

November 1976 Institut für Kernverfahrenstechnik KFK 2351

# Berechnung der Uranisotopenentmischung in der Trenndüse bei kleinen UF<sub>6</sub>-Molenbrüchen im Zusatzgas

W. Berkhahn, W. Ehrfeld, G. Krieg



Als Manuskript vervielfältigt

Für diesen Bericht behalten wir uns alle Rechte vor

GESELLSCHAFT FÜR KERNFORSCHUNG M.B.H. KARLSRUHE

## KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE

KFK 2351

Institut für Kernverfahrenstechnik

# BERECHNUNG DER URANISOTOPENENTMISCHUNG IN DER TRENNDÜSE BEI KLEINEN UF<sub>6</sub>-MOLENBRÜCHEN IM ZUSATZGAS

von

- W. Berkhahn
- W. Ehrfeld
- G. Krieg

Gesellschaft für Kernforschung m.b.H. Karlsruhe

### Zusammenfassung

Zur theoretischen Untersuchung der Trenndüsenentmischung wurde ein vereinfachtes Diffusionsmodell für kleine UF<sub>6</sub>-Molenbrüche im Zusatzgas entwickelt. Für diesen Grenzfall können die Diffusionsvorgänge für das leichte und das schwere Isotop entkoppelt werden, und die partiellen Differentialgleichungen des Diffusionsvorganges lassen sich für das zylindersymmetrische Problem der Trenndüse durch einen Produktansatz in eine Azimutal- und eine Radialgleichung separieren, deren Lösungen nur einen geringen Rechenaufwand erfordern. Die Lösung der Azimutalgleichung ist eine Exponentialfunktion, die im Gleichgewicht der Entmischung verschwindet. Die Radialgleichung ist ein Sturm-Liouvillesches Eigenwertproblem. Quantitative Resultate für das spezielle Beispiel des Starrkörperwirbels werden angegeben. Es zeigt sich, daß die Isotopenentmischung in dem hier verwendeten Diffusionsmodell als Einstellvorgang beschrieben wird, bei dem beide Isotope mit unterschiedlichen Relaxationszeiten ihren Gleichgewichtsverteilungen im Zentrifugalfeld der Strömung zustreben. Aufgrund der kürzeren Relaxationszeit des schweren Isotops wird intermediär eine Isotopenverteilung im Zentrifugalfeld erzeugt, die einen höheren Elementareffekt der Isotopentrennung aufweist als die entsprechende Verteilung im Diffusionsgleichgewicht.

Calculation of Uranium Isotope Separation in the Separation Nozzle for Small Mole Fractions of  $UF_6$  in the Auxiliary Gas

#### Summary

Uranium isotope separation in separation nozzles was studied for extremely small UF<sub>6</sub> mole fractions in the light auxiliary gas. In this limit case the diffusion processes for the light and heavy isotopes can be described by two independent binary diffusion equations. As to the cylindrical-symmetrical problem of the separation nozzle, the partial differential equations of diffusion can be separated by a product ansatz into an azimuthal and a radial equation whose solutions require but little expenditure in terms of computation. The solution of the azimuthal equation is an exponential function disappearing under equilibrium conditions. The radial equation is a Sturm-Liouville eigenvalue problem. Quantitative results are indicated for the special case of the rigid body rotation. It appears that isotope separation is described in the diffusion model used here as a transient process in which both isotopes, with different relaxation times, tend towards their equilibrium distributions in the centrifugal field of flow. Due to the shorter relaxation time of the heavier isotope, a transient isotope distribution is generated with a higher elementary effect of isotope separation than the respective stationary distribution in the centrifugal field.

# Inhaltsverzeichnis

# Seite

1.	Einleitung	2	
2.	Diffusionsgleichungen bei kleinen UF <sub>6</sub> - Molenbrüchen 5		
3.	Lösung der binären Diffusionsgleichungen	8	
4.	Isotopentrennung im Starrkörperwirbel		
	<ul><li>4.1 Radiale Molenbruchverteilung</li><li>4.2 Relaxationszeiten der Isotope</li><li>4.3 Elementareffekt der Isotopentrennung</li></ul>	12 13 15	
5.	Diskussion	18	
6.	Literaturverzeichnis	21	

### 1. Einleitung

Für die Anreicherung des leichten Uranisotops U-235 wurde im Kernforschungszentrum Karlsruhe das Trenndüsenverfahren als Alternative zum Gasdiffusions- und zum Zentrifugenverfahren entwickelt /1/. Beim Trenndüsenverfahren beruht die Entmischung der Uranisotope auf der Massenabhängigkeit der Zentrifugalkraft in einer schnellen, gekrümmten Strömung aus gasförmigem Uranhexafluorid und einem leichten Zusatzgas, das in hohem molaren Überschuß beigemischt ist. Aufgrund des niedrigen mittleren Molekulargewichts des Gasgemisches lassen sich bereits bei niedrigen Expansionsverhältnissen hohe Strömungsgeschwindigkeiten und damit hohe Zentrifugalkräfte für die Isotopenentmischung erzielen. Bei Vorhandensein eines Zusatzgases kann darüberhinaus intermediär eine Isotopenverteilung im Zentrifugalfeld erzeugt werden, die durch eine stärkere Entmischung gekennzeichnet ist als die entsprechende Gleichgewichtsverteilung der Isotope im Zentrifugalfeld /2/.



<u>Abb. 1:</u> Schnitt durch eine schlitzförmige Trenndüse mit schematischer Darstellung der Stromlinien.

Abb. 1 zeigt einen Schnitt durch eine schlitzförmige Trenndüse, wie sie gegenwärtig bei der technischen Realisierung des Trenndüsenverfahrens eingesetzt wird. Ein Gasstrahl, der 3 - 5 Mol % UF<sub>6</sub> und 97 - 95 % Mol % H<sub>2</sub> enthält, wird an einer gekrümmten Wand umgelenkt und dabei auf etwa den halben Wert des Ausgangsdrucks expandiert. Am Ende der Umlenkung wird der Gasstrahl in eine leichte und eine schwere Fraktion aufgeteilt, die einen höheren bzw. niedrigeren Gehalt an U-235 besitzen als das Ausgangsgas. Neben der in Abb. 1 gezeigten Anordnung mit Strahlumlenkung an einer festen Wand kommen für die praktische Anwendung auch Trenndüsensysteme in Frage, bei denen die Stromlinienkrümmung durch gegenseitige Umlenkung von Gasstrahlen erzeugt wird /3/.

In einer früheren theoretischen Arbeit wurde die Entmischung der Uranisotope in der Trenndüse durch numerische Lösung der ternären Diffusionsgleichungen untersucht /2/. Die Ergebnisse dieser numerischen Untersuchungen stimmen befriedigend mit den Experimenten überein; allerdings wird eine unmittelbare Interpretation der Versuchsergebnisse durch den komplexen Formalismus der Rechnungen erschwert. Darüberhinaus erlaubt das zeitaufwendige Lösungsverfahren keine ausgedehnten Variationen der Rand- und Anfangsbedingungen des Entmischungsvorgangs, so daß auf systematische Parameterstudien zur Optimierung von Trenndüsensystemen auf der Grundlage des ternären Diffusionsmodells verzichtet werden mußte.

Für weitere theoretische Untersuchungen zum Trenndüsenverfahren wurde deshalb ein vereinfachtes Diffusionsmodell entwickelt, das unter Verzicht auf die vollständige ternäre Beschreibung des Entmischungsvorganges die Vorteile eines geringen Rechenaufwands und physikalischer Anschaulichkeit aufweist. Das Modell basiert auf dem für das Trenndüsenverfahren besonders wichtigen Grenzfall kleiner UF<sub>6</sub>-Molenbrüche im Zusatzgas, so daß die Diffusionsvorgänge für das leichte und das schwere Isotop durch zwei voneinander unabhängige, binäre Diffusionsgleichungen beschrieben werden können<sup>+)</sup>. Diese partiellen Differentialgleichungen lassen sich für das zylindersymmetrische Problem der Trenndüse durch einen Produktansatz in eine Azimutal- und eine Radialgleichung separieren, deren Lösungen nur einen geringen Rechenaufwand erfordern. Die Lösung der Azimutalgleichung ist eine Exponentialfunktion, die im Gleichgewicht der Entmischung verschwindet. Die Radialgleichung ist ein Sturm-Liouville'sches Eigenwertproblem.

In der vorliegenden Arbeit werden die Lösungen der binären Diffusionsgleichungen in allgemeiner Form für beliebige radiale Geschwindigkeitsprofile der Trenndüsenströmung abgeleitet und quantitative Resultate für das spezielle Beispiel des Starrkörperwirbels angegeben. Es zeigt sich, daß die Isotopenentmischung in dem hier verwendeten Diffusionsmodell als Einstellvorgang beschrieben wird, bei dem beide Isotope mit unterschiedlichen Relaxationszeiten ihren Gleichgewichtsverteilungen im Zentrifugalfeld der Strömung zustreben<sup>t+</sup>Aufgrund der kürzeren Relaxationszeit des schweren Isotops wird intermediär eine Isotopenverteilung im Zentrifugalfeld erzeugt, die eine höhere Entmischung der Isotope aufweist als die entsprechende Verteilung im Diffusionsgleichgewicht.

<sup>+)</sup> Ein ähnliches Modell wurde von G. F. Malling und E. von Halle für die Abschätzung der Trennarbeitskosten des Trenndüsenverfahrens angewendet /4/.

<sup>++)</sup> Über diesen unmittelbar aus den Modellrechnungen folgenden Sachverhalt wurde bereits in einer früheren Arbeit berichtet /3/.

# 2. Diffusionsgleichungen bei kleinen UF<sub>6</sub>-Molenbrüchen

Die Isotopentrennung in der Trenndüse wird bei beliebiger Zusammensetzung des Verfahrensgases durch die ternären Diffusionsgleichungen beschrieben, welche neben den Stößen zwischen UF<sub>6</sub> und dem leichten Zusatzgas auch die Stöße der Uranisotope untereinander berücksichtigen. In der hier betrachteten Näherung kleiner UF<sub>6</sub>-Molenbrüche werden die Stöße der Uranisotope untereinander gegenüber denen mit dem Zusatzgas vernachlässigt. Die ternären Diffusionsgleichungen gehen dann in zwei entkoppelte binäre Diffusionsgleichungen über, welche jeweils die Diffusion einer Isotopenkomponente durch das leichte Zusatzgas ohne Beeinflussung durch die andere Komponente beschreiben.

In den folgenden Rechnungen wird davon ausgegangen, daß der Diffusionsvorgang durch die Chapman-Enskog-Näherung der Boltzmann-Gleichung beschrieben werden kann, d. h. es wird vorausgesetzt, daß nur schwache Störungen des lokalen thermischen Gleichgewichts vorliegen<sup>+)</sup>. In dieser Näherung gilt die folgende Gleichung für die Diffusionsströme der Isotope  $v_i \vec{w}_i$  im Zusatzgas /6/.

$$v_{i}\vec{w}_{i} = -vD \{ \text{grad } n_{i} - \frac{m_{i} - m_{z}}{m} n_{i} (1 - n_{i}) \frac{1}{p} \text{grad } p \}$$
 (2.1)

Die einzelnen Größen bedeuten hierbei:

- v; = Teilchendichte der i-ten Isotopenkomponente
- v = Gesamtteilchendichte
- $\vec{w}_i$  = Diffusionsgeschwindigkeit der Isotope

<sup>+)</sup> In Bereichen hoher Geschwindigkeitsgradienten in der Trenndüse tritt infolge der großen Unterschiede der Molekülmassen ein Geschwindigkeitsschlupf zwischen den Gemischkomponenten auf /5/. In der Diskussion wird gezeigt, daß diese Störung des thermischen Gleichgewichts durch eine einfache Erweiterung des Modells berücksichtigt werden kann.

D	å a	Diffusionskonstante
n.	<b>e</b> 773	Isotopenmolenbruch
<sup>m</sup> i	8	Isotopenmasse
mz		Masse des Zusatzgasmoleküls
m	a a	lokale mittlere Molekülmasse des Gemisches
р		statischer Druck

In der Gleichung (2.1) sind nur die Terme, welche die Konzentrations- und Druckdiffusion beschreiben, aufgenommen worden, da die Thermodiffusion in der Trenndüse wegen der kleinen Temperaturgradienten in der Strömung /7/ und des niedrigen Thermodiffusionsfaktors der UF<sub>6</sub>-Isotope /8/ vernachlässigt werden kann.

Da die Abweichung der UF<sub>6</sub>-Stromflächen von Kreisbahnen im allgemeinen gering ist und zur Konzentrationsverschiebung in der Trenndüse nur Diffusionsströme senkrecht zu den UF<sub>6</sub>-Stromflächen beitragen, kann der Druckgradient durch die azimutale Gemischgeschwindigkeit v mit der radialen Impulsgleichung

$$\frac{\partial p}{\partial r} = \sqrt{m} \frac{v^2}{r} \qquad (2.2)$$

ersetzt werden.

Durch Einsetzen des Diffusionsstromes in die stationäre Diffusionsgleichung /6/ erhält man die folgende partielle Differentialgleichung für die Molenbrüche der Isotope

 $\frac{v}{r}\frac{\partial n_{i}}{\partial \phi} = D\frac{1}{r}\frac{\partial}{\partial r}r\left\{\frac{\partial n_{i}}{\partial r} - \frac{m_{i}-m_{z}}{kT}n_{i}\frac{v^{2}}{r}\right\} = D\frac{1}{r}\frac{\partial}{\partial r}\left\{r\frac{\partial n_{i}}{\partial r} - 2\beta_{i}n_{i}\right\}$ (2.3)

Hierbei hängt die dimensionslose Größe B;

$$B_{i} = \frac{1/2m_{i}v^{2}}{kT} - \frac{1/2m_{z}v^{2}}{kT} = S_{i}^{2} - S_{z}^{2} \qquad (2.4)$$

nur vom Geschwindigkeitsverhältnis S<sub>i</sub> der Isotopenkomponenten und vom Geschwindigkeitsverhältnis S<sub>z</sub> des Zusatzgases ab. T ist die Temperatur des Gemisches und k die Boltzmann-Konstante. Das im Molenbruch quadratische Glied wurde vernachlässigt.

# 3. Lösung der binären Diffusionsgleichungen

Da sich die Differentialgleichungen (2.3) beider Isotope nur durch die unterschiedlichen Molekülmassendifferenzen m<sub>i</sub> - m<sub>z</sub> unterscheiden, sind die Lösungsverfahren identisch. Im folgenden wird deshalb zunächst auf die Indizierung einzelner Isotopenkomponenten verzichtet.

Die partielle Differentialgleichung (2.3) wird für zylindersymmetrische Strömungsfelder gelöst. Dies bedeutet, daß Geschwindigkeit und Teilchendichte unabhängig vom Umlenkwinkel sind und die Strömung zwischen festen Umlenkwänden mit konstanten Krümmungsradien umgelenkt wird. Unter dieser Voraussetzung ist die Lösung der Differentialgleichung durch Trennung der Variablen möglich. Mit dem Ansatz

$$n(\mathbf{r}, \phi) = \Phi(\phi) \cdot R(\mathbf{r}) \qquad (3.1)$$

erhält man aus (2.3)

$$\frac{L_{a}v_{o}}{D}\frac{1}{\Phi}\frac{\partial\Phi}{\partial\phi} = \frac{1}{vR}\frac{\partial}{\partial r} \{r\frac{\partial R}{\partial r} - 2\beta R\} = -\lambda \qquad (3.2)$$

Hierbei wurde die Radialkoordinate r auf den Radius der äußeren Umlenkwand  $L_a$  und die Geschwindigkeit v auf die Maximalgeschwindigkeit des Gemisches v<sub>o</sub> normiert.

Die Diffusionskonstante D wurde als vom Radius r unabhängig angenommen. Der beschriebene mathematische Formalismus ist auch für Polynomansätze D = D (r) anwendbar.

Aus (3.2) folgt die vom Umlenkwinkel  $\phi$  abhängige Differentialgleichung

$$\frac{\partial \Phi}{\partial \phi} + \lambda \frac{D}{L_a v_o} \Phi = 0 \qquad (3.3)$$

mit der Lösung

$$\Phi \sim \exp(-\lambda \frac{D}{L_a v_o}\phi)$$

sowie die Radialgleichung

$$r \frac{\partial^2 R}{\partial r^2} + (1 - 2\beta) \frac{\partial R}{\partial r} + (\lambda v - \frac{2\partial \beta}{\partial r}) R = 0 \qquad (3.4)$$

Aus der Forderung, daß die Diffusionsströme an den festen Umlenkwänden mit den Radien L<sub>i</sub> für die innere und L<sub>a</sub> für die äußere Umlenkwand verschwinden, ergeben sich die folgenden Randbedingungen:

$$\frac{\partial R}{\partial r} - 2 \frac{\beta}{r} R = 0 \text{ für } r = L_i / L_a, 1 \qquad (3.5)$$

Die Radialgleichung (3.4) mit den zugehörigen Randbedingungen (3.5) ist ein Sturm-Liouville'sches Eigenwertproblem /9/, dessen Lösung vom radialen Verlauf des Geschwindigkeitsprofiles abhängt. Stellt man das jeweilige Profil durch ein Polynom dar, so besitzt die Differentialgleichung (3.4) bei r = 0 eine außerwesentliche Singularität. Ihre Lösungen können durch konvergierende Reihen  $R_k$  (r) dargestellt werden. Da die Eigenfunktionen  $R_k$  (r) ein orthogonales Funktionensystem bilden, ist die Gesamtlösung als Fourierreihe

$$n(\mathbf{r},\phi) = \sum_{k=0}^{\infty} C_k \exp(-\lambda_k \frac{D}{L_a v_o}\phi) \cdot R_k(\mathbf{r}) \quad (3.6)$$

mit den Eigenwerten  $\lambda_k$  darstellbar.

Die Fourierkoeffizienten  $C_k$  werden unter Ausnutzung der Orthogonogalität der Eigenfunktionen an die Anfangsverteilung n(r, $\phi$ =0) angepaßt. Da für  $\phi + \infty$  alle Glieder der Gleichung (3.6) mit  $\lambda_k \neq 0$  verschwinden, der Molenbruch n jeder Isotopenkomponente aber endlich bleiben muß, ist $\lambda_0 = 0$  ebenfalls ein Eigenwert des Problems. Die zugehörigen Eigenfunktionen stellen daher die vom Umlenkwinkel  $\phi$  unabhängigen Molenbrüche der Isotope  $n_{\infty}$  (r) im Gleichgewicht von Druck- und Konzentrationsdiffusion dar.

Für den Eigenwert  $\lambda_0$  = 0 lauten die Radialgleichungen (3.4)

$$r \frac{\partial^2 R_o}{\partial r^2} + (1 - 2\beta) \frac{\partial R_o}{\partial r} - 2 \frac{\partial \beta}{\partial r} R_o = 0 \qquad (3.7)$$

Durch Integration ergibt sich

$$r \frac{\partial R_o}{\partial r} - 2\beta R_o = C \qquad (3.8)$$

Diese Beziehung kann die Randbedingungen (3.5) nur dann erfüllen, wenn die Integrationskonstante C gleich Null ist. Die dann resultierende Differentialgleichung ist identisch mit der Forderung, daß der Diffusionsstrom bei beliebigen Radien verschwindet. Als Lösung erhält man daher sofort die Molenbrüche der Isotope im Gleichgewicht von Druck- und Konzentrationsdiffusion

$$n_{\infty}(r) \sim \exp \int \frac{r}{r} \frac{\beta}{r} dr = R_{o}(r)$$
 (3.9)

Die Gesamtlösungen (3.6) der Differentialgleichungen können daher in folgender Form dargestellt werden:

$$n(r,\phi^{+}) = n_{\infty}(r) + \sum_{k=1}^{\infty} C_{k} \exp(-\lambda_{k}\phi^{+}) R_{k}(r)$$
 (3.10)

Die dimensionslose Variable in (3.10)

$$\phi^{+} = \frac{D/L_{a}}{v_{o}} \cdot \phi = \frac{D}{L_{a}^{2}} \cdot t \qquad (3.11)$$

ist der Umlenkwinkel, gemessen in der Einheit  $\frac{D/L_a}{v_o}$ , bzw. die Zeit, gemessen in der Einheit  $D/L_a^2$ , die das Gemisch bis zum Umlenkwinkel  $\phi$  benötigt.

Der Ähnlichkeitsbeziehung (3.11) entnimmt man unmittelbar, daß die Verteilung n(r) einer Isotopenkomponente beim Umlenkwinkel  $\phi$  durch eine Änderung der Diffusionskonstante D lediglich zu einem anderen Umlenkwinkel verschoben wird, für den das Produkt  $\phi$ ·D unverändert bleibt. Ferner bleiben bei gleicher Maximalgeschwindigkeit v<sub>o</sub> die Lösungen beim gleichen Umlenkwinkel  $\phi$  unverändert, sofern das Verhältnis D/L<sub>a</sub>, d. h. die Knudsen-Zahl konstant bleibt.

Aus (3.10) ist ersichtlich, daß die Eigenwerte  $\lambda_k$  ein Maß dafür sind, wie schnell der winkelabhängige Teil des Isotopenmolenbruches n(r, $\phi^+$ ) verschwindet. Die reziproken Eigenwerte  $\lambda_k^{-1}$  sind also die Relaxationswinkel  $\phi_k$  des Isotopenmolenbruchs im Zentrifugalfeld bzw. die Relaxationszeiten  $\tau_k$  in den angegebenen Einheiten.

Die räumliche Entwicklung des Molenbruchs wird demnach als ein mit dem Umlenkwinkel  $\phi$  bzw. der Zeit t exponentiell ablaufender Einstellvorgang in die Gleichgewichtsverteilung n\_ (r) beschrieben.

## 4. Isotopentrennung im Starrkörperwirbel

Im folgenden werden die Ergebnisse von Berechnungen der Diffusionsvorgänge im ternären Gemisch  $(U^{235}F_6, U^{238}F_6, H_2)$  für das spezielle Beispiel des Starrkörperwirbels  $(v = \omega \cdot r, \omega = konst)$  angegeben<sup>+)</sup>. Der Starrkörperwirbel wird als bis zum Ursprung r = 0 ausgedehnt angenommen. Ausgehend von den Gleichungen des vorigen Abschnittes werden die Molenbrüche und die Relaxationszeiten der Isotope sowie der Elementareffekt der Isotopentrennung bestimmt.

# 4.1 Radiale Molenbruchverteilung

Abb. 2 zeigt ein Beispiel für die Entwicklung des radialen Molenbruchprofiles n(r) eines Isotops mit wachsender Koordinate  $\phi^+$  entsprechend Beziehung (3.10). Als Anfangsverteilung bei  $\phi^+$  = 0 wurde ein konstanter UF<sub>6</sub>-Molenbruch n<sub>o</sub> vorgegeben und eine Umfangsgeschwindigkeit des Starrkörperwirbels von  $\omega$ L = 400 m/s.

Man erkennt, daß der Molenbruch des Isotops im Zusatzgas beim Übergang in die Gleichgewichtsverteilung in den inneren Bereichen des Starrkörperwirbels gleichmäßig abnimmt, um dann in einer schmalen Zone am Außenrand steil anzusteigen. Hieraus folgt unmittelbar, daß die Wirkung der Konzentrationsdiffusion während des gesamten Einstellvorgangs auf die äußeren Bereiche des Zentrifugalfeldes beschränkt bleibt, während die Diffusionsvorgänge im Innern des Starrkörperwirbels praktisch nur durch die auf die Moleküle wirkenden Zentrifugalkräfte bzw. die Druckgradienten im Zentrifugalfeld bestimmt werden.

<sup>+)</sup> Die Lösung der Radialgleichung (3.4) erhält man durch einen Potenzreihenansatz. Sie wurde von T. W. Kao angegeben, der für binäre Gemische den Einfluß der Druckdiffusion auf die Gleichgewichtseinstellzeit untersuchte /10/.



Abb. 2: Entwicklung der radialen Molenbruchverteilung des UF<sub>6</sub> im leichten Zusatzgas Wasserstoff mit wachsendem Umlenkwinkel ¢<sup>+</sup> bei homogener Anfangsverteilung (Starrkörperwirbel mit 400 m/sec Umfangsgeschwindigkeit, Zimmertemperatur).

## 4.2 Relaxationszeiten der Isotope

In Abb. 3 sind die in Beziehung (3.10) auftretenden ersten vier nicht verschwindenden Eigenwerte  $\lambda_k$  in Abhängigkeit von der dimensionslosen Größe ß am Umfang des Starrkörperwirbels

$$B(1) = \frac{1}{2} \frac{m - m_z}{kT} (\omega L)^2$$



<u>Abb. 3:</u> Die ersten vier nicht verschwindenden Eigenwerte beim Starrkörperwirbel in Abhängigkeit von der Differenz der Geschwindigkeitsverhältnisquadrate eines Isotops und des Zusatzgases an der Umlenkwand (H<sub>2</sub>/UF<sub>6</sub>).



Abb. 4: Relative Differenz der ersten Relaxationszeiten des schweren und leichten Isotops in Abhängigkeit von der Umfangsgeschwindigkeit des Starrkörperwirbels (H<sub>2</sub>/UF<sub>6</sub>).

aufgetragen. Man erkennt, daß mit steigenden Werten  $\beta(1)$ die Eigenwerte  $\lambda_k$  ansteigen. Dies bedeutet, daß die Relaxationszeiten,  $\tau_k = \lambda_k^{-1}$ , mit wachsender Umfangsgeschwindigkeit  $\omega$ L abnehmen und die zum Gleichgewicht von Druck- und Konzentrationsdiffusion gehörigen Isotopenverteilungen  $n_{\infty}(r)$ schneller erreicht werden. Dabei sind die Relaxationszeiten für das schwere Isotop entsprechend der größeren Masse bzw. des größeren Wertes von  $\beta(1)$  immer kürzer als die des leichten Isotops.

Aus Abb. 3 ist ersichtlich, daß die Eigenwerte  $\lambda_k$  stärker als linear mit ß(1) ansteigen. Dies bedeutet, daß die relative Differenz der Relaxationszeiten des schweren und leichten Isotops mit steigender Umfangsgeschwindigkeit  $\omega$ L zunimmt. Dieser Anstieg ist in Abb. 4 am Beispiel der Relaxationszeit  $\tau_1$  dargestellt.

### 4.3 Elementareffekt der Isotopentrennung

Teilt man entsprechend Abb. 1 den gesamten UF<sub>6</sub>-Strom am Ende der Umlenkung in eine leichte Fraktion mit dem mittleren Isotopenverhältnis  $R_p$  und eine schwere Fraktion mit dem mittleren Isotopenverhältnis  $R_w$  auf, so gilt für den Elementareffekt  $\varepsilon_A$  der Isotopentrennung

$$\epsilon_{A} = R_{D}/R_{W} - 1$$

Die mittleren Isotopenverhältnisse in der leichten bzw. in der schweren Fraktion werden aus den radialen Molenbruchverteilungen der Isotope (3.10) ermittelt. Der Elementareffekt der Isotopentrennung kann damit in Abhängigkeit vom Umlenkwinkel, der Geschwindigkeit und der Anfangsverteilung berechnet werden. Abb. 5 zeigt den Elementareffekt der Isotopentrennung in Abhängigkeit von der dimensionslosen Variablen  $\phi^+$  für verschiedene Umfangsgeschwindigkeiten des Starrkörperwirbels. Das aus dem UF<sub>6</sub>-Strom L<sub>p</sub> in der leichten Fraktion und dem gesamten UF<sub>6</sub>-Strom L<sub>g</sub> gebildeten Abschälverhältnis beträgt  $J'_{\rm u} = L_{\rm p}/L_{\rm g} = 1/4$ . Man sieht, daß der Elementareffekt im Einstellvorgang ein Maximum durchläuft und sich dann asymptotisch dem zum Diffusionsgleichgewicht gehörigen Wert nähert. Mit wachsender Geschwindigkeit steigt der Maximalwert von  $\varepsilon_{\rm A}$  an, was auf die Zunahme der relativen Differenz der Relaxationszeiten der Isotope zurückgeführt werden kann (vgl. Abb. 4). Da hierbei gleichzeitig die Absolutwerte der Relaxationszeiten für beide Isotope kleiner werden, verschiebt sich das Maximum mit wachsender Umfangsgeschwindigkeit zu kleineren Werten von  $\phi^+$ .

In Abb. 6 ist der maximale Elementareffekt  $\varepsilon_{max}$  und der Elementareffekt  $\varepsilon_{\infty}$ , der sich im Gleichgewicht von Druckund Konzentrationsdiffusion einstellen würde, in Abhängigkeit von der Umfangsgeschwindigkeit des Starrkörperwirbels aufgetragen. Es ist ersichtlich, daß der Gleichgewichtswert schnell gegen einen oberen Grenzwert strebt<sup>+)</sup>. Der maximale Elementareffekt steigt hingegen bei hohen Geschwindigkeiten noch deutlich an. Bereits bei einer Umfangsgeschwindigkeit von 400 m/sec übersteigt der maximale Elementareffekt die obere Grenze der Gleichgewichtsentmischung um etwa 25 %.

$$\varepsilon_{\infty}^{\max} = 0.00852 \cdot \frac{\ln J_u}{J_u^{-1}}$$

<sup>+)</sup> Bei hohen Geschwindigkeiten strebt der Gleichgewichtselementareffekt gegen einen oberen Grenzwert, der unabhängig vom Geschwindigkeitsprofil ist und nur vom Uranabschälverhältnis abhängt /2/. Für diesen Grenzwert gilt



<u>Abb. 5:</u> Elementareffekt der Isotopentrennung in Abhängigkeit vom Umlenkwinkel für drei Umfangsgeschwindigkeiten des Starrkörperwirbels (Uranabschälverhältnis  $J_u = 0.25$ ,  $H_2/UF_6$ ).



<u>Abb. 6:</u> Der maximale Elementareffekt  $\varepsilon_{max}$  und der Elementareffekt  $\varepsilon_{\infty}$  im Gleichgewicht von Druck- und Konzentrationsdiffusion in Abhängigkeit von der Umfangsgeschwindigkeit des Starr-körperwirbels (Uranabschälverhältnis  $\mathcal{J}_{u} = 0.25$ ,  $H_2/UF_6$ ).

## 5. Diskussion

Das in dieser Arbeit entwickelte Diffusionsmodell beschreibt die Entmischung der Uranisotope als Einstellvorgang, bei dem die Isotope mit unterschiedlichen Relaxationszeiten ihren stationären Verteilungen im Zentrifugalfeld der Strömung zustreben. Für diesen Einstellvorgang stellt das UF<sub>6</sub>-Geschwindigkeitsverhältnis eine besonders wichtige Größe dar, da es sowohl die stationäre Verteilung der Isotope im Gleichgewicht von Druck- und Konzentrationsdiffusion als auch die Relaxationszeit des Einstellvorgangs bestimmt.

Die Relaxationszeit für die Einstellung der stationären Verteilung einer schweren Molekülsorte in der gekrümmten Strömung aus leichtem Zusatzgas ist nach den Modellrechnungen umso kürzer, je höher das Geschwindigkeitsverhältnis der schweren Moleküle ist. Dieser Sachverhalt läßt sich qualitativ damit begründen, daß die auf der Druckdiffusion beruhende radiale Transportgeschwindigkeit quadratisch mit dem Geschwindigkeitsverhältnis ansteigt, während die Aufenthaltszeit des Gases im Zentrifugalfeld nur linear mit dem Kehrwert des Geschwindigkeitsverhältnisses abnimmt. Hieraus folgt unmittelbar, daß das schwere Uranisotop  $^{238}$  UF<sub>6</sub> eine kürzere Relaxationszeit besitzt als das leichte Isotop  $^{235}$ UF<sub>6</sub><sup>+)</sup>. Beim Einstellvorgang wird deshalb ein Zustand durchlaufen, in welchem das schwere Isotop bereits weitgehend am Außenrand des Zentrifugalfeldes konzentriert ist, während das leichte Isotop noch über einen breiteren Bereich der Strömung verteilt ist. In diesem intermediären Zustand liegt ein höherer Grad der Isotopenentmischung vor als im asymptotisch sich einstellenden Zustand des Diffusionsgleichge-

<sup>+)</sup> Bei lokalem thermischen Gleichgewicht in der Strömung verhalten sich die Geschwindigkeitsverhältnisse der Gemischkomponenten wie die Wurzeln aus den Molekulargewichten.

wichts im Zentrifugalfeld. Da der relative Unterschied in den Relaxationszeiten der Isotope auch bei hohen Geschwindigkeitsverhältnissen noch zunimmt, bei denen der im Diffusionsgleichgewicht gültige Trenneffekt bereits praktisch seine obere Schranke erreicht hat, wird diese intermediäre Erhöhung des Elementareffektes der Isotopentrennung bei einer Erhöhung des Geschwindigkeitsverhältnisses stärker.

Das durch die unterschiedlichen Relaxationszeiten bedingte Maximum der Isotopenentmischung kann durch Änderung der Diffusionskonstanten zu jedem beliebigen Umlenkwinkel verschoben werden. Bei einer Trenndüse mit festem Umlenkwinkel kann also eine Verkürzung der Relaxationszeit, wie sie sich bei einer Erhöhung des Geschwindigkeitsverhältnisses ergibt, durch eine Verminderung der Diffusionskonstanten gerade so kompensiert werden, daß das Maximum der Entmischung immer unmittelbar vor der Aufteilung der Strömung durch den Abschäler erreicht wird. Eine Erhöhung des UFc-Geschwindigkeitsverhältnisses, die in der Praxis z.B. durch Steigerung des Expansionsverhältnisses der Trenndüsenströmung erreicht wird, führt demnach zu einer Erhöhung des optimalen Betriebsdrucks für die Isotopentrennung, da die kürzere Relaxationszeit eine Verminderung der Diffusionskonstanten erfordert.

Der zur Lösung der Diffusionsgleichungen erforderliche Rechenaufwand wird nicht nennenswert größer, wenn anstelle des Starrkörperwirbels eine andere Form des radialen Geschwindigkeitsverlaufs, z. B. ein parabelförmiges Geschwindigkeitsprofil, angenommen wird. Azimutale Geschwindigkeitsänderungen in der Trenndüse lassen sich einfach berücksichtigen, indem man des Geschwindigkeitsfeld der Strömung durch einzelne Sektoren mit unterschiedlicher Azimutalgeschwindigkeit darstellt und die am Ende eines Sektors vorliegende Isotopenverteilung jeweils als Anfangsverteilung für den nachfolgenden Sektor verwendet.

Darüberhinaus bietet das in dieser Arbeit entwickelte Diffusionsmodell die Möglichkeit, die Entmischungsvorgänge unter Berücksichtigung eines Geschwindigkeitsschlupfes zwischen den Gemischkomponenten zu behandeln<sup>+)</sup>. Hierbei werden in einem ersten Schritt die UF<sub>6</sub>-Stromflächen in einem vorgegebenen Geschwindigkeitsfeld nach der hier beschriebenen Methode berechnet, wobei Geschwindigkeits- und Temperaturunterschiede der Gemischkomponente zunächst vernachlässigt werden. In einem zweiten Schritt können dann korrigierte Isotopen-Geschwindigkeitsverhältnisse auf diesen Stromflächen ermittelt werden, indem die UF<sub>6</sub>-Isotope als molekular angeströmte Kugeln behandelt werden, deren Bewegung allein durch die vom Zusatzgas ausgeübten, molekularen Schleppkräfte bestimmt sind. Bei der Berechnung der Isotopenentmischung kann dann von diesen korrigierten Geschwindigkeitsverhältnissen bzw. von entsprechend korrigierten Werten & (Gl. 2.4) ausgegangen werden, wobei sowohl die Einfachheit des Lösungsverfahrens der Differentialgleichungen als auch die Überschaubarkeit der Lösungen erhalten bleibt.

Herrn Prof. Dr. E. W. Becker danken wir für das der Arbeit entgegengebrachte Interesse und für die stete Förderung.

<sup>+)</sup> In Teilbereichen der Trenndüsenströmung treten starke Zustandsänderungen innerhalb einer mittleren freien Weglänge der Moleküle auf/5/. Dies führt zu einem Geschwindigkeitsschlupf und zu Temperaturunterschieden zwischen den Gemischkomponenten, da das schwere UF<sub>6</sub> aufgrund des ineffektiven Energieaustausches mit den leichten Molekülen des Zusatzgases Zustandsänderungen nur verzögert folgt.

### Literaturverzeichnis

- /1/ E.W. Becker, W. Bier, W. Ehrfeld, K. Schubert, R. Schütte, D. Seidel; Nuclear Energy Maturity, Proceedings of the Paris Conference, Progress in Nuclear Energy Series 1976, S. 172 - 180, Pergamon Press, Oxford und New York.
- /2/ E.W. Becker, W. Bier, W. Ehrfeld und G. Eisenbeiß;
  Z. Naturforschung 26a, 1377 (1971).
- /3/ E.W. Becker, W. Berkhahn, P.Bley, U. Ehrfeld, W. Ehrfeld,
  U. Knapp, International Conference on Uranium Isotope
  Separation, London (1975).
- /4/ G.F. Malling und E. von Halle, American Chemical Society Meeting, San Francisco, USA (30.8. - 3.9.1976).
- /5/ E.W. Becker, P. Bley, U. Ehrfeld, W. Ehrfeld; Proceedings of the 10th International Rarefied Gas Dynamics Symposium, Aspen, Colo., July 19-23 (1976).
- /6/ L. Waldmann in: S. Flügge (Ed.), Handbuch der Physik,Bd. 12, S. 295 (1958), Springer Verlag, Heidelberg.
- /7/ U. Ehrfeld und W. Ehrfeld, KFK-Bericht Nr. 1634 der Gesellschaft für Kernforschung Karlsruhe (1972).
- /8/ P. Kirch und R. Schütte, Z. Naturforschung 22a, 1532 (1967).
- /9/ Courant-Hilbert; Methods of Mathematical Physics, Bd. 2, S. 291 (1953); Interscience Publishers, Inc., New York.
- /10/ T.W. Kao; Phys. Fluids 10, 1814 (1967).