε_A vorausberechneten Wert (Gl. 4a) übereinstimmt.

Weitere Versuche haben gezeigt, daß die Anlage auch bei ungleichmäßig eingestellten UF₆-Abschälverhältnissen stabil arbeitet. Man kann daher davon ausgehen, daß bei einer technischen Realisierung des Trenddüsenverfahrens keine ernstlichen Regelprobleme auftreten.

DK 621.039.341.4

Eingegangen am 15. 3. 68

Literatur

- [1] E. W. Becker, K. Bier, H. Burghoff: Z. Naturforschg. 10a, 565 (1955).
- [2] E. W. Becker, W. Beyrich, K. Bier, H. Burghoff, F. Zigan: Z. Naturforschg. 12a, 609 (1957).
- [3] E. W. Becker, R. Schütte: Z. Naturforschg. 15a, 336 (1960).
- [4] E. W. Becker, H. Burghoff, J. Gspann: Z. Naturforschg. 16a, 955 (1961).
- [5] F. Zigan: Z. Naturforschg. 17a, 772 (1962).
- [6] E. W. Becker, K. Bier, W. Bier: Z. Naturforschg. 17a, 778 (1962).
- [7] E. W. Becker, K. Bier, W. Bier, R. Schütte: Z. Naturforschg. 18a, 246 (1963).
- [8] E. W. Becker, K. Bier, W. Bier: Z. Chemie-Ing.-Techn. 39, 1 (1967).
- [9] R. Schütte, D. Seidel: Z. Chemie-Ing.-Techn. 39, 80 (1967).
- [10] E. W. Becker, K. Bier, W. Bier, R. Schütte, D. Seidel: Angew. Chemie Intern. Edit. 6, 507 (1967).
- [11] Weitere konstruktive Einzelheiten sind beschrieben in: E. W. Becker, G. Frey, R. Schütte: Planung und Bau einer 10stufigen Pilotanlage für das Trenddüsenverfahren, KFK-Bericht 702, Kernforschungszentrum Karlsruhe, 1968.