

DE SCHEIDING VAN ZWARE ISOTOPEN
IN EEN
CENTRIFUGAAL VELD

J. LOS

BIBLIOTHEEK VAN HET
FARMACEUTISCH LABORATORIUM
DER R. U. TE LEIDEN

DE SCHEIDING VAN ZWARE ISOTOPEN

DE SCHEIDING VAN ZWARE ISOTOPEN
IN EEN
CENTRIFUGAAL VELD

PROEFSCHRIFT

DE VERANDERING VAN DE GRAAD VAN
MIX- EN REINHEIDEN, DAN DE
TE KUNNEN, OP AANLEG VAN DE
DE 2. DEEL, DEEL 1. DE
LITTEKUNDE EN WETENSCHAPTE, TUSSEN DE
VAN DE NACHTMIDDE EN DE
VERVOLGENDEN EN BUREAUAAN 1. DEEL 1944

P L A A T S :	
KAST	C 6
PLANK	
NUMMER	

JOHANNES LOS

1944

AMSTERDAM

1944

THE UNIVERSITY OF CHICAGO
LIBRARY
540 EAST 57TH STREET
CHICAGO, ILL. 60637

DE SCHEIDING VAN ZWARE ISOTOPEN
IN EEN
CENTRIFUGAAL VELD

PROEFSCHRIFT

TER VERKRIJGING VAN DE GRAAD VAN DOCTOR IN DE
WIS- EN NATUURKUNDE AAN DE RIJSUNIVERSITEIT
TE LEIDEN, OP GEZAG VAN DE RECTOR MAGNIFICUS
DR. S. DRESDEN, HOGLERAAR IN DE FACULTEIT DER
LETTEREN EN WIJSBEGEERTE, TEGEN DE BEDENKINGEN
VAN DE FACULTEIT DER WIS- EN NATUURKUNDE, TE
VERDEDIGEN OP WOENSDAG 1 MEI 1963 TE 15 UUR

DOOR

JOHANNES LOS

GEBOREN TE OEGSTGEEST IN 1922

DRUKKERIJ WED. G. VAN SOEST N.V.
AMSTERDAM

1963

DE SCHEIDING VAN ZWARE ISOTOPEN

Promotor: PROF. DR. J. KISTEMAKER

CENTRIFUGAAL VELD

PROEFSCHRIFT

DE VERBODING VAN DE GRAAD VAN ROTATIE IN DE
WIL- EN NATUURWETENSCHEDE AAN DE UNIVERSITEIT
TE LEIDEN, OP GEBIED VAN DE FAKULTeit NATUURWETEN-
SCHAAPEN, IN VERBAND MET DE SCHEIDING VAN
DE ZWARE ISOTOPEN, VOOR DE AANVAARDING
VAN DE FACULTEIT DER WIL- EN NATUURWETEN-
SCHAAPEN OP WOENSDAG 1 MEI 1951 TE 11 UUR

DOOR

JOHANNES LOS

GEBOREN TE ROTTERDAM IN 1911

DRUKKERIJ VAN DE WETENSCHEDE

LEIDEN

1951

Hij is lid van de Koninklijke Nederlandse Akademie van Wetenschappen en de Koninklijke Nederlandse Maatschappij der Wetenschappen (F.O.M.), en werd benoemd tot lid van de Koninklijke Nederlandse Akademie van Wetenschappen (R.C.N.).

De Koninklijke Nederlandse Akademie van Wetenschappen heeft hem benoemd tot lid van de Koninklijke Nederlandse Maatschappij der Wetenschappen (F.O.M.) en de Koninklijke Nederlandse Akademie van Wetenschappen (R.C.N.). Hij is lid van de Koninklijke Nederlandse Akademie van Wetenschappen en de Koninklijke Nederlandse Maatschappij der Wetenschappen (F.O.M.), en werd benoemd tot lid van de Koninklijke Nederlandse Akademie van Wetenschappen (R.C.N.).

Op het „Laboratorium voor Microscheiding“ wordt ik verzorgd met een jaar van het onderwijs van mijn directie, de scheiding van zuren lospen met behulp van omringelen. Sedert mijn een jaar heb ik betrokken bij verschillende onderzoeken van moleculair-fysische aard.

De drie onderzoekingen, waaraan ik verbonden ben geweest gedurende mijn wetenschappelijke loopbaan, hebben op beslissende wijze bijgedragen tot mijn algemene en wetenschappelijke vorming. Hierbij dank ik in de eerste plaats aan de grote waarde, die de collega's in het kader van het „Institutum Generale“ voor mij hebben gehad. Daarnaast hebben de collega's in de faculteiten der wis- en natuurkunde aan beide universiteiten met allen bijgedragen tot mijn specifieke vaardigheden, doch mij tevens door leerspreuken met een voor mij ongekende kritische wijze van denken. De praktische opleiding op het „Laboratorium voor Microscheiding“ heeft mij geleerd hoe een experiment tot het rijtje te maken.

Met dr. E. J. J. Veldhoop van de N.V. Wackpooze, wil ik de drie Wetenschapsgroep, die aan dit onderzoek heeft medegewerkt, mijn grote erkentelijkheid betuigen voor de wijze, waaraan zij samen gewerkt met een nauwkeurigheid, die gepaard is met een zeer belangrijke problematiek van een grote industrie. De onderzoeksgroep

Aan Cathie

Het in dit proefschrift vermelde werk is uitgevoerd in het kader van het werkprogramma van de „Stichting voor Fundamenteel Onderzoek der Materie” (F.O.M.), en werd financieel gesteund door de „Stichting Reactor Centrum Nederland” (R.C.N.). Het experimentele werk werd verricht in het „Laboratorium voor Massascheiding” te Amsterdam.

VOORWOORD

In 1949 begon ik mijn studie aan de Rijksuniversiteit te Leiden, waar ik in 1953 het candidaatsexamen aflegde in de faculteit der wis- en natuurkunde. Als hoofdvak voor de doctoraalstudie, welke studie ik voltooide aan de gemeente-universiteit te Amsterdam, koos ik experimentele natuurkunde. Hiertoe volgde ik de natuurkunde-colleges van Prof. Dr. J. de Boer en Prof. Dr. S. A. Wouthuysen. Op het „Laboratorium voor Massascheiding” onder leiding van Prof. Dr. J. Kistemaker verrichtte ik mijn praktische werkzaamheden voor de doctoraalstudie. Het werk in de massaspectrometergroep van dit laboratorium werd aanleiding tot een meer uitgebreide studie op het gebied der ionenoptiek. Over dit onderwerp schreef ik samen met Dr. C. de Vries een scriptie voor het doctoraal examen. Het doctoraal examen behaalde ik in 1956.

Op het „Laboratorium voor Massascheiding” werkte ik vervolgens zes jaar aan het onderwerp van mijn dissertatie, de scheiding van zware isotopen met behulp van centrifuges. Sedert ruim een jaar ben ik betrokken bij verschillende onderzoeken van molecuulfysische aard.

De drie instellingen, waaraan ik verbonden ben geweest gedurende mijn wetenschappelijke loopbaan, hebben op beslissende wijze bijgedragen tot mijn algemene en wetenschappelijke vorming. Hierbij denk ik in de eerste plaats aan de grote waarde, die de colleges in het kader van het „Studium Generale” voor mij hebben gehad. Daarnaast hebben de colleges in de faculteiten der wis- en natuurkunde aan beide universiteiten niet alleen bijgedragen tot mijn specifieke vakkennis, doch mij tevens doen kennismaken met een voor mij onbekende kritische wijze van denken. De praktische opleiding op het „Laboratorium voor Massascheiding” heeft mij geleerd hoe een experiment uit het niets te creëren.

Met Ir. E. J. J. Veldhuyzen van de N.V. Werkspoor, wil ik de hele Werkspoor-groep, die aan dit onderzoek heeft medegewerkt, mijn grote erkentelijkheid betuigen voor de wijze, waarop zij hebben samengewerkt met een researchteam, dat gespeend is van ieder inzicht in de problematiek van een grote industrie. De centrifugegroep

met Ir. F. E. T. Kelling wil ik zeer in het bijzonder bedanken voor hun enthousiasme en doorzettingsvermogen, zonder hetwelk dit onderzoek niet tot een goed einde gebracht zou zijn.

Bij de verschijning van dit proefschrift, dat de afsluiting betekent van mijn studie, dank ik mijn broer Jan, die voor mij een grote steun geweest is gedurende de moeilijkste studie jaren. Ik hoop dat dit proefschrift hem evenveel voldoening zal verschaffen als het mij doet.

Het stemt tot dankbaarheid, dat mijn beide ouders getuige mogen zijn van deze afsluiting van mijn studie.

INHOUD

	Blz.
Inleiding	11
Hoofdstuk I. Historisch overzicht	
§ 1. Het elementaire effect	13
§ 2. De ontwikkeling van de theorie	16
§ 3. De verschillende typen van de tegen- stroomcentrifuge	18
Hoofdstuk II. Cascadetheorie	
§ 1. De ideale cascade	22
§ 2. De entropieproductie in de ideale cascade	29
§ 3. De scheidingspotentialiaal	31
§ 4. De kolomvergelijking	36
Hoofdstuk III. De tegenstroomcentrifuge	
§ 1. Scheidingsfactor en scheidend vermogen	50
§ 2. Het stromingsprofiel en de vormfactor	60
§ 3. De tegenstroomwervel	72
§ 4. Mechanische beperkingen	83
Hoofdstuk IV. Discussie	86
Samenvatting	90
Literatuuropgave	93
Lijst van gebruikte symbolen	95
Summary	97

Hoofdstuk I. Algemeen overzicht	14
§ 1. De ontwikkeling van de rassen	15
§ 2. De ontwikkeling van de rassen	16
§ 3. De ontwikkeling van de rassen	17
§ 4. De ontwikkeling van de rassen	18
Hoofdstuk II. Casuïstiek	
§ 1. De ideale casuïstiek	22
§ 2. De empirische casuïstiek in de ideale casuïstiek	23
§ 3. De ethische casuïstiek	31
§ 4. De koloniale casuïstiek	36
Hoofdstuk III. De tegenwoordige	
§ 1. Schiedkundig en wetenschappelijk verband	50
§ 2. Het wetenschappelijk en de wetenschappelijke	60
§ 3. De tegenwoordige	72
§ 4. Technische bepalingen	82
Hoofdstuk IV. Discussie	86
Samenvatting	90
Litteratuurlijst	93
Lijst van gebruikte symbolen	95
Summary	97

INLEIDING

De oorspronkelijke doelstelling voor het „Laboratorium voor Massascheiding” ligt besloten in de naam, die het laboratorium draagt, te weten het scheiden van mengsels, meer in het bijzonder isotopenmengsels, naar de verschillende massa's.

Het meest algemeen bruikbare instrument om isotopen te scheiden is de electromagnetische separator, waarmee het mogelijk is vrijwel elk isotoop in een relatief hoge mate van zuiverheid te verkrijgen. De bouw van deze separator werd in 1954 bekroond met enkele succesvolle scheidingen van de isotopen van zink, magnesium en uranium.

Ofschoon de hoge graad van zuiverheid der gescheiden isotopen, en het grote bereik in het periodiek systeem der elementen, dit instrument bijzonder waardevol maken, is het minder geschikt voor het scheiden van isotopen in grotere hoeveelheden. In het algemeen bestaan er voor een bepaald element, of voor een groep van elementen een of meer scheidingsmethoden, die bijzonder geschikt zijn.

Van de aanvang af werd er dan ook aandacht besteed aan meer specifieke scheidingsmethoden, waaronder in de eerste plaats de thermodiffusiemethode genoemd moet worden. Door gebruik te maken van thermodiffusiekolommen kunnen in isotopenmengsels met een niet te hoog moleculair gewicht grote scheidingsfactoren bereikt worden. Deze methode werd op het laboratorium gebruikt om ten behoeve van het ouderdomsonderzoek van organische resten de ^{14}C concentratie met een bepaalde factor te verrijken. Tevens werd de mogelijkheid onderzocht en aangetoond om een licht gas te zuiveren van geringe verontreinigingen in de vorm van al of niet radioactieve zware isotopen. Hierbij werd dus de mogelijkheid aangetoond om het deuterium gas van een suspensiereactor te zuiveren van de radioactieve splijtingsprodukten. Dit werk vindt een vervolg in het onderzoek van de verrijking van moleculen met een massa van ongeveer 40 in helium bij een druk van twintig atmosfeer. Dit onderzoek vindt plaats ten behoeve van het Dragon Project van de O.E.S.O.

De bruikbaarheid van thermodiffusiekolommen voor het scheiden

van isotopen wordt evenwel minder naarmate de gemiddelde massa groter wordt; dit, omdat de elementaire scheidingsfactor evenredig is met het relatieve massaverschil. Dit heeft de thermodiffusiemethode gemeen met vrijwel alle andere scheidingsmethoden.

Op deze regel maakt de scheiding met behulp van centrifuges een uitzondering. Dit wordt bepaald door de elementaire separatiefactor, die in een centrifugaal veld evenredig is met het absolute massaverschil. Voor alle zware elementen lijkt dus de centrifuge het meest aangewezen separatie-element; reden waarom dit onderzoek in het kader van het werkprogramma van het laboratorium werd aangevat.

HISTORISCH OVERZICHT

§ 1. Het elementaire effect

Reeds in 1919 werd door Lindemann en Aston¹⁾ op de mogelijkheid gewezen isotopen te scheiden door gebruik te maken van het zwaartekrachtsveld, of van een centrifugaal veld. Zij lieten zien hoe door de Boltzmann verdelingswet de samenstelling van een ideaal gasmengsel in een gravitatieveld of een centrifugaal veld bepaald wordt. In een centrifugaal veld is de uitdrukking voor de partiële druk p_1 van een gas, als functie van de radius, analoog aan die van een gas in het zwaartekrachtsveld als functie van de hoogte.

$$p_1(r) = p_1(0)e^{\frac{M_1\omega^2 r^2}{2RT}} \quad (1.1)$$

Hierbij is ω de hoeksnelheid van het star roterende gas, T de absolute temperatuur, M_1 het moleculair gewicht en R de algemene gasconstante; $R = 8,314 \cdot 10^7$ erg $^{\circ}\text{K}^{-1}$ mol $^{-1}$.

De potentiële energie — Mgh uit de barometrische hoogteformule wordt voor een centrifugaal veld dus vervangen door $\frac{M\omega^2 r^2}{2}$, een potentiële energieterm afkomstig van de rotatie. Voor een binair ideaal gasmengsel is de verhouding van de partiële drukken tevens de verhouding van de molaire concentraties N en $(1-N)$, dus gelijk aan de molaire veelvuldigheidsverhouding of molenbreuk R .

In de evenwichtstoestand wordt in een centrifuge met straal r_2 de elementaire scheidingsfactor a_0 gegeven door de verhouding van de molenbreuken aan de wand en in het hart van de centrifuge.

$$a_0 = \frac{\left(\frac{N}{1-N}\right)_{r=r_2}}{\left(\frac{N}{1-N}\right)_{r=0}} = \frac{R(r_2)}{R(0)} = e^{\frac{(M_1 - M_2)\omega^2 r_2^2}{2RT}} \quad (2.1)$$

Uit deze uitdrukking voor de elementaire scheidingsfactor volgt reeds direct, dat het scheidingsmechanisme in een centrifugaal veld

een functie is van het massaverschil, en niet van het relatieve massa-verschil.

Verder is a_0 een functie van de absolute temperatuur en van het kwadraat van de omtreksnelheid. De elementaire scheidingsfactor kan dus exact berekend worden. Voor een massaverschil van één eenheid, een absolute temperatuur van 300 °K en een omtreksnelheid van 350 meter/sec. is $a_0 = 1,0248$.

De elementaire theoretische beschouwing van Lindemann en Aston werd uitgewerkt door o.a. Mulliken^{2,3}), die tevens een methode aangaf, de verdampingsmethode, om een mengsel met behulp van een centrifuge te scheiden. Bij deze methode wordt een kleine hoeveelheid vloeistof in de centrifuge gebracht die in een dunne laag tegen de periferie van de centrifuge wordt gedrukt. De vloeistof verdampt aan de wand, diffundeert tegen de centrifugale kracht in naar het hart van de centrifuge en wordt vervolgens afgezogen door de holle as. De scheiding vindt plaats in het centrifugaal veld. Deze discontinuë methode is in feite een Rayleigh destillatie van de vloeistof.

De eerste pogingen van Jolly en Pool⁴) en van Mulliken^{2,3}) om de elementaire separatiefactor aan te tonen mislukten. Dit was waarschijnlijk te wijten aan het feit dat zij hun centrifuges niet in vacuüm lieten roteren, waardoor convectieve stromingen in de centrifuge rotor, die het gevolg zijn van warmteontwikkeling in de behuizing, de separatie weer te niet deden.

Eerst met de ontwikkeling van in vacuüm roterende centrifuges door Beams^{5,6,7}) in 1935, bleek het mogelijk de theoretische scheidingsfactoren te verifiëren. De eerste experimenten werden uitgevoerd met tetrachloorkoolstof, waarbij de scheiding van de chloorisotopen ³⁵Cl en ³⁷Cl werd aangetoond. Beams en Skarstrom⁸) toonden aan dat de verandering van de ³⁵Cl/³⁷Cl verhouding in een verdampingscentrifuge 13 % bedroeg. Kort daarop werd door Humphreys⁹) met een soortgelijke apparatuur onder gebruikmaking van dezelfde methode een verandering van de ⁷⁹Br/⁸¹Br isotopenverhouding van 11 % gemeten. Het gebruikte gas was hierbij ethylbromide.

Behalve de verdampingsmethode werden ook andere methoden gebruikt om isotopen met behulp van ultracentrifuges te scheiden. Een elementaire theoretische beschouwing laat zien, dat de productie of de capaciteit van een cilindervormige centrifuge evenredig is met de lengte. Uit dien hoofde construeerde Beams^{6,7}) dan ook

reeds in een vroeg stadium een buisvormige centrifuge, die bedreven kon worden in vacuüm. Met behulp van dit type voerde hij enkele separaties uit volgens de doorstroom- of parallelmethode. In de meest eenvoudige vorm wordt hierbij aan één zijde van de centrifuge het gas door een holle as toegevoerd, terwijl het gas aan de tegenovergestelde zijde in twee fracties wordt afgetapt. De ene fractie, afgetapt in het hart van de centrifuge, is verrijkt aan lichte isotopen, de andere fractie, afgetapt aan de periferie van de centrifuge, is verarmd aan lichte isotopen. De maximale scheidingsfactor, die hierbij behaald kan worden, is uiteraard de elementaire scheidingsfactor. In hoeverre deze maximale verrijking bereikt wordt, hangt af van de lengte van de centrifuge, en van de doorstroomsnelheid. Bij deze methode vond Beams met ethyl-chloride damp een scheidingsfactor van de chloorisotopen van 1,025, bij een doorstroomsnelheid van 2 g per minuut. Met dezelfde apparatuur werden ook vele separaties uitgevoerd van stikstof—zuurstof en stikstof—koolzuur mengsels.

Tenslotte stelde Urey¹¹⁾ voor de centrifuge volgens het tegenstroomprincipe te gebruiken. Bij deze methode stroomt het gas in het centrale deel van de centrifuge in axiale richting, terwijl aan de periferie het gas in tegengestelde richting stroomt. Tussen de twee tegengesteld gerichte stromen vindt een voortdurende uitwisseling van isotopen plaats. Hierdoor wordt de stroom in het hart van de centrifuge stroomafwaarts steeds rijker aan lichte deeltjes, terwijl de tegenstroom aan de periferie stroomafwaarts steeds rijker wordt aan zware deeltjes. Op deze wijze wordt als gevolg van de radiale ontmenging en de twee tegengesteld gerichte axiale stromingen een axiale concentratiegradiënt opgebouwd. Ook hierbij zal uiteraard de lengte en de produktie van de centrifuge onder meer bepalend zijn voor de scheidingsfactor. Op deze wijze wordt in één centrifuge een cascade effect gesorteerd, zoals dat ook het geval is in thermo-diffusiekolommen, destillatiekolommen e.d.

Bij warmteuitwisseling vinden we analoge processen als bij isotopenscheiding en wel in de vorm van warmteuitwisseling in dwarsstroom, parallelstroom en tegenstroom. De formules die deze processen beschrijven vertonen dan ook grote overeenkomst met de uitdrukkingen voor isotopenscheiding.

Urey stelde voor de tegenstroom te realiseren door de centrifuge gedeeltelijk met vloeistof te vullen en vervolgens de verticaal in het zwaartekrachtsveld draaiende rotor aan de onderzijde te verwarmen en aan de bovenzijde te koelen. Dientengevolge vindt bij het onder-

deksel verdamping plaats, de damp stijgt op en condenseert aan de bovenzijde. In een dunne vloeistoffilm stroomt het materiaal langs de wand van de rotor weer naar beneden. Door Beams werden inderdaad bij een dergelijk experiment met CCl_4 verrijkingen gevonden, die groter waren dan de elementaire scheidingsfactor, waardoor het bewijs geleverd werd, dat op deze manier een vermenigvuldiging bereikt kan worden.

Bramberg en Brewer¹²⁾ en onafhankelijk van hen Martin en Kuhn¹³⁾ stelden voor om de tegenstroom te bewerkstelligen door thermoconvectie.

§ 2. De ontwikkeling van de theorie

Door Humphreys⁹⁾ werden de elementaire beschouwingen van Mulliken^{2,3)} over de verdampingscentrifuge uitgebreid, waarbij hij speciaal de invloed van de aftap op de verrijking berekende.

De theorie voor de tegenstroomcentrifuge werd in eerste instantie gegeven door Bramley en Brewer¹²⁾ en door Martin en Kuhn¹³⁾. Uitgangspunt van hun beschouwingen was, dat in de partiële differentiaalvergelijking die het concentratieveld in een tegenstroomcentrifuge beschrijft, de gradiënt van de concentratie in alle richtingen klein is, waardoor het mogelijk is een eenvoudige oplossing te vinden voor de concentratie als functie van de axiale coördinaat. Dezelfde methode werd gevolgd door Furry, Jones en Onsager¹⁴⁾ bij de beschrijving van de thermodiffusiekolom.

Door Martin en Kuhn werd aangenomen dat twee stromen op verschillende afstand van de as axiaal in tegengestelde richting stromen. De buitenste stroom vindt plaats langs de wand van de centrifuge. Bij totale reflux, d.w.z. zonder aftap, vonden zij voor de maximale scheidingsfactor tussen de twee eindvlakken van de centrifuge

$$\alpha = e \frac{(M_2 - M_1) \omega^2 r_2^2}{2RT} \frac{l}{2r_2} \quad (3.1)$$

waarbij l de lengte van de centrifuge is. De elementaire scheidingsfactor wordt dus $\frac{1}{2r_2}$ maal vermenigvuldigd door een tegenstroomcirculatie van de juiste sterkte.

Aan Cohen¹⁵⁾ en medewerkers bleef het evenwel voorbehouden de gehele theorie der isotopenscheiding in het algemeen, waaronder ook de isotopenscheiding met behulp van centrifuges, te ontwikkelen.

In de eerste twee hoofdstukken van zijn werk worden de ideale cascade, en de rechthoekige of kolomcascade beschreven, terwijl tevens de voor isotopenscheiding fundamentele grootheden als scheidend vermogen en waardefunctie worden afgeleid. In hoofdstuk II van dit proefschrift wordt na een korte samenvatting van deze theorie het verband aangetoond dat bestaat tussen de verandering der mengentropie in een cascade tengevolge van de ontmenging en het scheidend vermogen. Aan het slot van dit hoofdstuk wordt een uitbreiding gegeven van de theorie voor de kolomcascade, omdat die voor een exacte behandeling van de verrijking in een centrifuge noodzakelijk is.

Het derde hoofdstuk van het werk van Cohen is gewijd aan de tijdsafhankelijke verschijnselen in een kolomcascade, terwijl in de twee volgende hoofdstukken controle en regelproblemen van een cascade besproken worden. Daar de insteltijd van een cascade in de meeste gevallen evenredig is met de „holdup”, de hoeveelheid materiaal die bij de separatie betrokken is, zijn deze problemen bij een centrifuge van weinig belang. Het scheidingsmechanisme bij een centrifuge is onafhankelijk van de druk, die in de centrifuge heerst. In het algemeen zal deze druk zo laag mogelijk gekozen worden teneinde de belasting van de rotorwand zo laag mogelijk te houden. In vele gevallen zal zelfs met zeer lage drukken gewerkt worden, omdat de dampspanning bij kamertemperatuur van de meeste verbindingen der zware elementen uiterst laag ligt. Op die wijze kan voorkomen worden dat gewerkt moet worden bij temperaturen, die aanzienlijk boven de kamertemperatuur liggen, waardoor de sterkte van de cylinderwand ongunstig beïnvloed zou worden.

Tenslotte behandelt Cohen enkele specifieke scheidingsmethoden, waaronder als eerste de centrifugemethode. De meest algemene partiële tijdsafhankelijke differentiaalvergelijking voor het concentratieveld in een centrifuge wordt afgeleid uit een continuïteitsbeschouwing van een infinitesimaal ringetje, dat concentrisch met de as van de centrifuge is. Verondersteld is hierbij dat het gasmengsel in de centrifuge een axiale of radiale snelheid kan hebben en dat de tangentiële snelheid op radius r gegeven wordt door ωr , d.w.z. dat het gas star roteert met de hoeksnelheid van de trommel. Bovendien wordt aangenomen dat het gas isotherm is. Door de axiale snelheid in deze vergelijking nul te stellen, volgt dan de differentiaalvergelijking voor de verdampingscentrifuge, door de radiale snelheid nul te stellen, voor de doorstroomcentrifuge en de tegenstroomcentrifuge.

In hoofdstuk 3 van dit proefschrift wordt aangeknoopt bij de theorie betreffende de tegenstroomcentrifuge, waarbij meer in het bijzonder de invloed van de vorm van de tegenstroomwervel op het rendement van de centrifuge beschouwd zal worden.

§ 3. De verschillende typen van de tegenstroomcentrifuge

Scheidingselementen die werken volgens het tegenstroomprincipe hebben in het algemeen de eigenschap dat de elementaire scheidingsfactor in één element vele malen vermenigvuldigd wordt. De voordelen van een dergelijke vergroting van de verrijking per element zijn evident. Een groot deel van het materiaaltransport tussen de elementen in een cascade, dat nodig is om de elementaire scheidingsfactor te vermenigvuldigen, komt te vervallen, daar dit bij tegenstroomelementen intern gebeurt. Dit betekent een grote besparing aan kranen, pompen en leidingen. In de tweede plaats zal het aantal elementen in serie, dat nodig is om een gegeven verrijkingsgraad te bereiken, geringer zijn, waardoor de cascade kort en breed wordt in plaats van lang en smal. Hierdoor is de cascade weer gemakkelijk te splitsen in kleine parallele secties, waardoor de regeling en controle eenvoudig kunnen zijn. Tenslotte is het tegenstroomelement zelf, vanuit het standpunt van het scheidingsproces bezien, zeer efficiënt. Door de tegenstroomuitwisseling kan de concentratiegradiënt in radiale richting constant gehouden worden, waardoor het separatiemechanisme effectief werkt; dit in tegenstelling tot doorstroomelementen waar de radiale concentratiegradiënt een functie is van de axiale coördinaat.

Op grond van deze overwegingen is in de latere jaren de meeste aandacht besteed aan de tegenstroomcentrifuges.

Na de eerste proefnemingen met een tegenstroomcentrifuge, waarbij de suggestie van Urey werd gevolgd, werd door Beams en medewerkers¹⁶⁾ een centrifuge geconstrueerd waarbij het mogelijk was een goed gedefinieerde regelbare tegenstroom in de centrifuge op te wekken (zie fig. 6a.3). Hiertoe is de rotor aan weerszijden voorzien van dikke holle astappen, bestaande uit twee concentrische cilindres. Het binnenste kanaal mondt via een aantal radiale boringen in het einddeksel uit in de centrifugeruimte. De openingen van de boringen vormen een krans van gaatjes op ongeveer de halve diameter van de buitendiameter van de rotor. Het buitenste ringvormige

kanaal is op dezelfde wijze verbonden met de centrifugeruimte. De krans van gaatjes is hierbij aan de periferie geboord. Aan de zijde der stilstaande behuizing monden de kanalen uit in verschillende ruimten, die door afdichtingen op de roterende as van elkaar en van de vacuumruimte om de centrifugerotor gescheiden zijn. De beide uiteinden zijn op dezelfde wijze uitgevoerd.

Door deze constructie is het mogelijk twee concentrische cylinderstromen in de centrifuge op te wekken, die van buitenaf door het aanbrengen van drukverschillen aangedreven en geregeld worden. Indien de drukverschillen voor de beide stromen in dezelfde richting worden aangelegd, lopen de stromen parallel, in het andere geval antiparallel. Deze centrifuge biedt dus twee bedrijfsmogelijkheden. Bovendien kunnen stromen van verschillende concentratie toegevoerd worden, wat belangrijk is voor het scheidingsrendement.

De rotor draait in hoogvacuum ter voorkoming van oncontroleerbare warmtetoevoer, wat zou kunnen leiden tot ernstige verstoringen van de stroming.

Voor deze configuratie is de scheidingsfactor en het scheidingsrendement zeer goed te berekenen, omdat zowel de vorm als de sterkte van de interne stroming in de rotor goed bekend zijn.

Door de groep van Beams¹⁶⁾ werden met dit type centrifuge een groot aantal metingen verricht. De meeste experimenten werden gedaan met UF_6 , om de scheiding van de uranium isotopen te bestuderen. Zowel de parallelstroom als de tegenstroommethode werden grondig beproefd. Vrijwel alle parameters, die invloed hebben op het scheidingsmechanisme, werden gevarieerd. Zo werd gewerkt met centrifuges van verschillende afmetingen en met verschillende omtreksnelheden; de stroomsterkte werd gevarieerd en de aftap werd gevarieerd. Onder de aftap verstaan we het verschil tussen de twee concentrische stromen in absolute zin.

De overeenstemming tussen de metingen en de theorie is zeer verschillend onder verschillende bedrijfsomstandigheden. Echter vooral bij de tegenstroommethode zijn er vele waarnemingen, waarbij het scheidend vermogen 80 % van de theoretisch berekende waarde bedraagt, de scheidingsfactor 90 %^{16,17)}.

Door Beyerle, Groth en medewerkers¹⁸⁾ werd naar het voorbeeld van een der eerste centrifuges van Beams⁶⁾ een centrifuge geconstrueerd. Na de eerste metingen van het elementaire ontmengings-effect trachtten zij een vermenigvuldiging te bereiken door de

centrifugeruimte te verdelen in een aantal kamers in axiale richting. Door openingen in de dubbele tussenschotten is het centrum van een kamer verbonden met de periferie van de volgende kamer. Door nu het gas van buitenaf heen en weer door de centrifuge te stuwen (schommelen), wordt bereikt dat in de evenwichtstoestand de concentratie in het hart van een kamer gelijk is aan de concentratie aan de periferie van de volgende kamer. De kamers zijn dus in serie geschakeld, en het elementair effect wordt vermenigvuldigd met het aantal kamers. De centrifuges roteren in een waterstofatmosfeer met een druk van ongeveer 4 cm Hg., dit omdat via de waterstofmantel een goede thermostering van de rotor bereikt kan worden. Metingen werden verricht met Xe, Kr en UF₆.

In 1950 publiceerde Martin¹⁹⁾ een theoretisch artikel over de thermo-convectiestroom langs een verticale wand in een sterk gravitatieveld. Na transformatie op cylindercoördinaten paste Martin de berekening toe op centrifugale velden.

Martin's beschouwing laat zien, dat een zeer dunne grenslaagstroming in radiale richting ontstaat langs het einddeksel van een centrifuge, indien dit deksel een gering temperatuurverschil ten opzichte van het gas in de centrifuge heeft (zie fig. 6b.3). De stroming is naar binnen gericht bij een overtemperatuur, naar buiten bij een ondertemperatuur van het deksel. Het transport van de grenslaagstroming over de omtrek op straal r is evenredig met $\sqrt{\rho r}$. Daar de dichtheid ρ evenredig is met $\exp \frac{M\omega^2 r^2}{2RT}$ betekent dit, dat bij naar binnen gerichte stroming gas in axiale richting moet afvloeien, bij naar buiten gerichte stroming gas wordt aangezogen. De suggestie van Martin om het ene deksel te koelen, het andere te verwarmen werd door Hertz en Nann²⁰⁾ met succes gevolgd. Een scheiding der Xenon isotopen werd gemeten, die vijfmaal het elementair effect bedroeg. Door Groth en zijn medewerkers^{21,22,23)} werden systematisch een aantal metingen verricht met UF₆. Gemeten werd de verrijking bij totale reflux als functie van ΔT , het aangelegde temperatuurverschil. Ook werd de verrijking als functie van de aftap gemeten. Deze experimenten zijn in goede overeenstemming met de theorie.

Van 1946 tot 1954 heeft in Suchumi onder leiding van Steenbeck een groep gewerkt aan de ontwikkeling van een revolutionair type centrifuge^{25,26,27,28)}. Bij het ontwerp van deze centrifuge is een zeer geraffineerd gebruik gemaakt van de eigenschappen van snel roterende

lichamen. De centrifuge bestaat uit een dunwandige aluminium cylinder, aan de onderzijde gelagerd op een zeer flexibele taats. Doordat een snel draaiende tol in het zwaartekrachtsveld zeer stabiel is, kan aan de bovenzijde volstaan worden met een magnetische lagering. Praecessie en nutatie worden uitgedempt. Bij de hoge omtreksnelheden, 400 m/sec, is de exponentiële drukopbouw in de rotor zeer steil. Voor UF_6 bedraagt bij kamertemperatuur de verhouding tussen de druk in het hart en aan de wand van de centrifuge 1 op 60.000. Dit betekent dat bij een druk van 60 mm Hg aan de wand, de druk in het hart slechts 1μ Hg bedraagt. Dit geeft de mogelijkheid om het einddeksel aan de bovenzijde van een ronde opening te voorzien, waardoor niet roterende toe- en afvoerkanalen geïntroduceerd kunnen worden. Bovendien biedt deze opening de mogelijkheid een stilstaande schijf in de draaiende centrifugekamer aan te brengen (zie fig. 6c.3). Het gas zal aan deze schijf afgeremd worden, wat tot gevolg heeft dat het gas niet star roteert met de hoeksnelheid van de rotor, maar ter plaatse van de schijf een differentiële rotatie vertoont.

Daardoor ontstaan axiale drukverschillen, die aanleiding zijn tot een axiale tegenstroomwervel. Door Steenbeck²⁴⁾ werd theoretisch de sterkte en het profiel van een wervel berekend onder de veronderstelling van geringe differentiële rotaties over de lengterichting van de rotor. Deze berekeningen zullen geldig zijn op grote afstand van het versturende stilstaande element. Experimenten gedaan door Zippe^{25,26,27,28)} toonden de bruikbaarheid van een dergelijke methode aan.

CASCADETHEORIE

§ 1. Ideale cascades

De theorie van isotopenscheidingscascades voor de scheiding van binaire isotopenmengsels steunt op enkele fundamentele begrippen, „scheidend vermogen”, „scheidingscapaciteit” en „waardefunctie”, welke begrippen ten nauwste verband houden met de ideale cascade. Onder een ideale cascade verstaan we een zodanige schakeling van de scheidingselementen, dat nergens menging optreedt tussen stromen met verschillende concentraties. Een ideale cascade is dus ideaal vanuit een thermodynamisch standpunt bezien, daar nergens het irreversibele mengen wordt toegepast. Afgeleid kan nu worden dat het aantal elementen, dat nodig is om een gestelde taak uit te voeren, indien deze elementen ideaal geschakeld worden, gelijk is aan de scheidingscapaciteit van de cascade gedeeld door het scheidend vermogen van één element. De scheidingscapaciteit is een functie, die de taak van de cascade omschrijft, een functie dus van de concentraties van productstroom, voedingsstroom en afvalstroom en van de grootte van deze stromen. Het scheidend vermogen van een element bevat uitsluitend die parameters, die kenmerkend zijn voor het element zelf, te weten de verrijkingsfactor en de grootte van de voedingsstroom, die aan één element wordt toegevoerd. Het scheidend vermogen is dus een grootte, die de waarde van een element kenmerkt onafhankelijk van de isotopenverhouding van het te scheiden mengsel. Door deze functies, die bij een eenvoudige beschouwing van de ideale cascade op zeer natuurlijke wijze naar voren komen, te gebruiken als standaardfuncties hebben we de mogelijkheid om enerzijds verschillende cascadevormen te toetsen aan de ideale cascade, anderzijds om verschillende scheidingselementen met elkaar te vergelijken; elementen, welke niet volgens hetzelfde fysische principe behoeven te werken. De cascadetheorie beschouwt nl. in eerste instantie niet het fysische proces waarmee separatie tot stand wordt gebracht, doch beschouwt slechts de vermenigvuldiging van het elementaire proces. Dit is mogelijk omdat de mathematische formuleringen van de diverse processen genoeg overeenstemming vertonen om één uitgangspunt te kiezen. Teneinde

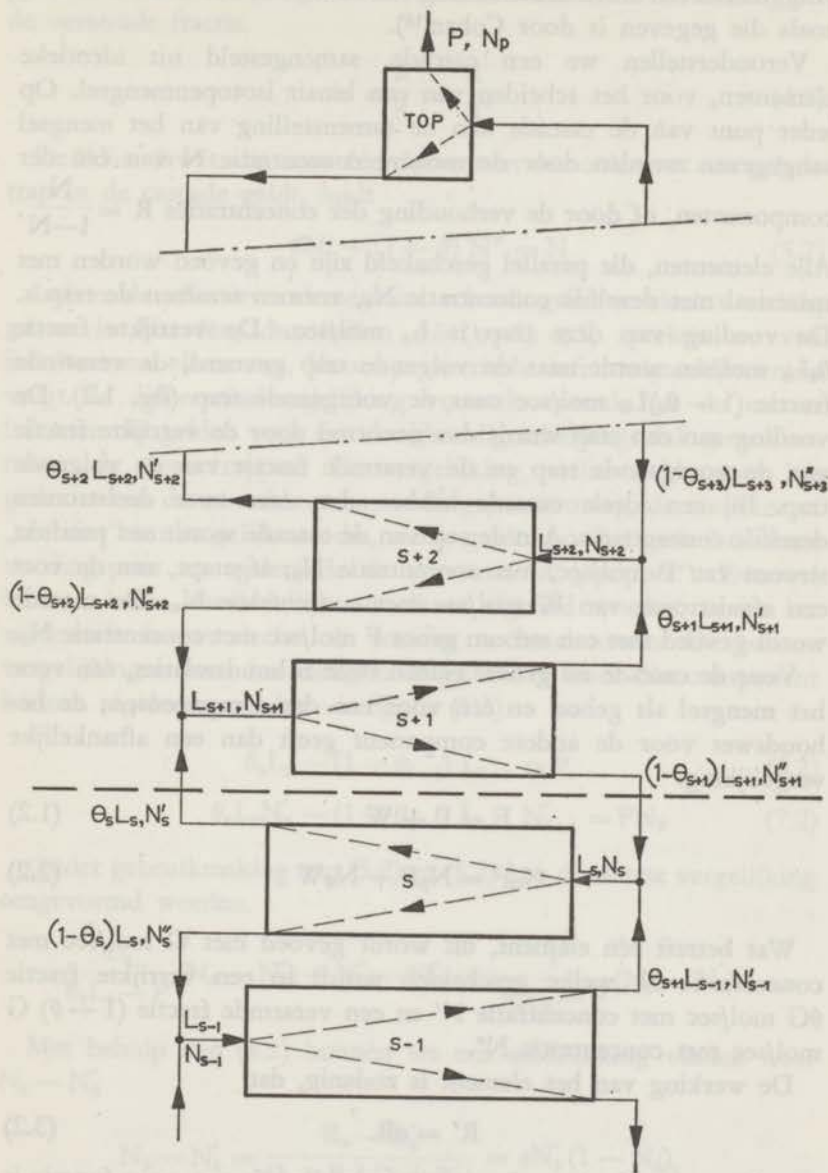


Fig. 1-2

de fundamentele concepten van de cascadetheorie duidelijk te maken volgt hierna een korte samenvatting van de theorie der ideale cascades, zoals die gegeven is door Cohen¹⁵).

Veronderstellen we een cascade, samengesteld uit identieke elementen, voor het scheiden van een binair isotopenmengsel. Op ieder punt van de cascade kan de samenstelling van het mengsel aangegeven worden door de molaire concentratie N van één der componenten, of door de verhouding der concentraties $R = \frac{N}{1-N}$.

Alle elementen, die parallel geschakeld zijn en gevoed worden met materiaal met dezelfde concentratie N_s , vormen tezamen de trap s . De voeding van deze trap is L_s mol/sec. De verrijkte fractie $\theta_s L_s$ mol/sec wordt naar de volgende trap gevoerd, de verarmde fractie $(1 - \theta_s)L_s$ mol/sec naar de voorgaande trap (fig. 1.2). De voeding aan een trap wordt dus gevormd door de verrijkte fractie van de voorgaande trap en de verarmde fractie van de volgende trap. Bij een ideale cascade hebben dus deze twee deelstromen dezelfde concentratie. Aan de top van de cascade wordt een produkt stroom van P mol/sec, met concentratie N_p , afgetapt, aan de voet een afvalstroom van W mol/sec met concentratie N_w . De cascade wordt gevoed met een stroom groot F mol/sec met concentratie N_0 .

Voor de cascade als geheel gelden twee behoudsrelaties, één voor het mengsel als geheel en één voor een der componenten; de behoudswet voor de andere component geeft dan een afhankelijke vergelijking.

$$F = P + W \quad (1.2)$$

$$N_0 F = N_p P + N_w W \quad (2.2)$$

Wat betreft één element, dit wordt gevoed met G mol/sec met concentratie N , welke gescheiden wordt in een verrijkte fractie θG mol/sec met concentratie N' en een verarmde fractie $(1 - \theta) G$ mol/sec met concentratie N'' .

De werking van het element is zodanig, dat

$$R' = \alpha R \quad (3.2)$$

waarbij α , de effectieve elementaire scheidingsfactor, geen functie is van de concentratie. De scheidende werking van de meeste separatie-elementen voldoet aan deze eenvoudige betrekking, of kan in eerste orde benadering hiertoe herleid worden. Bij een symmetrisch element,

tot welke elementen wij ons voorlopig zullen bepalen, is a eveneens gelijk aan de verhouding van de molenbreuken van de voeding en de verarmde fractie.

$$a = \frac{R'}{R} = \frac{R}{R''} \quad (4.2)$$

De behoudswet, die voor één element en dus ook voor een gehele trap in de cascade geldt, luidt

$$\theta N' + (1 - \theta) N'' = N \quad (5.2)$$

Indien de effectieve elementaire scheidingsfactor slechts weinig groter is dan één, dus indien $\varepsilon = (a-1) \ll 1$, spreken we van infinitesimaal elementen. Voor symmetrische infinitesimaalelementen volgt de differentiaalvergelijking voor de cascade uit de massabalansen die gelden voor een denkbeeldig scheidingsvlak getrokken tussen de twee trappen. De vergelijking, welke geldt voor het gedeelte van de cascade tussen voedingspunt en top, de verrijker of „rectifier” is niet gelijk aan die, welke geldt voor het gedeelte tussen voedingspunt en onderzijde de verarmer of „stripper”. Evenwel kunnen beide onmiddellijk uit elkaar afgeleid worden, zodat het voldoende is om slechts de rectifier te beschouwen. De balansvergelijkingen voor het mengsel als geheel en voor één component kunnen afgelezen worden uit figuur (1.2).

$$\theta_s L_s - (1 - \theta_{s+1}) L_{s+1} = P \quad (6.2)$$

$$\theta_s L_s N_s' - (1 - \theta_{s+1}) L_{s+1} N_{s+1}' = P N_p \quad (7.2)$$

Onder gebruikmaking van (5.2) en (6.2) kan de laatste vergelijking omgevormd worden.

$$\frac{L_s}{\theta_s L_s - P} (N_s - N_s') + N_s' - N_{s+1}' = \frac{P}{\theta_s L_s - P} (N_p - N_s')$$

Met behulp van (4.2) kunnen we een uitdrukking vinden voor $N_s - N_s'$

$$N_s - N_s' = \frac{R_s - R_s'}{(1 + R_s)(1 + R_s')} = \varepsilon N_s' (1 - N_s),$$

welke uitdrukking voor zeer kleine ε overgaat in

$$N_s - N_s' = \varepsilon N_s' (1 - N_s') \quad (8.2)$$

Bovendien volgt uit vergelijking (6.2), dat indien $P \ll L$, en indien L slechts langzaam varieert als functie van s , voorwaarden waaraan in een cascade in het algemeen zeker voldaan wordt, dat dan alle waarden van θ , zeer dicht bij $1/2$ zullen liggen. Voor de vrijwel continuë cascade die bestaat uit infinitesimaal elementen volgt hieruit dan de differentiaalvergelijking

$$\frac{dN}{ds} = 2\varepsilon N(1-N) - \frac{2P}{L}(N_p - N) \quad (9.2)$$

Voor de stripper moeten we P vervangen door $-W$, N_p door N_w .

$$\frac{dN}{ds} = 2\varepsilon N(1-N) + \frac{2W}{L}(N_w - N) \quad (10.2)$$

Bij de opstelling van deze vergelijkingen is geen gebruik gemaakt van de condities $N'_s = N_{s+1}$ en $N_{s+1} = N_s$, welke gelden voor een ideale cascade. De vergelijkingen hebben dus algemene geldigheid onder de beperkingen $\varepsilon \ll 1$ en $P \ll L$. Voor de ideale cascade vinden we volgens een volledig analoge wijze als bij de afleiding van (8.2) gevolgd werd, voor de concentratiegradiënt

$$\frac{dN}{ds} = \varepsilon N(1-N) \quad (11.2)$$

waaruit door integratie volgt

$$R = R_0 e^{\varepsilon s} \quad (12.2)$$

Uit de differentiaalvergelijking (9.2) respectievelijk (10.2) volgt voor de voedingsstroom L aan een trap in de rectifier respectievelijk de stripper

$$L = \frac{2P(N_p - N)}{\varepsilon N(1-N)} \quad (13.2)$$

$$L = -\frac{2W(N_w - N)}{\varepsilon N(1-N)} \quad (14.2)$$

De totale voedingsstroom aan alle trappen in de cascade vinden we door integratie over de lengte van de stripper en de rectifier. Hierbij dienen we te bedenken dat

$$L ds = L \frac{ds}{dN} dN = \frac{L}{\varepsilon N(1-N)} dN$$

Delen we de totale voedingsstroom door G , de voedingsstroom aan één element, dan vinden we het aantal elementen in de cascade.

$$n = \frac{1}{G\varepsilon^2} \int_{N_w}^{N_o} -\frac{W(N_w - N)}{N^2(1-N)^2} dN + \frac{1}{G\varepsilon^2} \int_{N_o}^{N_p} \frac{P(N_p - N)}{N^2(1-N)^2} dN =$$

$$= \frac{PV(N_p) + WV(N_w)}{\frac{G\varepsilon^2}{2}} = \frac{U_p + U_w}{\frac{G\varepsilon^2}{2}} = \frac{\Delta U}{\delta U} \quad (15.2)$$

Hierbij is $V(N)$ de waardefunctie gegeven door

$$V(N) = (2N - 1) \ln \frac{R}{R_o} + (N - N_o) \frac{1 - 2N_o}{N_o(1 - N_o)} \quad (16.2)$$

De waarde van een stroom wordt gegeven door U , welke functie het product is van de stroomsterkte en de waardefunctie. Het aantal elementen wordt dus gegeven door het quotiënt van de scheidings-taak of scheidingscapaciteit van de cascade ΔU , gedeeld door het scheidend vermogen van één element δU .

Door gebruik te maken van de behoudsrelaties voor de cascade (1.2) en (2.2) kunnen we tot een iets andere formulering komen.

$$n = \frac{PV'(N_p) + WV'(N_w) - FV'(N_o)}{\delta U} = \frac{U'_p + U'_w - U'_o}{\delta U} = \frac{\Delta U}{\delta U} \quad (17.2)$$

$$V'(N) = (2N - 1) \ln R \quad (18.2)$$

De functies met een accent heten de elementaire functies. De waardefunctie en de elementaire waardefunctie verschillen hierin dat de referentiepunten anders gekozen zijn.

$$\text{Voor } N = N_o \text{ is } V(N) = \frac{dV(N)}{dN} = 0.$$

$$\text{Voor } N = \frac{1}{2} \text{ is } V'(N) = \frac{dV'(N)}{dN} = 0.$$

Voor beide functies geldt:

$$\frac{d^2V(N)}{dN^2} = \frac{d^2V'(N)}{dN^2} = \frac{1}{N^2(1-N)^2} \quad (19.2)$$

Voor de niet ideale cascade vinden we het benodigde aantal elementen voor een gegeven scheidingstaak eveneens uit de totale voedingsstroom aan alle trappen gedeeld door de voedingsstroom aan één element. Teneinde het aantal elementen minimaal te maken moet de integraal van L minimaal zijn.

$$\int_0^{s_p} L ds = \int_{N_0}^{N_p} L \cdot \frac{ds}{dN} dN = \int_{N_0}^{N_p} \frac{1}{\varepsilon N(1-N)} \frac{L^2}{(2L-L^*)}$$

waarbij
$$L^* = \frac{2P(N_p-N)}{\varepsilon N(1-N)}$$

de voedingsstroom is in de ideale cascade volgens (13.2). De functie L bepaalt de cascade, dus de variatie van de integraal over de voedingsstroom naar L , geeft de minimale waarde van deze totale voedingsstroom. Daartoe moet

$$\frac{d}{dL} \frac{L^2}{2L-L^*} = 0,$$

waaruit volgt

$$L = L^*.$$

De nodige voorwaarde, waaraan $\frac{dN}{ds}$ dus moet voldoen, is $\frac{dN}{ds} = \varepsilon N(1-N)$, de voorwaarde voor een ideale cascade.

De ideale cascade is dus die cascade, die voor een gegeven taak het minimale aantal elementen nodig heeft, of waarbij de minimale stroomcirculatie in de cascade nodig is. Bij die separatiemethoden, waarbij de kosten voornamelijk bepaald worden door de stroomcirculatie of door de elementen of door beiden zal in het algemeen een cascadevorm, die de ideale zeer dicht benadert, de meest economische zijn. Bij een diffusiefabriek, waar ten behoeve van de stroomcirculatie grote energiehoeveelheden en grote investeringen nodig zijn, zal de cascadevorm praktisch ideaal zijn; echter ook bij een centrifugefabriek, waar de kapitaalsinvesteringen per element een belangrijke post uitmaken, zal een ideale cascade worden gekozen.

§ 2. De entropieproductie in de ideale cascade

Voor de entropie geldt, zoals voor iedere extensieve grootheid, een behoudswet. De toename van de entropie in een volume element is de som van de hoeveelheid entropie, die het volume element binnenstroomt, en de entropieproductie in het volume element. Zij s^* de entropie per eenheid van massa, ρ de dichtheid, Φ de entropiestroomdichtheid en σ de entropieproductie per volume eenheid, dan is de formulering van de totale behoudswet van de entropie ^{29, 30}).

$$\frac{d}{dt} \int \rho s^* dV = - \int \Phi \cdot dS + \int \sigma dV \quad (20.2)$$

De locale vorm van deze behoudswet wordt dan gevonden met behulp van de stelling van Stokes

$$\frac{\partial}{\partial t} \rho s^* = - \operatorname{div} \Phi + \sigma \quad (21.2)$$

Voor de cascade hebben we stilzwijgend een stationaire toestand verondersteld, zodat de partiële afgeleiden naar de tijd nul zijn. Beschouwen we weer het denkbeeldige scheidingsvlak door de cascade (fig. 1.1). De entropiestroom door dit vlak wordt gegeven door

$$\begin{aligned} - \Phi \cdot dS &= \frac{1}{T} P N_p \mu_1 + \frac{1}{T} P (1 - N_p) \mu_2 = \\ &= R \{ P N_p \ln N + P (1 - N_p) \ln (1 - N) \} \end{aligned} \quad (22.2)$$

Hierbij werd gebruik gemaakt van de thermodynamische potentiaal μ per mol; R is de algemene gasconstante. De entropieproductie $(\sigma)_{\text{trap}}$ moet nu volgens de behoudswet gelijk zijn aan de afgeleide van de entropiestroom.

$$\begin{aligned} -(\sigma)_{\text{trap}} &= \frac{d}{ds} R \{ P N_p \ln N + P (1 - N_p) \ln (1 - N) \} = \\ &= R \frac{P(N_p - N)}{N(1 - N)} \frac{dN}{ds} \end{aligned} \quad (23.2)$$

Maken we gebruik van de cascadevergelijking (9.2), dan vinden we

$$-(\sigma)_{\text{trap}} = R \frac{L \varepsilon N (1 - N) - \frac{L}{2} \frac{dN}{ds}}{N(1 - N)} \frac{dN}{ds}$$

Als functie van de concentratiegradiënt $\frac{dN}{ds}$ is de entropieproductie per trap minimaal, indien $\frac{dN}{ds} = \varepsilon N (1 - N)$, welke voorwaarde de conditie is voor een ideale cascade. De ideale cascade kan dus ook gedefinieerd worden als die cascade, waarbij de entropieproductie per trap als functie van de concentratiegradiënt minimaal is. Met opzet hebben we de omschrijving als functie van de concentratiegradiënt gebruikt, omdat alle andere bijdragen tot de entropieproductie buiten beschouwing gebleven zijn. Deze formulering drukt volledig uit, dat bij de ideale cascade geen menging tussen stromen met verschillende concentratie plaats vindt.

De minimale entropieproductie per trap is dus

$$-(\sigma)_{\text{trap min}} = R L \varepsilon^2 N (1 - N) = R \varepsilon P (N_p - N) \quad (23.2)$$

Integratie over s geeft uiteraard het verschil tussen de entropiestromen van de beide aftappunten der cascade, en de entropiestroom van het voedingspunt.

$$\begin{aligned} -\frac{\dot{\Delta S}}{R} &= \int_{-s_w}^0 \varepsilon W (N - N_w) ds + \int_0^{s_p} \varepsilon P (N_p - N) ds = \\ &= \int_{N_w}^{N_o} \frac{W (N - N_w)}{N(1 - N)} dN + \int_{N_o}^{N_p} \frac{P (N_p - N)}{N(1 - N)} dN = \\ &= P \{N_p \ln N_p + (1 - N_p) \ln (1 - N_p)\} + \\ &\quad + W \{N_w \ln N_w + (1 - N_w) \ln (1 - N_w)\} - \\ &\quad - F \{N_o \ln N_o + (1 - N_o) \ln (1 - N_o)\} = \\ &= -PS(N_p) - WS(N_w) + FS(N_o) \end{aligned} \quad (24.2)$$

Zou isotopenscheiding een volledig reversibel proces zijn, dan zou het minimaal benodigde vermogen gegeven worden door

$$A = -T \cdot \dot{\Delta S}$$

De werkelijk benodigde hoeveelheid energie is echter veel groter en zal veeleer evenredig zijn met de scheidingscapaciteit van de cascade, dan met de entropieproductie.

De entropieproductie per cascade-element wordt gevonden door de minimale entropieproductie per trap te delen door het aantal elementen $\frac{L}{G}$ per trap.

$$-(\sigma)_{e1} = R \frac{G\varepsilon^2}{2} N(1-N) \quad (25.2)$$

Ondanks de concentratieafhankelijkheid van de entropieproductie per element zal het benodigde vermogen voor een cascade-element onafhankelijk zijn van de concentratie. Zo is voor een centrifuge met een scheidingsfactor 1,1 bij een voeding van 20 mg/sec het benodigde vermogen voor de scheiding der uraniumisotopen in de gasvormige verbinding van de orde van grootte van $10^{-3} N(1-N)$ Watt, indien het proces reversibel zou zijn. De natuurlijke concentratie van ^{235}U is 0,0071, waaruit blijkt dat bij deze concentratie het vermogen van de orde van 10^{-5} Watt moet zijn. Het werkelijk benodigde vermogen is van de orde van 10 Watt, afgezien van lagerwrijving, vermogen nodig voor het vacuum pompen, e.d. De werkelijk benodigde energie voor het separatieproces is dus een factor 10^6 groter dan de minimaal benodigde reversibele energie. Veel belangrijker voor het benodigde vermogen is dus het scheidend vermogen $\frac{G\varepsilon^2}{2}$ van het element. Het belang van de minimale entropieproductie per trap is gelegen in de minimalisering van het aantal elementen.

§ 3. De scheidingspotentiaal

Het fundamentele karakter van de begrippen waardefunctie en scheidend vermogen, die uit de theorie van de ideale cascade volgen, werd aangetoond door Dirac¹⁵). Hij veronderstelde dat de waarde van een stroom verrijkt materiaal van P mol/sec beschreven kan worden door een functie U , welke functie het produkt is van P en de waardefunctie $V(N)$, welke uitsluitend een functie is van de concentratie

$$U = PV(N).$$

Veronderstellen we nu een infinitesimaal element, voeding G mol/sec, effectieve elementaire scheidingsfactor $a = 1 + \varepsilon$, dan zal dit element een verandering in waarde δU van de voedingsstroom teweegbrengen.

$$\delta U = \theta G V(N') + (1 - \theta) G V(N'') - G V(N) \quad (26.2)$$

$V(N')$ en $V(N'')$ worden in een Taylor reeks ontwikkeld naar machten van $(N' - N)$ respectievelijk $(N'' - N)$

$$\begin{aligned} \delta U = & \{ \theta G + (1 - \theta) G - G \} V(N) + \{ \theta G (N' - N) + \\ & + (1 - \theta) G (N'' - N) \} \frac{dV(N)}{dN} + \frac{1}{2!} \{ \theta G (N' - N)^2 + \\ & + (1 - \theta) G (N'' - N)^2 \} \frac{d^2V(N)}{dN^2} + \dots \end{aligned}$$

Wegens de wet van behoud van massa voor het mengsel als geheel en voor één component zijn de coëfficiënten van $V(N)$ en $\frac{dV(N)}{dN}$ nul. Substitutie van de tweede behoudsrelatie in de coëfficiënt van $\frac{d^2V(N)}{dN^2}$ geeft dan de betrekking voor δU

$$\delta U = \frac{\theta}{1 - \theta} \frac{G \varepsilon^2}{2} \frac{d^2V(N)}{dN^2} N^2 (1 - N)^2 \quad (27.2)$$

Eisen we nu dat de waardeverandering onafhankelijk van de concentratie is, dan moet dus gelden

$$\frac{d^2V(N)}{dN^2} = \frac{1}{N^2 (1 - N)^2} \quad (28.2)$$

$$\delta U = \frac{\theta}{1 - \theta} \frac{G \varepsilon^2}{2} \quad (29.2)$$

Door integratie van $\frac{d^2V(N)}{dN^2}$ naar N vinden we dan, afhankelijk van de randvoorwaarden de waardefunctie (16.2) of de elementaire waardefunctie (18.2). Het scheidend vermogen van een symmetrisch infinitesimaal element bedraagt $\frac{G \varepsilon^2}{2}$, bij een niet symmetrisch element

wordt deze uitdrukking vermenigvuldigd met de verhouding der aftapstromen $\frac{\theta}{1-\theta}$.

Voor een element waarbij ε niet meer zeer klein is ten opzichte van één, heeft Cohen een analoge afleiding gegeven door oplossing van een differentievergelijking. Voor het scheidend vermogen van een symmetrisch element geldt in dat geval

$$\delta U = G \frac{a-1}{a+1} \ln a \quad (30.2)$$

Deze uitdrukking gaat voor $(a-1) \ll 1$ over in $\frac{G\varepsilon^2}{2}$.

In de voorgaande paragraaf hebben we reeds aangetoond, dat de eis voor de ideale cascade, minimale totale voedingsstroom aan alle trappen, gelijkloidend is met de eis van minimale entropieproductie, wat betreft de mengentropieterm, per trap. De mengentropie van het binaire mengsel kan echter niet als standaardfunctie dienen voor een separatieproces, omdat dan de waarde van een element, afhankelijk zou zijn van de voedingsconcentratie aan het element, dus van de plaats in de cascade. En ofschoon vanuit thermodynamisch standpunt bezien de hoeveelheid arbeid, die nodig is om een bepaalde scheiding te bewerkstelligen, zeker een functie is van de aanvangsconcentratie, is dat in de praktijk niet het geval.

De entropieverlaging van een infinitesimaal element kan op dezelfde wijze berekend worden als het scheidend vermogen.

$$\frac{\delta \dot{S}}{R} = -\frac{G\varepsilon^2}{2} N(1-N) \quad (31.2)$$

De arbeid, die hiervoor nodig is, is dus maximaal voor $N = \frac{1}{2}$. We zien hieruit tevens, dat het scheidend vermogen per element, afgezien van de factor R gelijk is aan de (negatieve) entropieproductie per element gedeeld door $N(1-N)$. Dit betekent tevens, dat de waardefunctie en de mengentropie gecorreleerd zijn door hun tweede afgeleiden naar de concentratie.

$$-\frac{1}{R} \frac{d^2 S}{dN^2} = N(1-N) \frac{d^2 V}{dN^2} \quad (32.2)$$

Deze beschouwing is uiteraard slechts geldig voor een binair mengsel.

Het biedt voordelen de analogie tussen de waardefunctie en de thermodynamische functies verder te vervolgen. Daartoe schrijven we de elementaire waardefunctie U' , gedefinieerd volgens (17.2) en (18.2), als een som

$$U' = u_1 n_1 + u_2 n_2,$$

waarbij n_1 het aantal g molen van de eerste component, n_2 van de tweede component is. u_1 , die we naar analogie met de thermodynamische potentiaal, de scheidingspotentiaal noemen, is de intensieve parameter die de waarde van de eerste component in het mengsel beschrijft, u_2 van de tweede component. De functie u_1 is dus een functie van de concentratie N van de eerste component, u_2 van $(1 - N)$, dus ook van N . Om de functies u_1 en u_2 te vinden schrijven we de totale differentiaal

$$dU' = u_1 dn_1 + u_2 dn_2 + n_1 du_1 + n_2 du_2,$$

waarbij we stellen, dat

$$n_1 du_1 + n_2 du_2 = 0.$$

Hieruit volgt dan:

$$u_1 = \frac{\partial U'}{\partial n_1} \qquad u_2 = \frac{\partial U'}{\partial n_2}.$$

Om u_1 te berekenen veronderstellen we dat aan een hoeveelheid materiaal van P mol met concentratie N van de eerste component een hoeveelheid dn_1 mol van deze component wordt toegevoegd. De concentratie N' , die het mengsel dan heeft, volgt uit de massabalans

$$(P + dn_1) N' - PN = dn_1$$

$$N' = \frac{PN + dn_1}{P + dn_1}$$

De scheidingspotentiaal wordt nu gegeven door

$$u_1 = \lim_{dn_1 \rightarrow 0} \frac{(P + dn_1)V'(N') - PV'(N)}{dn_1}$$

en daar volgens (18.2)

$$V'(N) = (2N - 1) \ln R$$

volgt hieruit

$$u_1 = \lim_{dn_1 \rightarrow 0} \frac{(P + dn_1)(2N' - 1) \ln R' - P(2N - 1) \ln R}{dn_1} =$$

$$= \ln R + \frac{2N - 1}{N} \quad (33.2)$$

$$u_2 = -\ln R - \frac{2N - 1}{1 - N} \quad (34.2)$$

De twee functies zijn uit elkaar af te leiden door N te vervangen door $(1 - N)$ of omgekeerd, zoals te verwachten was.

Op deze wijze geformuleerd is U' een toestandsfunctie, welke uitsluitend afhankelijk is van de concentratie en het aantal g molen dat per seconde van ieder der componenten door een sectie van de cascade stroomt. Deze functie voldoet dus aan een behoudsrelatie. Beschouwen we weer het denkbeeldige scheidingsvlak door de cascade (zie fig. 1.2). Per seconde stroomt door dit vlak PN_p g molen van de ene component met scheidingspotentiaal $u_1(N)$ en $P(1 - N_p)$ g molen van de andere component met scheidingspotentiaal $u_2(N)$. De scheidingscapaciteit per trap dU_{trap} zal gegeven worden door de afgeleide van deze waardeestroom.

$$dU_{\text{trap}} = \frac{d}{ds} \left\{ PN_p \left(\ln R + \frac{2N - 1}{N} \right) + P(1 - N_p) \left(-\ln R - \frac{2N - 1}{1 - N} \right) \right\} =$$

$$= \frac{P(N_p - N)}{N^2(1 - N)^2} \frac{dN}{ds} \quad (35.2)$$

Maken we gebruik van de cascadevergelijking (9.2), dan geldt

$$dU_{\text{trap}} = \frac{L\varepsilon N(1 - N) - \frac{L}{2} \frac{dN}{ds}}{N^2(1 - N)^2} \frac{dN}{ds} \quad (36.2)$$

Als functie van de concentratiegradiënt $\frac{dN}{ds}$ in de cascade zal de scheidingscapaciteit per trap maximaal zijn, indien $\frac{dN}{ds} = \varepsilon N(1 - N)$, welke voorwaarde weer de conditie is van de ideale cascade. In dit geval wordt

$$(dU_{\text{trap}})_{\text{max}} = \frac{L\varepsilon^2}{2} \quad (37.2)$$

Delen door het aantal elementen L/G per trap geeft het scheidend vermogen van één element, $\delta U = \frac{Ge^2}{2}$.

De uitdrukking (35.2) voor de scheidingscapaciteit van een trap in de cascade draagt een zeer algemeen karakter. Beschouwen we een element, dat per seconde P g molen materiaal bevattende PN_p g molen van een component, transporteert van een niveau met concentratie N naar een niveau met concentratie $N' > N$. Het scheidend vermogen van dit element zal dan gegeven worden door

$$\begin{aligned} \delta U &= PN_p u_1(N') + P(1 - N_p) u_2(N') \\ &\quad - PN_p u_1(N) - P(1 - N_p) u_2(N) = \\ &= PN_p (N' - N) \frac{du_1}{dN} + P(1 - N_p) (N' - N) \frac{du_2}{dN} = \\ &= P \frac{(N_p - N)(N' - N)}{N_2(1 - N)^2} \end{aligned} \quad (38.2)$$

Deze uitdrukking geeft het scheidend vermogen voor een infinitesimaal tegenstroomelement, dat is een element zodanig geschakeld dat het tussen twee tegengesteld gerichte stromen een materiaaluitwisseling tot stand brengt. De grootheid PN_p wordt het „gewenst materiaaltransport” genoemd, $P(N_p - N)$ is het „netto transport”.

§ 4. De kolomvergelijking

Onder een kolom verstaan we een separatie-element, waarbij het elementair effect in één element vermenigvuldigd wordt door een tegenstroomcirculatie. De naam is ontleend aan de destillatiekolom. Het elementair effect wordt hierbij veroorzaakt door het verschil in dampspanning van de verschillende componenten. Bij een binair systeem heeft de molenbreuk in de dampfase een constante verhouding a_0 tot de molenbreuk in de vloeistoffase. In de kolom wordt nu het gedestilleerde in de dampfase naar de volgende schotel gevoerd, het destillaat in de vloeistoffase naar de voorgaande schotel. Dit proces kan in een kolom continu uitgevoerd worden. De kolom, in het algemeen een cylinder, wordt gevuld met pakking. De damp stroomt door de poriën van de pakking naar boven, de vloeistof in

dunne lagen langs de pakking naar beneden. Tengevolge van het elementair effect vindt op ieder punt van de kolom uitwisseling van moleculen plaats tussen de vloeistof en de damp. Door de circulatie gecombineerd met de uitwisseling heeft de ene component een netto snelheid naar boven, de andere naar beneden.

Op dezelfde wijze wordt in een tegenstroomcentrifuge het elementair effect in radiale richting dat door het centrifugale veld wordt veroorzaakt, m.b.v. een tegenstroomcirculatie tevens benut voor een axiale concentratiegradiënt. Onder invloed van het centrifugale veld zullen de zwaardere deeltjes meer geconcentreerd worden aan de wand van de centrifuge, de lichtere deeltjes in het centrum. Door een wervel bestaande uit een stroom langs de wand van de centrifuge naar beneden en een stroom in het centrum van de centrifuge naar boven zal dus de netto snelheid van de zwaardere deeltjes naar beneden gericht zijn, van de lichtere deeltjes naar boven. In axiale richting ontstaat op die manier een concentratiegradiënt, welke, mits de centrifuge lang genoeg gemaakt kan worden, een ontmenging tussen de uiteinden van de centrifuge tengevolge heeft, welke vele malen groter kan zijn dan de ontmenging in de radiale richting.

De vergelijking, die de axiale concentratiegradiënt in de kolom beschrijft, kan in bijna alle gevallen^{13, 14, 15)} geschreven worden in de vorm

$$PN_p = PN + c_1 N(1 - N) - c_5 \frac{dN}{dz} \quad (39.2)$$

Hierbij is z de lengtecoördinaat van de kolom, P de productstroom in mol/sec, c_1 en c_5 zijn kolomparameters.

De vergelijking heeft betrekking op de stationaire toestand, waartoe wij ons zullen beperken. De vorm van de vergelijking laat reeds zien, dat we te maken hebben met een rectificerende kolom (zie fig. 2.2) waar de produktstroom en de concentratiegradiënt dezelfde richting hebben. Wat verder opvalt is, dat de vergelijking dezelfde is als de cascadevergelijking (9.2), waarbij als beperking geldt dat de kolomparameters c_1 en c_5 constant zijn in de lengterichting van de kolom, zodat de voeding L per trap in deze cascade niet varieert. Als cascadevergelijking opgevat is het dus de vergelijking voor een rechthoekige cascade, waarbij $c_1 = \varepsilon L$ en $c_5 = \frac{L}{2}$. Hierbij hebben ε en L de in de cascadetheorie gebruikte betekenissen.

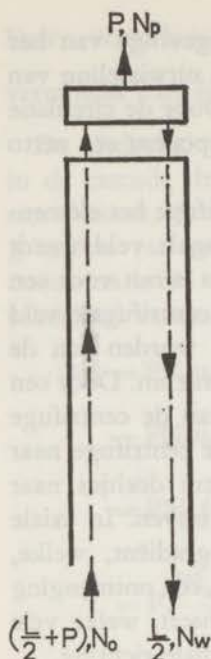


Fig. 2.2

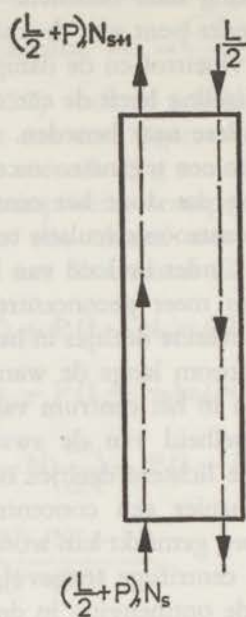


Fig. 2.3

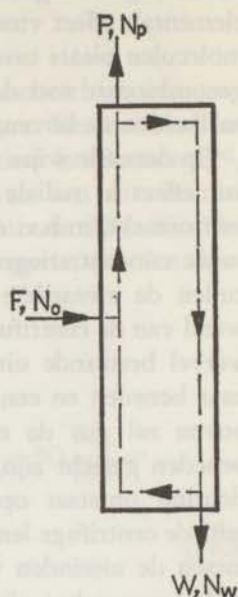


Fig. 2.4

Voor een kolom wordt ε gedefinieerd door $2\varepsilon = \frac{c_1}{c_5}$. De vergelijking beschrijft dus tevens het concentratieverloop in een blokcascade. Deze overeenkomst is niet toevallig. Beschouwen we nl. in de kolom een schijf, dan kunnen we deze schijf beschouwen als een element, waarvan de voeding de som is van de twee intredende stromen. De verrijkte fractie wordt toegevoerd aan het volgende element, de verarmde fractie aan het voorgaande element. De kolom kan dus beschouwd worden als een stapeling of serieschakeling van deze elementen of trappen. De voeding varieert niet als functie van de hoogte.

Uit de differentiaalvergelijking zijn reeds enkele conclusies te trekken, die betrekking hebben op het netto materiaaltransport door de kolom en het scheidend vermogen van de kolom.

Aan de voet van de kolom wordt het netto materiaaltransport gegeven door

$$P(N_p - N_0) = c_1 N_0 (1 - N_0) - c_5 \left(\frac{dN}{dz} \right)_{z=0}$$

Dit transport is maximaal indien $\left(\frac{dN}{dz}\right)_{z=0} = 0$, wat bij gegeven produktconcentratie N_p mogelijk is als de lengte l van de kolom oneindig wordt. De produktstroom wordt dan gegeven door

$$P = c_1 \frac{N_0(1 - N_0)}{N_p - N_0} \quad (40.2)$$

Het netto materiaaltransport neemt naar de top van de kolom toe af, waarbij $\frac{dN}{dz}$ toeneemt. Aan de top van de kolom is $\left(\frac{dN}{dz}\right)_{z=1} = c_1 N_p (1 - N_p)$. Het afnemen van het materiaaltransport wordt hier niet gecompenseerd door een afname van de voedingsstroom L . Aan de voet van de kolom is bij gegeven lengte de aftap z_0 te kiezen, dat

$$c_5 \left(\frac{dN}{dz}\right)_{z=0} = \frac{c_1}{2} N_0 (1 - N_0),$$

welke de voorwaarde is voor maximaal scheidend vermogen. Naar de top toe gaat de kolom dan minder efficiënt werken. De kolom zal dus zo bedreven moeten worden, dat gemiddeld aan de conditie voor maximaal scheidend vermogen wordt voldaan.

Bij totale reflux, $P = 0$ wordt de concentratiegradiënt over de hele lengte van de kolom gegeven door

$$\begin{aligned} c_5 \frac{dN}{dz} &= c_1 N (1 - N) \\ \ln \frac{R}{R_0} &= \frac{c_1 z}{c_5} = 2\epsilon z \\ \ln \frac{R_p}{R_0} &= 2\epsilon l \end{aligned} \quad (41.2)$$

Dit is het concentratieverloop van iedere cascade, die onder totale reflux werkt, onverschillig de vorm.

De oplossing van de vergelijking volgt uit:

$$\int_0^z dz = \int_{N_0}^N \frac{c_5 dN}{-c_1 N^2 + (c_1 + P)N - PN_p} \quad (42.2)$$

$$z = \frac{1}{\epsilon \Delta(\psi)} \tanh^{-1} \frac{(N - N_0) \Delta(\psi)}{(N - 2NN_0 + N_0) - (2N_p - N - N_0)\psi}$$

$$\begin{aligned} \text{waarbij} \quad \varepsilon &= \frac{c_1}{2c_5} \\ \psi &= \frac{P}{c_1} \end{aligned} \quad (43.2)$$

$$\Delta(\psi) = \sqrt{1 + 2\psi(1 - 2N_p) + \psi^2}$$

Aan de top van de kolom is $z = l$, $N = N_p$.

$$l = \frac{1}{\varepsilon \Delta(\psi)} \tanh^{-1} \frac{(N_p - N_o) \Delta(\psi)}{(N_p - 2N_p N_o + N_o) - (N_p - N_o) \psi} \quad (44.2)$$

Deze uitdrukking geeft een impliciet verband tussen P en N_p bij gegeven lengte l ; bij gegeven P en N_p , waarbij P kleiner moet zijn dan de maximaal mogelijke produktstroom (40.2), geeft de vergelijking expliciet de lengte l van de kolom.

Er zijn nu verschillende mogelijkheden om een cascade bestaande uit kolommen op te bouwen, welke mogelijkheden hoofdzakelijk bepaald worden door het type kolom. Daartoe onderscheiden we de kolommen allereerst in twee typen, die waarbij de circulatiestroom extern wordt aangedreven, en die waarbij dit intern gebeurt. Deze onderscheiding is in verband met centrifuges zeer belangrijk, daar een van de moeilijkste punten bij de constructie van een centrifuge is, de extractie van materiaal uit de roterende trommels. In het algemeen geven we hier de voorkeur aan een intern opgewekte wervel waardoor slechts de produktstromen afgetapt behoeven te worden, welke stromen een orde grootte kleiner zijn dan de circulatiestroom. Niettemin heeft Beams een centrifuge geconstrueerd waarbij de wervel extern wordt aangedreven. Volledigheidshalve zullen we dus dit type ook in onze beschouwingen betrekken.

Type I (fig. 3.2).

Bij de kolom met extern aangedreven wervel is het mogelijk deze zodanig te bedrijven dat de onrendabele top vermeden wordt, mits aan bepaalde voorwaarden is voldaan. Deze voorwaarden zijn, dat het netto materiaaltransport per kolom klein is ten opzichte van het netto materiaaltransport in de cascade en dat de verrijking per kolom klein is ten opzichte van de totale verrijking in de cascade.

Zij P de produktstroom van de cascade, N_p de concentratie van het produkt, n het aantal kolommen per trap, dan is het netto materiaaltransport per kolom $\frac{P}{n}(N_p - N)$. De index s heeft betrekking op de trap van de cascade, z is de lengtecoördinaat van de kolom. De kolomvergelijking wordt dan

$$\frac{P}{n}(N_p - N) = c_1 N(1 - N) - c_5 \frac{dN}{dz} \quad (45.2)$$

met als oplossing volgens (42.2)

$$\varepsilon l \Delta(\psi) = \tanh^{-1} \frac{(N_{s+1} - N_s) \Delta(\psi)}{(N_{s+1} - 2N_{s+1}N_s + N_s) - (2N_p - N_{s+1} - N_s)\psi} \quad (46.2)$$

waarbij in afwijking van (43.2)

$$\psi = \frac{P}{nc_1} \quad (47.2)$$

Ontwikkeling van de \tanh^{-1} geeft dan de betrekking

$$\varepsilon l = \frac{N_{s+1} - N_s}{(N_{s+1} - 2N_{s+1}N_s + N_s) - (2N_p - N_{s+1} - N_s)\psi} + \dots$$

Aangenomen is hierbij dat het argument van de \tanh^{-1} zo klein is, dat volstaan kan worden met de lineaire term. Deze ontwikkeling geeft een vergelijking, analoog aan de cascadevergelijking (9.2)

$$\frac{dN_s}{ds} = \varepsilon l (N_{s+1} - 2N_{s+1}N_s + N_s) - \varepsilon l \psi (2N_p - N_{s+1} - N_s) \quad (48.2)$$

welke voor de limiet dat N_{s+1} nadert tot N_s overgaat in

$$\frac{dN}{ds} = 2\varepsilon l N(1 - N) - 2\varepsilon l \psi (N_p - N)$$

of
$$P(N_p - N) = nc_1 N(1 - N) - \frac{nc_5}{l} \frac{dN}{ds} \quad (49.2)$$

Zoals reeds eerder werd afgeleid (36.2), wordt het scheidend vermogen per trap in de cascade nu gegeven door

$$dU_{\text{trap}} = \frac{nc_1 N(1 - N) - \frac{nc_5}{l} \frac{dN}{ds}}{N^2(1 - N)^2} \frac{dN}{ds} \quad (50.2)$$

hetwelk als functie van de concentratiegradiënt maximaal wordt, indien

$$\frac{dN}{ds} = \frac{1}{2} \frac{c_1 l}{c_5} N(1-N) = \varepsilon l N(1-N) \quad (51.2)$$

Hieruit volgt voor het verloop van de concentratiegradiënt in de cascade

$$R_s = R_0 e^{\varepsilon l s}$$

en voor de verrijking per trap

$$\frac{R_{s+1}}{R_s} = e^{\varepsilon l} \quad (52.2)$$

De verrijking per trap, of per kolom, bij maximaal scheidend vermogen is dus gelijk aan de wortel uit de verrijking bij totale reflux. Deze regel, welke bekend is als de vierkantswortel regel voor tegenstroomprocessen, is weliswaar afgeleid voor kolommen, die in hun geheel nog beschouwd kunnen worden als infinitesimaalelementen, doch behoudt experimenteel nog zijn geldigheid tot $\frac{R_{s+1}}{R_s} \sim 2$.

Het scheidend vermogen per trap wordt, indien de concentratiegradiënt optimaal wordt gekozen

$$dU_{\text{trap}} = n \cdot \frac{c_1^2}{4c_5} \cdot l$$

Per kolom dus

$$\delta U = \frac{c^2}{4c_5} \cdot l = \frac{L\varepsilon^2}{2} l \quad (53.2)$$

Onder optimale bedrijfsomstandigheden wordt het scheidend vermogen van een kolom per cm lengte dus gegeven door $\frac{L\varepsilon^2}{2}$ en is dus gelijk aan het scheidend vermogen van het elementaire infinitesimaalelement.

De aftap per kolom, die nodig is om de vereiste verrijking te verkrijgen, volgt uit (49.2) en (51.2)

$$\psi = \frac{P}{nc_1} = \frac{N(1-N)}{2(N_p - N)} \quad (54.2)$$

De grootte van ψ per kolom wordt hierdoor gelimiteerd tot

$$\psi \leq \frac{1}{2\epsilon l}$$

Het gelijk teken geldt slechts voor de voorlaatste trap, waar $N_p - N = \frac{dN}{ds} = \epsilon l N (1 - N)$. Hieruit volgt voor de begrenzing van $\Delta(\psi)$

$$1 - \frac{1}{2\epsilon l} \leq \Delta(\psi) \leq 1 + \frac{1}{2\epsilon l}$$

De twee uiterste grenzen worden gegeven door $N_p \rightarrow 1$, respectievelijk $N_p \rightarrow 0$. Het argument van de bgtanh wordt dus begrensd door

$$\epsilon l - \frac{1}{2} \leq \frac{\frac{dN}{ds} \Delta(\psi)}{2N(1-N) - 2\psi(N_p - N)} \leq \epsilon l + \frac{1}{2},$$

zodat we mogen stellen, dat de absolute waarde van het argument voor kleine waarde van ϵl ca gelijk aan $\frac{1}{2}$ wordt, welke waarde slechts geldt voor de voorlaatste trap, waarbij dan bovendien de concentratie N_p een extreme waarde moet hebben.

De lineaire approximatie van de bgtanh is dus geoorloofd, behalve voor de laatste trap. Immers in dit geval wordt $N_p = N_{s+1}$, zodat ψ gelijk wordt aan $\frac{N(1-N)}{(N_p - N)}$, waardoor het argument van de bgtanh tot één nadert. Voor de topstage moet dus een approximatie in hogere orde worden uitgevoerd.

Samenvattend kunnen we stellen, dat hoewel een kolom van het type I niet voldoet aan de eenvoudige verrijgingsformule (4.2), omdat de verrijking een functie is van aftap en concentratie, de optimale bedrijfscondities toch zódanig zijn dat de verrijking gegeven wordt door (4.2), onafhankelijk van de plaats in de cascade. De voorwaarden hiertoe zijn, dat het netto materiaaltransport en de verrijking van de kolom klein zijn ten opzichte van de overeenkomstige grootheden in de cascade en dat de verrijking per kolom kleiner is dan 2. De karakteristieke grootheden van de kolom zijn.

Bij totale reflux

$$\frac{R(l)}{R(o)} = e^{2\epsilon l} \quad (55.2)$$

Bij maximaal scheidend vermogen

$$\frac{R(l)}{R(o)} = e^{\epsilon l}$$

$$\delta U \frac{c_1^2}{4c_5} l \quad (56.2)$$

$$\frac{P}{n} (N_p - N) = \frac{\epsilon L}{2} N (1 - N)$$

De betrekking, welke de grootte van de aftap per kolom aangeeft, volgt direct uit (54.2).

Type II (fig. 4.2).

De kolom, waarbij de wervel intern wordt aangedreven en waarbij dus de circulatiestroom aan de top gesloten is, zal een kleiner scheidend vermogen hebben dan een kolom van het type I. Immers het netto materiaaltransport wordt naar de top toe kleiner en nadert tot nul, waardoor het uiteinde minder bijdraagt aan het scheidend vermogen. Is bovendien, behalve aan de top ook aan de voet de circulatiestroom gesloten, dan zal aan beide uiteinden verlies aan scheidend vermogen optreden. Dit type kolom wordt ongeveer in het midden gevoed, terwijl aan de uiteinden de gescheiden fracties worden afgetapt. Het ene gedeelte van de kolom werkt over een lengte l_p als rectifier, het andere gedeelte over een lengte l_w als stripper. De kolom als geheel kan beschouwd worden als één element.

De vergelijking van een kolom, die als stripper is geschakeld, wordt volgens (10.2) en (39.2) gegeven door

$$-W(N_w - N) = c_1 N (1 - N) - c_5 \frac{dN}{dz} \quad (57.2)$$

waarvan de oplossing is

$$\epsilon l_w \Delta_w(\psi_w) = \tanh^{-1} \frac{(N_o - N_w) \Delta_w(\psi_w)}{(N_o - 2N_o N_w + N_w) - (N_o - N_w) \psi_w} \quad (58.2)$$

met

$$\psi_w = \frac{W}{c_1} \quad (59.2)$$

$$\Delta_w(\psi_w) = \sqrt{1 - 2(1 - 2N_w)\psi_w + \psi_w^2}$$

De vergelijkingen, die het gedrag van de kolom beschrijven, zijn dus

$$\varepsilon l_p \Delta_p(\psi_p) = \tanh^{-1} \frac{(N_p - N_o) \Delta_p(\psi_p)}{(N_p - 2N_p N_o + N_o) - (N_p - N_o) \psi_p} \quad (60a.2)$$

$$\varepsilon l_w \Delta_w(\psi_w) = \tanh^{-1} \frac{(N_o - N_w) \Delta_w(\psi_w)}{(N_o - 2N_o N_w + N_w) - (N_o - N_w) \psi_w} \quad (60b.2)$$

$$l_p + l_w = l \quad (61.2)$$

$$(N_p - N_o) \psi_p = (N_o - N_w) \psi_w \quad (62.2)$$

$$\frac{R_p}{R_o} = \frac{R_o}{R_w} = \alpha \quad (63.2)$$

met

$$\psi_p = \frac{P}{c_1} \quad \psi_w = \frac{W}{c_1} \quad (64.2)$$

$$\Delta_p(\psi_p) = \sqrt{1 + 2(1 - 2N_p)\psi_p + \psi_p^2}$$

$$\Delta_w(\psi_w) = \sqrt{1 - 2(1 - 2N_w)\psi_w + \psi_w^2}$$

De betrekkingen (60.2) zijn de oplossingen van de differentiaalvergelijkingen voor een kolom, die als rectifier respectievelijk als stripper werkt. Dat de totale lengte van de kolom constant is, wordt tot uitdrukking gebracht door (61.2), terwijl (62.2) de behoudsrelatie is voor één component. Tenslotte geeft (63.2) de symmetrievoorwaarde.

Beperken we ons weer tot kolommen, waarvan de totale verrijking klein is, $(\alpha - 1) \ll 1$, dan volgt uit (62.2) en (63.2) voor de verhouding van ψ_p en ψ_w .

$$\frac{\psi_p}{\psi_w} = \frac{N_o - N_w}{N_p - N_o} = \frac{1 + \alpha R}{\alpha + R} = 1 + (\alpha - 1) \frac{R - 1}{R + \alpha} \rightarrow 1$$

En voor de verhouding van $N_p \psi_p$ tot $N_w \psi_w$ geldt dan

$$\frac{N_p \psi_p}{N_w \psi_w} = a = 1 + (a-1) \rightarrow 1$$

In eerste orde benadering kunnen we dus stellen

$$\psi_p = \psi_w$$

$$N_p \psi_p = N_w \psi_w$$

Voor het argument van de \tanh^{-1} uit de betrekkingen (60.2) vinden we onder gebruikmaking van (63.2)

$$\frac{(N_p - N_o) \Delta_p(\psi)}{(N_p - 2N_p N_o + N_o) - (N_p - N_o) \psi} = \frac{(R_p - R_o) \Delta_p(\psi)}{(R_p + R_o) - (R_p - R_o) \psi} =$$

$$\frac{(\alpha - 1) \Delta_p(\psi)}{(\alpha + 1) - (\alpha - 1) \psi} = \frac{\beta \Delta_p(\psi)}{1 - \beta \psi}$$

waarbij gesteld is $\beta = \frac{\alpha - 1}{\alpha + 1}$

Evenzo

$$\frac{(N_o - N_w) \Delta_w(\psi)}{(N_o - 2N_o N_w + N_w) - (N_o - N_w) \psi} = \frac{\beta \Delta_w(\psi)}{1 - \beta \psi}$$

Ontwikkeling van de bgtanh in een reeks naar het argument geeft tenslotte

$$\varepsilon_{lp} = \frac{\beta}{1 - \beta \psi} \left\{ 1 + \frac{1}{3} \frac{\beta^2 \Delta_p^2(\psi)}{(1 - \beta \psi)^2} + \dots \right\} \quad (65.2)$$

$$\varepsilon_{lw} = \frac{\beta}{1 - \beta \psi} \left\{ 1 + \frac{1}{3} \frac{\beta^2 \Delta_w^2(\psi)}{(1 - \beta \psi)^2} + \dots \right\}$$

waaruit door optelling volgt

$$\varepsilon_l = \frac{\beta}{1 - \beta \psi} \left\{ 2 + \frac{2}{3} \frac{\beta^2}{(1 - \beta \psi)^2} (1 + \psi^2) + \dots \right\} \quad (66.2)$$

Evenals dat bij kolommen van het type I in de topstage van de cascade het geval is, is de eerste orde benadering onvoldoende, daar voor maximaal scheidend vermogen het argument van de \tanh^{-1}

dan tot één zou naderen. Door iteratie vinden we voor de derde orde oplossing:

$$\beta = \frac{\epsilon l}{2 + \epsilon l \psi + \frac{1}{6} \epsilon^2 l^2 (1 + \psi^2)} \approx \frac{\epsilon l}{2 + \epsilon l \psi + \frac{1}{6} \epsilon^2 l^2 \psi^2} \quad (67.2)$$

Voor het scheidend vermogen van de kolom gebruiken we (30.2)

$$\delta U = G \frac{\alpha - 1}{\alpha + 1} \ln \alpha = 2P \cdot \frac{\alpha - 1}{\alpha + 1} \cdot 2 \left(\frac{\alpha - 1}{\alpha + 1} + \dots \right) = 4P\beta^2 \quad (68.2)$$

Voor de kolom geldt dus

$$\delta U = 4c_1 \frac{\epsilon^2 l^2 \psi}{(2 + \epsilon l \psi + \frac{1}{6} \epsilon^2 l^2 \psi^2)^2} \quad (69.2)$$

Als functie van ψ is het scheidend vermogen maximaal voor

$$\psi = \frac{\sqrt{5} - 1}{\epsilon l} \quad (70.2)$$

waarbij de bijbehorende waarde voor δU wordt:

$$\delta U = 4c_1 \frac{\epsilon l (\sqrt{5} - 1)}{(2 + 2\sqrt{5})^2} = 0,81 \frac{c^2}{4c_5} l \quad (71.2)$$

Voor α vinden we in dit geval

$$\alpha = \frac{1 - \frac{\epsilon l}{2 + \frac{2}{3}\sqrt{5}}}{1 + \frac{\epsilon l}{2 + \frac{2}{3}\sqrt{5}}} = e^{\frac{2\epsilon l}{2 + \frac{2}{3}\sqrt{5}}} + \frac{1}{12} \left(\frac{2\epsilon l}{2 + \frac{2}{3}\sqrt{5}} \right)^3 + \dots$$

dus

$$\alpha = e^{\frac{2\epsilon l}{2 + \frac{2}{3}\sqrt{5}}} \frac{R(l)}{R(o)} = \alpha^2 = e^{\frac{4\epsilon l}{2 + \frac{2}{3}\sqrt{5}}} \quad (72.2)$$

Bij totale reflux geldt voor de verrijking

$$\alpha = e^{\epsilon l} \frac{R(l)}{R(o)} = \alpha^2 = e^{2\epsilon l} \quad (73.2)$$

In dit geval is dus de vierkantswortel regel niet meer van toepassing. Het scheidend vermogen bedraagt ongeveer 80 % van het maximaal mogelijke scheidend vermogen.

De plaats van het voedingspunt in de kolom vinden we uit (65.2) door aftrekking

$$\varepsilon(l_p - l_w) = \varepsilon \cdot \Delta l = \frac{1}{3} \cdot \frac{\beta^3}{(1 - \beta\psi)^3} \cdot 4(1 - 2N) \psi$$

Substitutie van de waarden voor β en ψ bij maximaal scheidend vermogen, geeft

$$\frac{\Delta l}{l} = 0,15 (1 - 2N) \varepsilon l \quad (74.2)$$

Dit betekent dat voor kleine verrijkingen de voeding in het midden van de kolom dient te geschieden. Opgemerkt zij, dat voor $N = \frac{1}{2}$ het voedingspunt in het midden van de kolom moet liggen.

Substitutie van de gevonden waarden voor ψ en α , bij maximaal scheidend vermogen, in de oorspronkelijke oplossing (60.2) laat zien dat de derde orde approximatie voldoende nauwkeurig is.

Samenvattend kunnen we stellen, dat voor kolommen met een kleine scheidingsfactor er twee mogelijkheden zijn om een cascade op te bouwen. Bij een kolom van het type I wordt de circulatiestroom in- en uitgevoerd, zodat deze stroom als het ware deel uitmaakt van de totale circulatiestroom in de cascade. Tengevolge van het gebruik van kolommen is de circulatiestroom in de cascade getrap, en geen continu verlopende functie van de parameter s , zoals dit het geval is bij een cascade samengesteld uit infinitesimaal-elementen.

Berekening toont echter aan dat het scheidend vermogen per cm lengte van een kolom gelijk is aan het scheidend vermogen van een infinitesimaal element met een lengte van 1 cm. Verder blijkt dat de scheidingsfactor per kolom constant gehouden moet worden, en wel gelijk aan de wortel van de scheidingsfactor bij totale reflux. De aftap per kolom is evenwel een functie van de plaats in de cascade, en wordt groter naarmate het element hoger in de cascade is geplaatst. Kolommen van dit type worden dus als echte tegenstroomelementen gebruikt, in die zin dat het separatiemechanisme wordt aangewend

om een netto materiaaltransport te bewerkstelligen tussen twee tegengesteld gerichte stromen, welke stromen deel uitmaken van de circulatiestroming in de cascade.

Bij een kolom van het type II wordt de circulatiestroom in de kolom intern gehouden, en deze maakt dus geen deel uit van de algemene circulatie in de cascade. In- en uitgevoerd worden slechts de voeding en de twee aftapstromen, welke stromen een ordegrrootte kleiner zijn dan de tegenstroomwervel. Dit betekent dat de algemene circulatie in de cascade bij gebruik van dit type veel kleiner wordt. De kolom zelf wordt bedreven met een constante scheidingsfactor welke groter is dan de wortel uit de scheidingsfactor bij totale reflux, en met een constante voedingsstroom. Voor kolommen van dit type gelden dus de eenvoudige veronderstellingen, die gemaakt zijn bij de behandeling van de ideale cascade, nl. identieke elementen en een scheidingsfactor welke onafhankelijk is van de concentratie. Tengevolge van het interne verlies kan bij deze kolommen per cm lengte slechts 80 % van het maximale scheidend vermogen bereikt worden.

DE TEGENSTROOM CENTRIFUGE

§ 1. Scheidingsfactor en scheidend vermogen

Bij de opstelling van de vergelijking, die het concentratieveld in een centrifuge beschrijft, zijn er verschillende uitgangspunten mogelijk, die uiteraard tot hetzelfde resultaat leiden. Diffusie kunnen we, zoals uiteengezet wordt door de Groot²⁹⁾, barycentrisch beschrijven of moleculair beschrijven. Bij de barycentrische diffusie worden de diffusie stroomdichtheden J_1 en J_2 gedefinieerd ten opzichte van de gemiddelde massasnelheid v .

$$\begin{aligned} J_1 &= \varrho_1 v_1 - \varrho_1 v & J_2 &= \varrho_2 v_2 - \varrho_2 v \\ \varrho v &= \varrho_1 v_1 + \varrho_2 v_2 \end{aligned} \quad (1.3)$$

v_1 en v_2 zijn de gemiddelde moleculaire snelheden van de componenten 1 en 2, ϱ_1 en ϱ_2 de partiële dichtheden; ϱ is de dichtheid van het mengsel.

Uit de definities volgt onmiddellijk dat J_1 en J_2 ook uit te drukken zijn in het verschil der moleculaire snelheden.

$$J_1 = -J_2 = \frac{\varrho_1 \varrho_2}{\varrho} (v_1 - v_2) \quad (2.3)$$

Bij de moleculaire diffusie worden de diffusiestroomdichtheden J_1^m en J_2^m gedefinieerd ten opzichte van de gemiddelde deeltjes-snelheid v^m .

$$\begin{aligned} J_1^m &= \varrho_1 v_1 - \varrho_1 v^m & J_2^m &= \varrho_2 v_2 - \varrho_2 v^m \\ v^m &= N v_1 + (1 - N) v_2 \end{aligned} \quad (3.3)$$

waarbij N en $(1 - N)$ de reeds in vorige hoofdstukken gebruikte molaire concentraties zijn. Bij de formulering van deze definities is gebruik gemaakt van de eigenschap van een ideaal mengsel, dat

$$\varrho_1 = \frac{NM_1}{M} \varrho \quad \varrho_2 = \frac{(1-N)M_2}{M} \varrho \quad (4.3)$$

waarbij M_1 , M_2 en M de moleculaire massa's van de beide componenten en het mengsel zijn. Deze eigenschap volgt uit het feit dat het specifieke volume voor de componenten en het mengsel gelijk zijn.

J_1^m en J_2^m zijn ook weer uit te drukken in het verschil van de moleculaire snelheden.

$$\frac{J_1^m}{M_1} = -\frac{J_2^m}{M_2} = \frac{\rho}{M} N(1-N) (\mathbf{v}_1 - \mathbf{v}_2) \quad (5.3)$$

Het verband tussen de barycentrische diffusie en de moleculaire diffusie volgt uit (2.3) en (5.3), waarbij weer gebruik gemaakt wordt van de eigenschappen van het ideale mengsel.

$$J_1 = \frac{M_1 M_2}{M} \frac{J_1^m}{M_1} \quad (6.3)$$

We veronderstellen nu dat een isotherm ideaal gasmengsel, bestaande uit twee componenten, zich bevindt in een centrifuge. Het gas roteert met dezelfde hoeksnelheid ω als de centrifuge. Behalve de tangentiële snelheid ωr kan het gas bovendien nog een radiale of een axiale snelheid hebben. De invloed van het gravitatieveld wordt verwaarloosd. Voor een dergelijk systeem zijn in de diffusievergelijking slechts de concentratiediffusie en de drukdiffusieterm ongelijk aan nul. De gebruikelijke diffusievergelijking is voor de barycentrische diffusie, welke o.a. gegeven wordt door Hirschfelder, Curtiss en Bird ³¹) en door de Groot ²⁹)

$$\begin{aligned} J_1 &= \rho D_{12} \frac{M_1 M_2}{M^2} \left\{ \frac{(M_1 - M_2) \omega^2 r}{RT} N(1-N) \mathbf{1}_r - \text{grad } N \right\} \\ &= -\frac{\rho D_{12}}{RT} \frac{M_1 M_2}{M} \left\{ \frac{\Delta M \omega^2 r}{RT} N(1-N) \mathbf{1}_r + \text{grad } N \right\} \end{aligned} \quad (7.3)$$

De factor $\frac{M_1 M_2}{M^2}$ voor de gradiënt van de concentratie komt omdat

we de diffusiecoëfficiënt gebruikt hebben, die betrekking heeft op de gewichtskoncentratiegradiënt. Voor deze diffusiecoëfficiënt geldt volgens de kinetische gastheorie ³¹), dat in eerste orde bij constante temperatuur het produkt ρD_{12} constant is. Volgens conventie hebben we $M_2 > M_1$ gekozen en het verschil $M_2 - M_1 = \Delta M$ gesteld.

Met behulp van (6.3) kunnen we de moleculaire diffusie uit de barycentrische diffusie afleiden. Daar bij de cascade theorie de

stromen uitgedrukt worden in mol/sec, drukken we ook de diffusiestroom in deze eenheid uit.

$$\frac{J_1^m}{M_1} = \frac{pD_{12}}{RT} \left\{ \frac{\Delta M\omega^2 r}{RT} N(1-N) \mathbf{1}_r + \text{grad } N \right\} \quad (8.3)$$

Uit deze vergelijking zijn een aantal conclusies te trekken. In de eerste plaats volgen hieruit de evenwichtsconcentratiegradiënt en het elementair effect, omdat in dat geval $J_1^m = 0$ is.

$$\left(\frac{\partial N}{\partial r} \right)_{\text{eq}} = - \frac{\Delta M\omega^2 r}{RT} N(1-N) \quad (9.3)$$

$$\alpha_0 = \frac{R(r_2)}{R(0)} = e^{-\frac{\Delta M\omega^2 r_2^2}{2RT}} \quad (10.3)$$

Verder kunnen we uit deze vergelijking het maximale scheidend vermogen van een centrifuge berekenen, alsmede de maximale vermindering van de mengentropie. In radiale richting wordt de netto materiaalstroom door een cylinderoppervlak met hoogte dz en straal r , dat concentrisch is met de centrifugeas, gegeven door het produkt van de moleculaire diffusie stroomdichtheid en het cylinderoppervlak. Uit (38.2) volgt dan het scheidend vermogen voor een cylinderring met dikte dr .

$$dU = - \frac{pD_{12}}{RT} \frac{\left\{ \frac{\Delta M\omega^2 r}{RT} N(1-N) + \frac{dN}{dr} \right\} \frac{dN}{dr}}{N^2(1-N)^2} 2\pi r dr dz$$

Het scheidend vermogen voor een dergelijk infinitesimaal element als functie van $\frac{dN}{dr}$ wordt verkregen indien

$$\left(\frac{dN}{dr} \right)_{\text{opt.}} = - \frac{\Delta M\omega^2 r}{2RT} N(1-N).$$

De optimale radiale concentratiegradiënt is dus gelijk aan de helft van de gradiënt in evenwicht; de radiale verrijking is gelijk aan de wortel uit het elementair effect, waarmee de vierkantswortel regel weer wordt bevestigd. Bij deze concentratiegradiënt is het scheidend vermogen van een infinitesimaal element dus

$$(dU)_{\text{max}} = \frac{pD_{12}}{RT} \left\{ \frac{\Delta M\omega^2 r}{2RT} \right\}^2 2\pi r dr dz$$

Integratie over het volume van de centrifuge met straal r_2 en lengte l geeft dan het maximale scheidend vermogen

$$\begin{aligned}
 (\delta U)_{\max} &= \frac{\rho D_{12}}{RT} \left[\frac{\Delta M \omega^2 r_2^2}{2RT} \right]^2 \frac{\pi l}{2} \text{ mol/sec.} \\
 &= \rho D_{12} \left[\frac{\Delta M \omega^2 r_2^2}{2RT} \right]^2 \frac{\pi l}{2} \text{ g/sec} \quad (11.3)
 \end{aligned}$$

Dit resultaat werd reeds door Dirac¹⁵⁾ afgeleid, uitgaande ook van de uitdrukking voor het scheidend vermogen van een infinitesimaal tegenstroom element.

Voor de maximale verandering van de mengentropie per centrifuge volgt dan uit (25.2) of uit (31.2)

$$-\frac{\delta S}{R} = \frac{\rho D_{12}}{RT} \left[\frac{\Delta M \omega^2 r_2^2}{2RT} \right]^2 \frac{\pi l}{2} \cdot N(1-N) \text{ mol/sec} \quad (12.3)$$

Dit resultaat is ook af te leiden uit de uitdrukking voor de entropieproductie σ uit de thermodynamica der irreversibele processen.

$$T\sigma = \mathbf{J}_1 \cdot \mathbf{X}_1 + \mathbf{J}_2 \cdot \mathbf{X}_2 = \mathbf{J}_1 \cdot (\mathbf{X}_1 - \mathbf{X}_2) \quad (13.3)$$

waarbij van de thermodynamische krachten \mathbf{X}_1 en \mathbf{X}_2 uitsluitend de concentratieafhankelijke termen genomen worden, daar wij onze beschouwingen beperken tot de mengentropie.

Zowel de uitdrukking voor het maximale scheidend vermogen (11.3) als voor de maximale verandering van de mengentropie (12.3) laten zien dat de waarde van een centrifuge in een cascade evenredig is met de vierde macht van de omtreksnelheid. Het scheidend vermogen is homogeen in de hoeksnelheid en de diameter, wat betekent dat uitsluitend de omtreksnelheid van belang is. Verder is het scheidend vermogen evenredig met de lengte. Wat betreft de temperatuur moet opgemerkt worden, dat in eerste orde ρD_{12} evenredig is met de wortel uit de absolute temperatuur, zodat $\delta U \sim T^{-3/2}$.

Zoals reeds eerder werd toegelicht is het scheidend vermogen een functie van het absolute massaverschil, en niet van het relatieve massaverschil. Tenslotte is ρD_{12} een belangrijke factor, die bij alle diffusiemethoden lineair voorkomt in het scheidend vermogen. Bij

een vergelijking tussen een separatie in de gasfase en in de vloeistof-fase kunnen we ruwweg stellen

$$\frac{\varrho_{\text{gas}}}{\varrho_{\text{vloeistof}}} \approx 10^{-3} \quad \frac{D_{\text{gas}}}{D_{\text{vloeistof}}} \approx 10^5$$

$$\frac{(\varrho D)_{\text{gas}}}{(\varrho D)_{\text{vloeistof}}} \approx 10^2$$

In het algemeen zal het dus aanbeveling verdienen thermodiffusie, drukdiffusie en diffusie door poreuze wanden te laten plaats vinden in de gasfase.

De partiële differentiaalvergelijking voor een centrifugaal veld kan nu afgeleid worden door gebruik te maken van de continuïteitsvergelijking voor de partiële dichtheden.

$$\frac{\partial \varrho_1}{\partial t} = -\text{div } \varrho_1 \mathbf{v}_1 = -\text{div } \mathbf{J}_1 - \text{div } \varrho_1 \mathbf{v} = -\text{div } \mathbf{J}_1^m - \text{div } \varrho_1 \mathbf{v}^m \quad (14.3)$$

Differentiaties naar ϱ_1 kunnen voor een ideaal mengsel uitgedrukt worden in differentiaties naar $\frac{NM_1}{M} \varrho$, volgens (4.3). Verder veronderstellen we dat het separatie-element wat betreft het mengsel als geheel stationair is, daar de stationaire toestand voor het mengsel veel sneller is ingesteld dan de stationaire toestand voor ieder der componenten. Dit betekent dat

$$\frac{\partial \varrho}{\partial t} = -\text{div } \varrho \mathbf{v} = 0.$$

Uiteraard kunnen we zowel de barycentrische als de moleculaire uitdrukkingen gebruiken. De barycentrische beschrijving heeft evenwel het voordeel dat de gemiddelde massasnelheid \mathbf{v} als uitgangspunt gekozen is, welke snelheid ook voorkomt in de algemene hydrodynamische vergelijkingen. Met behulp van (7.3) volgt nu

$$\varrho \frac{\partial}{\partial t} \frac{NM_1}{M} = \text{div } \frac{pD_{12}}{RT} \frac{M_1 M_2}{M^2} \left\{ \frac{\Delta M \omega^2 r}{RT} N(1-N) \mathbf{1}_r + \text{grad } N \right\} - \varrho \mathbf{v} \cdot \text{grad } \frac{NM_1}{M}$$

$$Nu \text{ is } \frac{\partial}{\partial t} \frac{NM_1}{M} = \frac{M_1 M_2}{M^2} \frac{\partial N}{\partial t} \text{ en } \text{grad} \frac{NM_1}{M} = \frac{M_1 M_2}{M^2} \text{grad} N;$$

verwaarlozen we tenslotte de differentiatie naar $\frac{M_1 M_2}{M}$, welke gelijk is aan $\frac{\Delta M}{M} \cdot \frac{M_1 M_2}{M}$ grad N, dan wordt de differentiaalvergelijking

$$\varrho \frac{\partial N}{\partial t} = \varrho D_{12} \text{div} \left\{ \frac{\Delta M \omega^2 r}{RT} N(1-N) \mathbf{1}_r + \text{grad} N \right\} - \varrho \mathbf{v} \cdot \text{grad} N \quad (15.3)$$

Uiteraard zou de moleculaire beschrijvingswijze bij dezelfde verwaarlozingen hetzelfde resultaat gegeven hebben. We hebben wat uitvoeriger bij de afleiding van de vergelijking stilgestaan, omdat in vele gevallen barycentrische en moleculaire diffusiecoëfficiënten en gemiddelde snelheden door elkaar gebruikt worden.

Stellen we de radiale component van de snelheid \mathbf{v} gelijk aan u , de axiale snelheid gelijk aan w , dan volgt hieruit

$$\varrho \frac{\partial N}{\partial t} = \frac{\varrho D_{12}}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left\{ \frac{\Delta M \omega^2 r^2}{RT} N(1-N) + r \frac{\partial N}{\partial r} \right\} - \varrho u \frac{\partial N}{\partial r} - \varrho w \frac{\partial N}{\partial z} + \varrho D \frac{\partial^2 N}{\partial z^2} \quad (16.3)$$

Voor de verdampingscentrifuge wordt w gelijk aan nul gesteld, terwijl eveneens N geen functie is van z ; in de doorstroom- en de tegenstroomcentrifuge is u nul, zodat de vergelijking voor de tegenstroomcentrifuge wordt

$$\varrho \frac{\partial N}{\partial t} = \frac{\varrho D_{12}}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left\{ \frac{\Delta M \omega^2 r^2}{RT} N(1-N) + r \frac{\partial N}{\partial z} \right\} - \varrho w \frac{\partial N}{\partial z} + \varrho D \frac{\partial^2 N}{\partial z^2} \quad (17.3)$$

De vergelijkingen (16.3) en (17.3) werden door Cohen gebruikt als basisvergelijkingen voor de drie typen centrifuge. Bij de oplossing van (17.3) voor de tegenstroomcentrifuge volgde hij een methode, die aangegeven was door Bramley¹²⁾ en door Martin en Kuhn¹³⁾. De essentie van deze methode is, dat de variatie van N met betrekking tot r klein is ten opzichte van de variatie van r , ϱ of ϱw met betrekking tot r , dit omdat $\frac{\partial N}{\partial r}$ van de orde van grootte van

$\frac{\Delta M \omega^2 r}{RT} N(1-N)$ is, welke functie zeer klein is.

Door hiervan gebruik te maken toont hij aan dat de vergelijking geschreven kan worden in de vorm

$$c_6 \frac{\partial N}{\partial t} = c_5 \frac{\partial^2 N}{\partial z^2} - \frac{\partial}{\partial z} \left\{ PN + c_1 N(1-N) \right\} \quad (18.3)$$

en voor de stationaire toestand als

$$P(N_p - N) = c_1 N(1-N) - c_5 \frac{dN}{dz} \quad (19.3),$$

wat de algemene vergelijking is voor een stationair werkende kolom. De kolomparameters worden gegeven door

$$c_1 = 2\pi \frac{\Delta M \omega^2}{RT} \int_0^{r_2} r dr \int_0^r \rho w r dr \text{ g/sec.}$$

$$c_2 = \pi r_2^2 \rho D_{12} \text{ g cm/sec.}$$

$$c_2 = 2\pi \frac{1}{\rho D_{12}} \int_0^{r_2} \frac{dr}{r} \left(\int_0^r \rho w r dr \right)^2 \text{ g cm/sec.}$$

$$P = 2\pi \int_0^{r_2} \rho w r dr \text{ g/sec} \quad (20.3)$$

$$c_5 = c_2 + c_2 \text{ g cm/sec.}$$

$$c_6 = 2\pi \int_0^{r_2} \rho r dr \text{ g/cm}$$

De oplossing van deze vergelijking, welke in hoofdstuk II, § 4 is besproken, wordt geschreven in de parameters $2\varepsilon = \frac{c_1}{c_5}$ en $\psi = \frac{P}{c_1}$. Nu bevatten de kolomparameters c_1 , c_5 en P alle de stromingsfunctie

$$Q(r) = \int_0^r \rho w r dr \quad (21.3)$$

welke functie zowel afhankelijk is van de sterkte als van het profiel van de tegenstroomwervel. Omdat dit voor een goed begrip van de discussies in de volgende paragraaf, omtrent de invloed van het profiel op het scheidend vermogen, nodig is, geven we nog een korte samenvatting van de door Cohen gevolgde methode om profiel en sterkte te scheiden. Hiertoe wordt ingevoerd de functie

$$L = 2\pi \int_0^{r_2} |\varrho w| r dr \quad (22.3)$$

welke grootheid gelijk is aan de som van de heenstroom en de terugstroom; L representeert de wervelsterkte, terwijl $\frac{Q(r)}{L}$ geen functie van L meer is.

Voor de parameters ψ en 2ε kunnen we nu schrijven

$$\psi = \frac{P}{a_1 L}$$

$$2\varepsilon = \frac{a_1 L}{c_2 + a_3 L^2}$$

waarbij $a_1 = \frac{c_1}{L}$ en $a_3 = \frac{c_3}{L^2}$ geen functies meer zijn van de wervelsterkte L .

Uit deze schrijfwijze volgt, dat 2ε als functie van L een maximale waarde $2\varepsilon_0$ heeft, welke bereikt wordt voor $L = L_0$.

$$2\varepsilon_0 = \frac{a_1}{2\sqrt{c_2 a_3}} = \frac{\frac{\Delta M \omega^2}{RT} \int_0^{r_2} Q(r) r dr}{r_2 \sqrt{2 \int_0^{r_2} \frac{Q^2(r)}{r} dr}} \quad (23.3)$$

$$L_0 = \sqrt{\frac{c_2}{a_3}} = \frac{2\pi r_2 \varrho D_{12} \int_0^{r_2} |\varrho w| r dr}{\sqrt{2 \int_0^{r_2} \frac{Q^2(r)}{r} dr}} \quad (24.3)$$

Indien we tenslotte de wervelsterkte meten in de dimensieloze parameter

$$m = \frac{L}{L_0} \quad (25.3)$$

dan kunnen 2ε en ψ uitgedrukt worden in ε_0 , P en m .

$$2\varepsilon = \frac{a_1 m L_0}{c_2 + a_3 m^2 L_0^2} = 2\varepsilon_0 \frac{2m}{1 + m^2} \quad (26.3)$$

$$\psi = \frac{P}{a_1 m L_0} = \frac{P}{4\varepsilon_0 c_2 m} = \frac{P}{m P_0} \quad (27.3)$$

$$P_0 = 4\pi\varepsilon_0 r_2^2 \rho D \quad (28.3)$$

Volgens (56.2) wordt het scheidend vermogen van een centrifuge van het type I nu

$$\begin{aligned} \delta U &= \frac{c_1^2}{4c_5} l = \frac{a_1^2 m^2 L_0^2}{4(c_2 + a_3 m^2 L_0^2)} l = \frac{a_1^2}{4a_3} \frac{m^2}{1 + m^2} l = \\ &= 4\varepsilon_0^2 c_2 \frac{m^2}{1 + m^2} l \end{aligned} \quad (29.3)$$

terwijl voor een centrifuge van het type II de factor 0,8 moet worden toegevoegd volgens (71.2). Dit geldt uitsluitend indien de aftap P optimaal is gekozen.

De scheidingsfactor bij totale reflux wordt voor beide typen volgens (55.2) en (73.2) gegeven door

$$\frac{R(l)}{R(0)} = e^{2\varepsilon l} = e^{2\varepsilon_0 \frac{2m}{1 + m^2} l} \quad (30.3)$$

Uit (29.3) volgt dat het scheidend vermogen als functie van de wervelsterkte maximaal wordt voor $m \rightarrow \infty$, uit (30.3) dat de scheidingsfactor bij totale reflux maximaal wordt voor $m = 1$. Dit betekent echter niet dat we voor een hoog scheidend vermogen de verrijking per element zeer laag moeten kiezen, immers voor $m = 3$, bereiken we reeds 90% van het scheidend vermogen, terwijl $(\alpha - 1)$ ongeveer 60% van de verrijking bij totale reflux bedraagt.

Teneinde nu de invloed van de vorm van de tegenstroomwervel op δU te kunnen nagaan voeren we de vormfactor γ in, die gegeven wordt door vergelijking van het scheidend vermogen volgens (29.3) uit de kolomtheorie, en het maximaal scheidend vermogen volgens (11.3), waarbij we gebruik maken van de uitdrukkingen voor ε_0 (23.3) en c_2 (20.3)

$$\delta U = 4\varepsilon_0^2 c_2 \frac{m^2}{1+m^2} l = (\delta U)_{\max} \cdot \frac{m^2}{1+m^2} \cdot \frac{4 \left\{ \int_0^{r_2} Q(r) dr \right\}^2}{r_2^4 \int_0^{r_2} \frac{Q^2(r)}{r} dr} =$$

$$= (\delta U)_{\max} \frac{m^2}{1+m^2} \gamma \quad (31.3)$$

Hieruit volgt zonder meer dat γ maximaal gelijk aan 1 kan zijn, een feit dat ook op andere wijze bewezen kan worden. Ook $2\varepsilon_0$ kan met behulp van γ in een andere vorm gebracht worden.

$$2\varepsilon_0 = \frac{\Delta M \omega^2 r_2^2}{2RT} \frac{1}{r_2 \sqrt{2}} \sqrt{\gamma} = (2\varepsilon_0)_{\max} \sqrt{\gamma} \quad (32.3)$$

Dit betekent dat bij de maximale verrijking die mogelijk is, het elementair effect $\frac{1}{r_2 \sqrt{2}}$ maal vermenigvuldigd wordt.

Door gebruik te maken van de formules (67.2) en (69.2) kunnen we voor a en δU in een tegenstroomcentrifuge uitdrukkingen vinden in de parameters $2\varepsilon_0 l$, de dimensieloze wervelsterkte m en de dimensieloze aftap $\frac{P}{P_0}$.

$$a = \frac{2 + \frac{2\varepsilon_0 l}{1+m^2} \cdot \frac{P}{P_0} + \frac{1}{6} \left(\frac{2\varepsilon_0 l}{1+m^2} \cdot \frac{P}{P_0} \right)^2 + \frac{2\varepsilon_0 l}{1+m^2} \cdot m}{2 + \frac{2\varepsilon_0 l}{1+m^2} \cdot \frac{P}{P_0} + \frac{1}{6} \left(\frac{2\varepsilon_0 l}{1+m^2} \cdot \frac{P}{P_0} \right)^2 - \frac{2\varepsilon_0 l}{1+m^2} \cdot m} \quad (33.3)$$

$$\delta U = \frac{16\pi\varepsilon_0 r_2^2 \rho D \left(\frac{2\varepsilon_0 l}{1+m^2} \cdot m \right)^2 \frac{P}{P_0}}{\left\{ 2 + \frac{2\varepsilon_0 l}{1+m^2} \cdot \frac{P}{P_0} + \frac{1}{6} \left(\frac{2\varepsilon_0 l}{1+m^2} \cdot \frac{P}{P_0} \right)^2 \right\}^2} \text{ g/sec} \quad (34.3)$$

Uit (70.2), (71.2) en (31.3) volgt dat bij een dimensieloze aftap

$$\frac{P}{P_0} = \frac{\sqrt{5}-1}{2\varepsilon_0 l} (1+m^2) \quad (35.3)$$

het voor dit type maximale scheidend vermogen behaald wordt

$$\delta U = 0,81 \cdot \frac{m^2}{1 + m^2} \gamma \cdot (\delta U)_{\max} \quad (36.3)$$

Vermenigvuldigen we in (35.3) beide leden met P_0 , welke gegeven wordt door (28.3), dan blijkt de aftap P , waarbij δU maximaal wordt gegeven te worden door

$$P = \rho D (\sqrt{5} - 1) \frac{2\pi r_2^2}{l} (1 + m^2) \text{ g/sec} \quad (3.37)$$

Deze uitdrukking is onafhankelijk van de vormfactor γ . Het maximum van de curve δU tegen P geeft dus onmiddellijk de wervelsterkte m . Vergelijking van het uit het experiment berekende scheidend vermogen met het scheidend vermogen volgens (36.3) geeft dan de waarde van γ . Op deze wijze kunnen dus experimenteel de onbekende kolomparameters bepaald worden.

In de figuren 1.3 en 2.3 zijn voor een centrifuge, type II, het scheidend vermogen δU en a als functie van de dimensieloze aftap $\frac{P}{P_0}$ uitgezet. De gekozen waarden $2\varepsilon_0 l = 0,4152$ en $P_0 = 3,05 \cdot 10^{-4}$ g/sec komen overeen met de volgende condities.

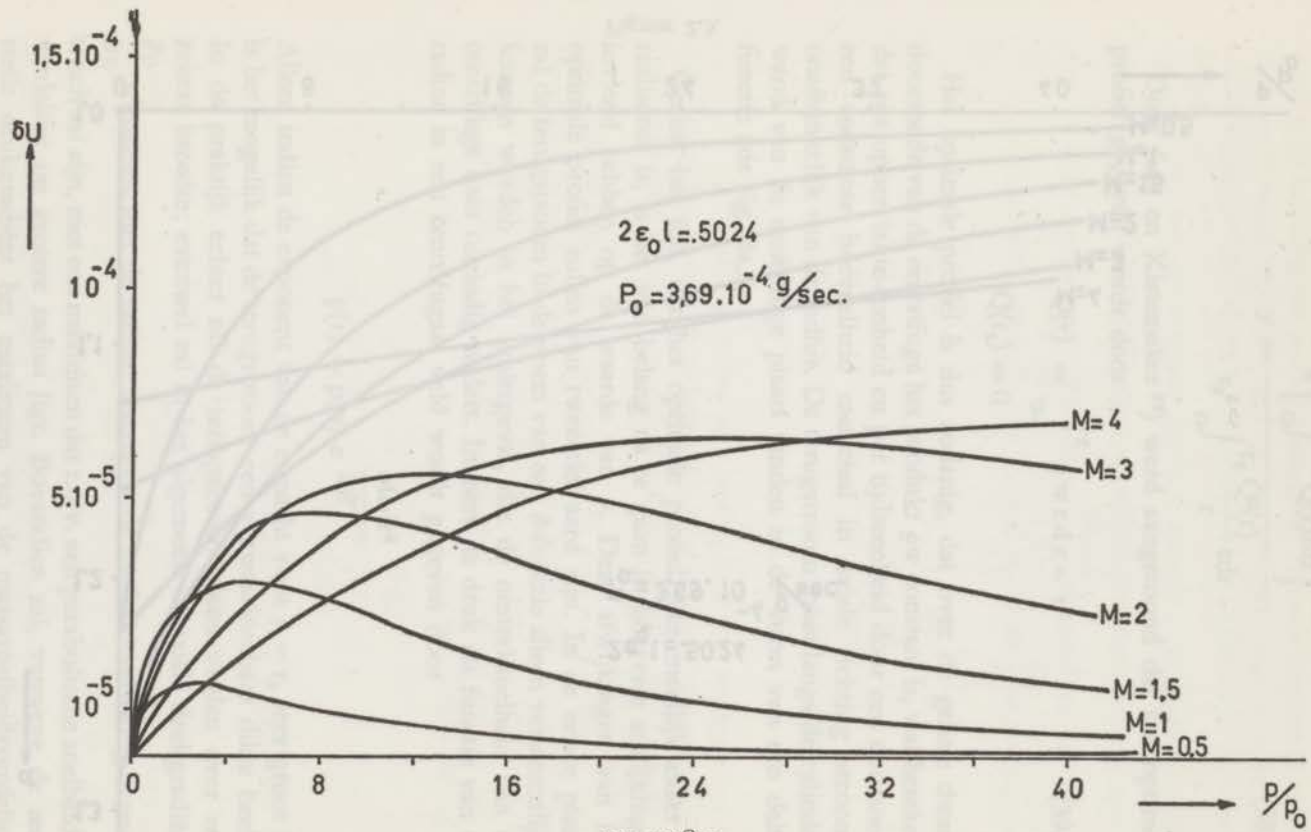
$$\begin{array}{ll} \omega r_2 = 3,5 \cdot 10^4 \text{ cm sec}^{-1} & \rho D = 2,34 \cdot 10^{-4} \text{ Poise.} \\ l = 50 \text{ cm} & \Delta M = 3 \\ r_2 = 5 \text{ cm} & R = 8,314 \cdot 10^7 \text{ erg } ^\circ\text{K}^{-1} \text{ mol}^{-1} \\ T = 303 \text{ } ^\circ\text{K} & \gamma = 1. \end{array}$$

De omtreksnelheid, alsmede lengte en diameter zijn gekozen volgens de gegevens van Zippe^{25, 26}), waarbij opgemerkt moet worden dat de scheidingsexperimenten uitgevoerd zijn met een centrifuge van enigszins andere afmetingen²⁷). De waarden voor de stofconstante ρD alsmede ΔM gelden voor UF_6 bij 30°C .

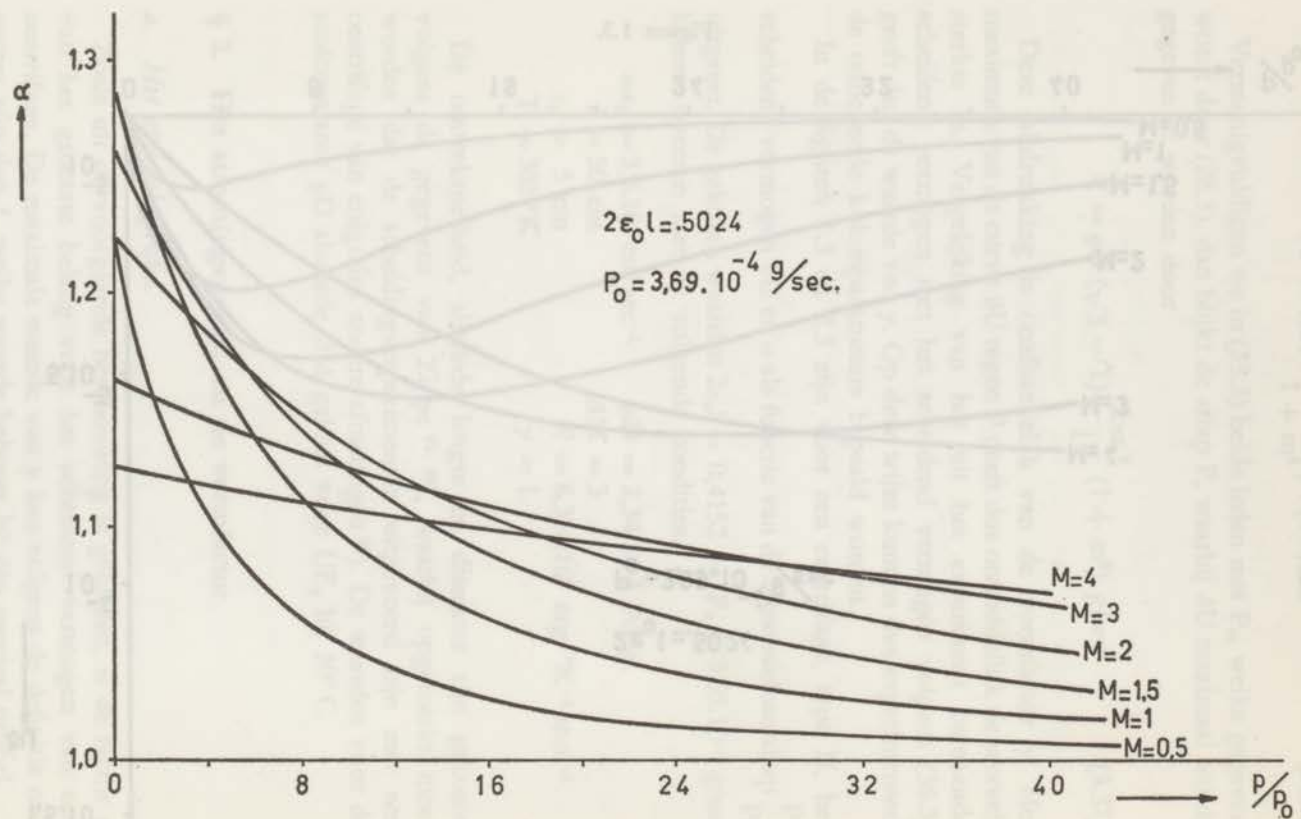
§ 2. Het stromingsprofiel en de vormfactor

a. Het optimale profiel.

Zoals uit de voorgaande beschouwing is gebleken, is de factor γ van het grootste belang voor het scheidend vermogen van een centrifuge. De maximale waarde van γ kan volgens de definitie niet groter zijn dan 1, welke waarde behoort bij één speciaal profiel.



Figur 1.3.



Figuur 2.3.

$$\gamma = \frac{4 \left\{ \int_0^{r_2} Q(r) r dr \right\}^2}{r_2^4 \int_0^{r_2} \frac{Q^2(r)}{r} r dr} \quad (38.3)$$

Door Los en Kistemaker³²⁾ werd aangetoond dat het optimale profiel gegeven wordt door

$$Q(r) = \int_0^r \varrho w r dr \sim r^2 \quad (39.3)$$

$$Q(r_2) = 0$$

Het optimale profiel is dus zodanig, dat over de gehele dwarsdoorsnede van de centrifuge het produkt ϱw constant is, wat betekent dat per oppervlakte-eenheid en per tijdseenheid door een doorsnede een constante hoeveelheid materiaal in axiale richting stroomt, onafhankelijk van de radius. De terugstroom moet langs de cylinderwand van de centrifuge plaats vinden in de vorm van een delta-functie (zie fig. 3a.3).

Gezien het feit, dat het optimale profiel zeer moeilijk exact te realiseren is, is het van belang na te gaan in hoeverre afwijkingen invloed hebben op de waarde van γ . Deze afwijkingen van het optimale profiel zullen van tweeërlei aard zijn. In de eerste plaats zal de terugstroom in de vorm van een δ -functie alleen verwezenlijkt kunnen worden in het limietgeval, dat de omtreksnelheid van de centrifuge naar oneindig nadert. Immers de druk als functie van de radius in een centrifugaal veld wordt gegeven door

$$p(r) = p(0) e^{\frac{M\omega^2 r^2}{2RT}}$$

Alleen indien de exponent van de e-macht voor $r = r_2$ zeer groot is, is het mogelijk dat de terugstroom een verwaarloosbare dikte heeft. In de praktijk echter zal de terugstroom plaats vinden over een zekere breedte; evenwel zal in het algemeen de axiale drukgradiënt $\frac{\partial p}{\partial z}$ toenemen met de radius, waardoor de snelheidsverdeling asymmetrisch zal zijn, met een maximum dat t.o.v. een parabolische snelheidsverdeling op grotere radius ligt. Bovendien zal, vanwege de zeer steile drukgradiënt het maximum van de massasnelheidsverdeling

nog dichter naar de wand van de centrifuge verschoven zijn. Of-
 schoon de invloed van een verbreding van de terugstroom op γ eerst
 exact bepaald kan worden indien het volledige stromingsprofiel
 bekend is, laten schattingen, uitgaande van de bovenstaande over-
 wegingen, zien, dat γ bij niet te kleine waarden van het kental $\frac{M\omega^2 r^2}{2RT}$
 weinig invloed ondervindt van de verbreding der terugstroom. De
 waarde van het kental $\frac{M\omega^2 r^2}{2RT}$ voor UF_6 met massa 352, bij een
 temperatuur van $30^\circ C$ als functie van de omtreksnelheid ωr_2 is

ωr_2	$\frac{M\omega^2 r_2^2}{2RT}$
250 m/sec	4,37
300 „	6,29
350 „	8,56
400 „	11,18

Dit is ongeveer het werkgebied van een centrifuge.

De lagere snelheden worden genoemd in de oudere publicaties van
 Groth en Beams, de hogere snelheden in de publicaties van meer
 recente datum van Zippe.

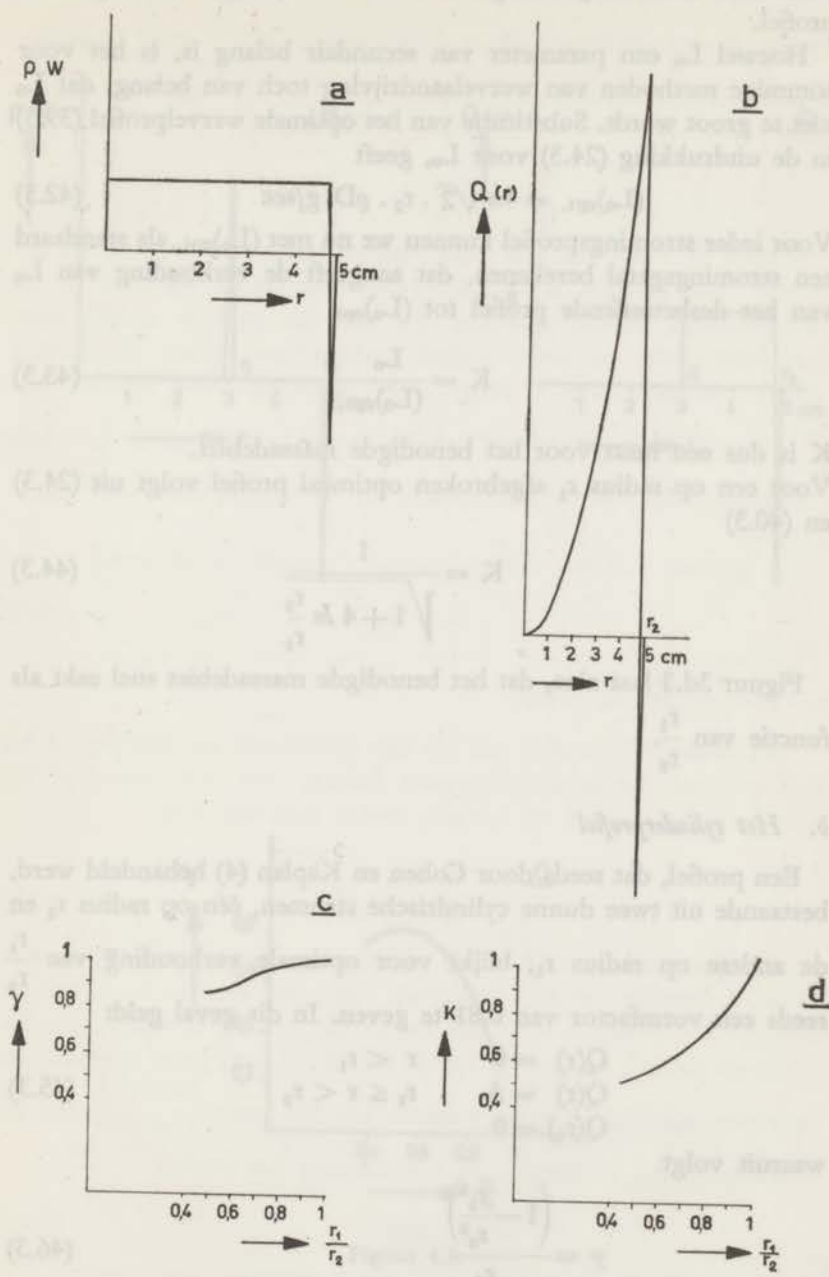
Een tweede aspect van de verbreding is, dat het opgedwongen
 optimale profiel niet gerealiseerd wordt over de gehele doorsnede
 van de centrifuge, maar zich slechts uitstrekt tot een radius r_1 , welke
 kleiner is dan de straal van de centrifuge. Het profiel kan dan als
 volgt benaderd worden

$$\begin{aligned} Q(r) &= Ar^2 & r \leq r_1 \\ Q(r) &= Ar_1^2 & r_1 < r < r_2 \\ Q(r_2) &= 0 \end{aligned}$$

De uitdrukking voor γ wordt voor dit geval

$$\gamma = \frac{\left(2 - \frac{r_1^2}{r_2^2}\right)^2}{1 + 4 \ln \frac{r_2}{r_1}} \quad (41.3)$$

Uit figuur 3c.3, waar γ uitgezet is als functie van $\frac{r_1}{r_2}$ blijkt, dat de



Figuur 3.3.

vormfactor niet zeer gevoelig is voor deze afwijking van het optimale profiel.

Hoewel L_o een parameter van secundair belang is, is het voor sommige methoden van wervelaandrijving toch van belang, dat L_o niet te groot wordt. Substitutie van het optimale wervelprofiel (39.3) in de uitdrukking (24.3) voor L_o , geeft

$$(L_o)_{opt.} = 4\pi \sqrt{2} \cdot r_2 \cdot \rho D \text{ g/sec} \quad (42.3)$$

Voor ieder stromingsprofiel kunnen we nu met $(L_o)_{opt.}$ als standaard een stromingsgetal berekenen, dat aangeeft de verhouding van L_o van het desbetreffende profiel tot $(L_o)_{opt.}$

$$K = \frac{L_o}{(L_o)_{opt.}} \quad (43.3)$$

K is dus een maat voor het benodigde massadebiet.

Voor een op radius r_1 afgebroken optimaal profiel volgt uit (24.3) en (40.3)

$$K = \frac{1}{\sqrt{1 + 4 \ln \frac{r_2}{r_1}}} \quad (44.3)$$

Figuur 3d.3 laat zien, dat het benodigde massadebiet snel zakt als functie van $\frac{r_1}{r_2}$.

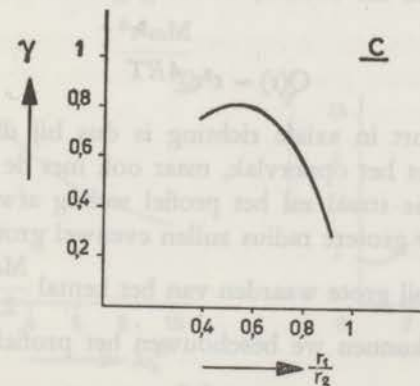
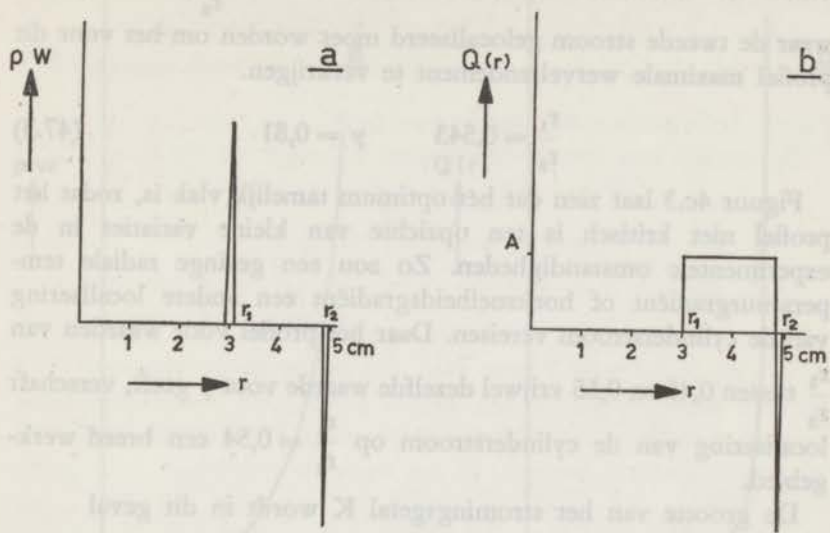
b. Het cylinderprofiel

Een profiel, dat reeds door Cohen en Kaplan (4) behandeld werd, bestaande uit twee dunne cilindrische stromen, één op radius r_2 en de andere op radius r_1 , blijkt voor optimale verhouding van $\frac{r_1}{r_2}$ reeds een vormfactor van 0,81 te geven. In dit geval geldt

$$\begin{aligned} Q(r) &= 0 & r < r_1 \\ Q(r) &= A & r_1 \leq r < r_2 \\ Q(r_2) &= 0 \end{aligned} \quad (45.3)$$

waaruit volgt

$$\gamma = \frac{\left(1 - \frac{r_1^2}{r_2^2}\right)}{\ln \frac{r_2}{r_1}} \quad (46.3)$$



Figuur 4.3.

Deze uitdrukking laat zien, dat de keuze van r_2 inderdaad juist is, omdat dit een randmaximum is. Differentiatie naar $\frac{r_1}{r_2}$ geeft de plaats, waar de tweede stroom gelocaliseerd moet worden om het voor dit profiel maximale wervelrendement te verkrijgen.

$$\frac{r_1}{r_2} = 0,543 \quad \gamma = 0,81 \quad (47.3)$$

Figuur 4c.3 laat zien dat het optimum tamelijk vlak is, zodat het profiel niet kritisch is ten opzichte van kleine variaties in de experimentele omstandigheden. Zo zou een geringe radiale temperatuurgradiënt of hoeksnelheidsgradiënt een andere localisering van de cylinderstroom vereisen. Daar het profiel voor waarden van $\frac{r_1}{r_2}$ tussen 0,45 en 0,65 vrijwel dezelfde waarde voor γ geeft, verschaft localisering van de cylinderstroom op $\frac{r_1}{r_2} = 0,54$ een breed werkgebied.

De grootte van het stromingsgetal K wordt in dit geval

$$K = 0,64 \quad (48.3)$$

c. *Het exponentiële profiel.*

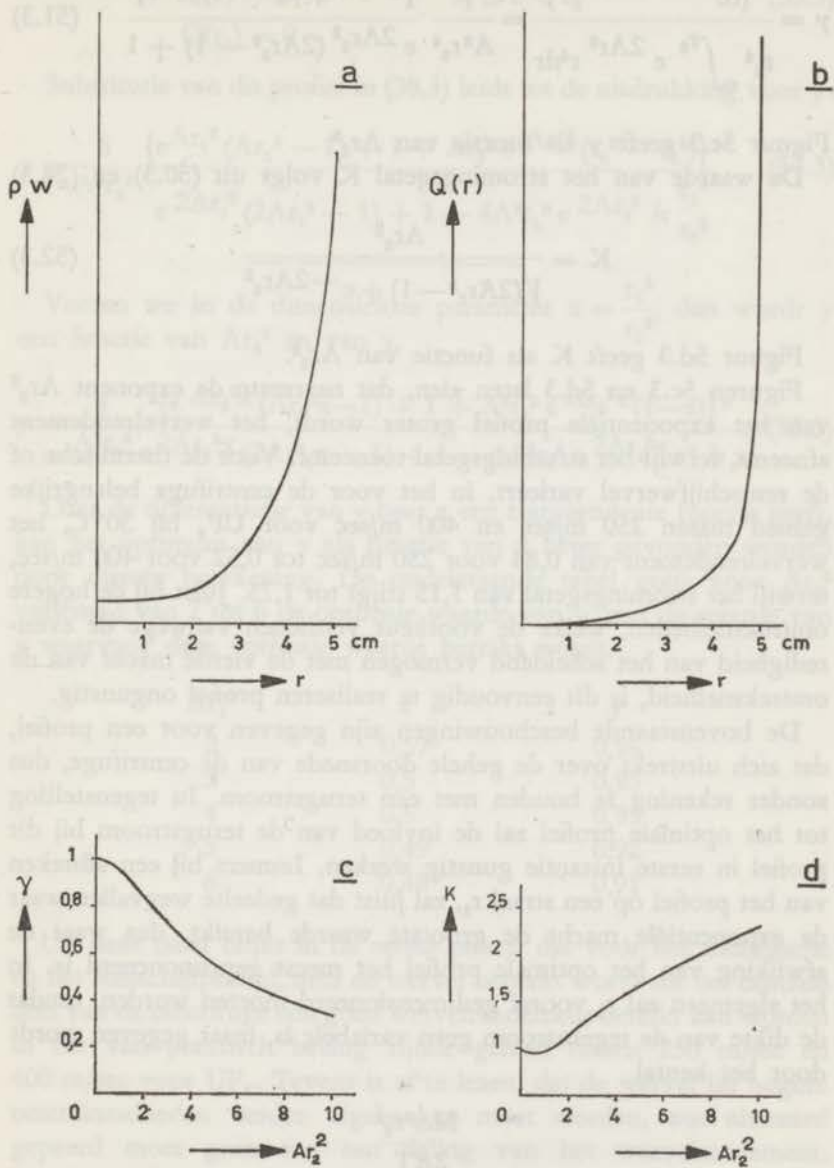
Een belangrijk profiel, dat bij een thermische aandrijving of bij een mechanische aandrijving met behulp van een remschijf bij benadering tot stand zal komen, wordt gegeven door

$$Q(r) \sim r^2 e^{-\frac{M\omega^2 r^2}{4RT}} \quad (49.3)$$

Het massatransport in axiale richting is dus bij dit profiel niet alleen evenredig met het oppervlak, maar ook met de wortel uit de dichtheid. Op kleine straal zal het profiel weinig afwijken van het optimale profiel, op grotere radius zullen evenwel grote afwijkingen optreden, speciaal bij grote waarden van het kental $\frac{M\omega^2 r^2}{2RT}$. Voor de berekening van γ kunnen we beschouwen het profiel

$$Q(r) \sim r^2 e^{-Ar^2} \quad (50.3)$$

waarbij achteraf de waarde Ar^2 gesubstitueerd kan worden. De berekening krijgt aldus geldigheid voor ieder exponentieel profiel.



Figuur 5.3.

$$\gamma = \frac{4 \left\{ \int_0^{r_2} e^{Ar_2^2} r^3 dr \right\}^2}{r_2^4 \int_0^{r_2} e^{2Ar_2^2} r^3 dr} = \frac{8}{A^2 r_2^4} \frac{\{e^{Ar_2^2} (Ar_2^2 - 1) + 1\}^2}{e^{2Ar_2^2} (2Ar_2^2 - 1) + 1} \quad (51.3)$$

Figuur 5c.3 geeft γ als functie van Ar_2^2 .

De waarde van het stromingsgetal K volgt uit (50.3) en (24.3)

$$K = \frac{Ar_2^2}{\sqrt{(2Ar_2^2 - 1) + e^{-2Ar_2^2}}} \quad (52.3)$$

Figuur 5d.3 geeft K als functie van Ar_2^2 .

Figuren 5c.3 en 5d.3 laten zien, dat naarmate de exponent Ar_2^2 van het exponentiële profiel groter wordt, het wervelrendement afneemt, terwijl het stromingsgetal toeneemt. Voor de thermische of de remschijfwervel varieert, in het voor de centrifuge belangrijke gebied tussen 250 m/sec en 400 m/sec voor UF_6 bij $30^\circ C$, het wervelrendement van 0,84 voor 250 m/sec tot 0,52 voor 400 m/sec, terwijl het stromingsgetal van 1,15 stijgt tot 1,75. Juist bij de hogere omtreksnelheden, welke de voorkeur verdienen vanwege de evenredigheid van het scheidend vermogen met de vierde macht van de omtreksnelheid, is dit eenvoudig te realiseren profiel ongunstig.

De bovenstaande beschouwingen zijn gegeven voor een profiel, dat zich uitstrekt over de gehele doorsnede van de centrifuge, dus zonder rekening te houden met een terugstroom. In tegenstelling tot het optimale profiel zal de invloed van de terugstroom bij dit profiel in eerste instantie gunstig werken. Immers bij een afbreken van het profiel op een straal r_1 , zal juist dat gedeelte wegvallen waar de exponentiële macht de grootste waarde bereikt, dus waar de afwijking van het optimale profiel het meest geprononceerd is. In het algemeen zal r_1 vooraf gedimensioneerd moeten worden, omdat de dikte van de tegenstroom geen variabele is, maar gegeven wordt door het kental

$$\frac{M\omega^2 r_2^2}{2RT}$$

Bij een juiste keuze van r_1 ligt het wervelrendement zelfs bij vrij grote waarden van Ar_2^2 nog boven de waarde 0,9.

Het afgebroken exponentiële profiel wordt gegeven door

$$\begin{aligned}
 Q(r) &= r^2 e^{Ar_1^2} & r \leq r_1 \\
 Q(r) &= r_1^2 e^{Ar_1^2} & r_1 \leq r < r_2 \\
 Q(r_2) &= 0
 \end{aligned}
 \tag{53.3}$$

Substitutie van dit profiel in (38.3) leidt tot de uitdrukking voor γ :

$$\gamma = \frac{8}{A^2 r_2^4} \frac{\{e^{Ar_1^2}(Ar_1^2 - 1) + 1 + Ar_1^2 e^{Ar_1^2}(r_2^2 - r_1^2)\}^2}{e^{2Ar_1^2}(2Ar_1^2 - 1) + 1 - 4A^2 r_1^4 e^{2Ar_1^2} \ln \frac{r_1^2}{r_2^2}}
 \tag{54.3}$$

Voeren we in de dimensieloze parameter $x = \frac{r_1^2}{r_2^2}$, dan wordt γ een functie van Ar_2^2 en van x .

$$\gamma = \frac{8}{A^2 r_2^4} \frac{\{e^{Ar_2^2 x}(Ar_2^2 x - 1) + 1 + A^2 r_2^4 e^{Ar_2^2 x}(1 - x)\}^2}{e^{2Ar_2^2 x}(2Ar_2^2 x - 1) + 1 - 4A^2 r_2^4 e^{2Ar_2^2 x} \ln x}
 \tag{55.3}$$

Daar de differentiatie van γ naar x een transcendente functie geeft, kan het optimum van γ als functie van x beter gevonden worden door directe berekening. De onderstaande tabel geeft voor Ar_2^2 variërend van 2 tot 6 de optimale waarde van γ , met de waarde van x waarvoor deze optimale waarde bereikt wordt.

Ar_2^2	x	γ
2	0,57	0,96
3	0,5	0,95
4	0,5	0,93
5	0,49	0,92
6	0,48	0,91

Uit deze tabel blijkt in de eerste plaats, dat voor het thermische en het remschijfprofiel, mits de wervel beperkt wordt tot het centrale deel van de centrifuge een goed wervelrendement bereikt kan worden in het van praktisch belang zijnde gebied tussen 250 m/sec en 400 m/sec voor UF_6 . Tevens is af te lezen, dat de wervel bij hogere omtreksnelheden eerder afgebroken moet worden, wat uiteraard gepaard moet gaan aan een daling van het wervelrendement. Tenslotte zij opgemerkt, wellicht ten overvloede, dat voor waarden van Ar_2^2 , welke kleiner zijn dan 2 ernstig rekening gehouden moet worden met een vermindering van het wervelrendement tengevolge van de verbreding van de terugstroom. Uit dien hoofde zijn bv. de

experimenten, welke door Groth zijn uitgevoerd met argon en neon isotopen, niet maatgevend voor de werking van de centrifuge met uranium-hexafluoride.

§ 3. De tegenstroomwervel

Behalve de wervelsterkte is ook de vorm van de wervel van het grootste belang voor het scheidend vermogen van een centrifuge. Nu is in het algemeen de wervelsterkte een parameter, die van buitenaf geregeld kan worden, waardoor het mogelijk is aan de hand van de experimentele resultaten een gewenste wervelsterkte aan te leggen. Het wervelprofiel evenwel is inhaerent aan de gebezigde methode van wervelopwekking. Corrigerend optreden zal hierbij in het algemeen gepaard gaan met inbouw van radiale schotten, die de wervel moeten beperken tot een bepaalde straal, of andere constructieve maatregelen. Ter duiding van de experimenten, en om de constructie zodanig te ontwerpen dat een goed rendement wordt verkregen, zal het nodig zijn dat het profiel van de wervel bekend is. Tenslotte moet de dikte van de terugstroomlaag bekend zijn, omdat dit een maat is voor de breedte waarover de wervel in de centrifuge stroomt, wat met name voor de exponentiële profielen het rendement sterk beïnvloedt.

Er bestaan, zoals in het eerste hoofdstuk werd gememoreerd, drie verschillende methoden om de wervel in de centrifuge te creëren. De berekening uit de algemene hydrodynamische vergelijkingen van de wervelprofielen bij de drie onderscheiden methoden stuit mathematisch op zeer grote moeilijkheden. In de hydrodynamica is theoretisch betrekkelijk weinig bekend omtrent interne stromingen in roterende lichamen. Vrijwel alle publicaties hebben dan nog betrekking op incompressibele media, terwijl we in de centrifuge te maken hebben met een compressibel gas, en een daaruit voortvloeiende zeer sterke dichtheidsgradiënt in radiale richting. Niettemin zijn aan de hand van de vergelijkingen enkele uitspraken mogelijk over het karakter van de stroming, terwijl in sommige gevallen zelfs het profiel bij benadering aangegeven kan worden.

De vergelijkingen, die de interne stroming in de centrifuge beschrijven, zijn in de eerste plaats de Navier-Stokes vergelijkingen. Beschouwen we alleen maar een stationaire stroming, en houden we verder rekening met het cilindrisymmetrische karakter van de

stroming, dan reduceren de Navier-Stokes vergelijkingen tot het stelsel

$$\rho \left(v_r \frac{\partial v_r}{\partial r} + v_z \frac{\partial v_r}{\partial z} - \frac{v_\varphi^2}{r} \right) = - \frac{\partial p}{\partial r} + \eta \left(\frac{\partial^2 v_r}{\partial r^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial v_r}{\partial r} - \frac{v_r}{r^2} + \frac{\partial^2 v_r}{\partial z^2} \right) + \frac{1}{3} \eta \left(\frac{\partial^2 v_r}{\partial r^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial v_r}{\partial r} - \frac{v_r}{r^2} + \frac{\partial^2 v_r}{\partial r \partial z} \right) \quad (56.3)$$

$$\rho \left(v_r \frac{\partial v_\varphi}{\partial r} + \frac{v_r v_\varphi}{r} + v_z \frac{\partial v_\varphi}{\partial z} \right) = \eta \left(\frac{\partial^2 v_\varphi}{\partial r^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial v_\varphi}{\partial r} - \frac{v_\varphi}{r^2} + \frac{\partial^2 v_\varphi}{\partial z^2} \right) \quad (57.3)$$

$$\rho \left(v_r \frac{\partial v_z}{\partial r} + v_z \frac{\partial v_z}{\partial z} \right) = - \frac{\partial p}{\partial z} + \eta \left(\frac{\partial^2 v_z}{\partial r^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial v_z}{\partial r} + \frac{\partial^2 v_z}{\partial z^2} \right) + \frac{1}{3} \eta \left(\frac{\partial^2 v_r}{\partial z \partial r} + \frac{1}{r} \frac{\partial v_r}{\partial z} + \frac{\partial^2 v_z}{\partial z^2} \right) \quad (58.3)$$

In afwijking van de vorige paragrafen hebben we voor de componenten van de snelheid de notatie v_r , v_φ , v_z gebruikt. Wat betreft de viscositeit η , deze hebben we constant verondersteld.

De continuïteitsrelatie brengt het behoud van massa tot uitdrukking.

$$\frac{\partial}{\partial r} (\rho r v_r) + \frac{\partial}{\partial z} (\rho r v_z) = 0 \quad (59.3)$$

Tenslotte zal het stelsel vergelijkingen compleet gemaakt moeten worden door een specificerende vergelijking, die het verband tussen de druk en de dichtheid vastlegt. In het algemeen zal deze vergelijking de vorm hebben

$$F(p, \rho) = 0 \quad (60.3)$$

waarmee de stroming als „elastisch” wordt gekenmerkt. Bij sommige klassen van stromingen neemt deze vergelijking een zeer eenvoudige vorm aan. Zo is bij incompressibele media ρ constant, terwijl bij isotherme stromingen $\frac{p}{\rho}$, bij adiabatische stromingen $\frac{p}{\rho^\kappa}$ constant is.

Vanwege het compressibele karakter van het medium zal ook de energiebalans en dus het temperatuurveld invloed op de stroming uitoefenen, reden waarom ook de energievergelijking in de beschouwingen betrokken moet worden.

$$\rho c_p \left(v_r \frac{\partial T}{\partial r} + v_z \frac{\partial T}{\partial z} \right) = v_r \frac{\partial p}{\partial r} + v_z \frac{\partial p}{\partial z} + \lambda \left(\frac{\partial^2 T}{\partial r^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial T}{\partial r} + \frac{\partial^2 T}{\partial z^2} \right) + \Phi \quad (61.3)$$

Hierbij is c_p de soortelijke warmte bij constante druk per gram, λ de warmtegeleidingscoëfficiënt. De functie Φ is de dissipatiefunctie, welke functie de hoeveelheid warmte vertegenwoordigt, die per seconde ontstaat tengevolge van de visceuze wrijving. Deze functie bevat uiteraard de viscositeit η als factor, terwijl de functie verder quadratisch is in de snelheidsgradiënten. De door de stroming verrichte mechanische arbeid wordt vertegenwoordigd door de termen in grad p , terwijl het transport van warmte tot uitdrukking wordt gebracht door de termen in het linkerlid voor wat betreft de convectorie, door de termen met λ voor wat betreft de geleiding.

Bij de door Beams gevolgde methode, die schematisch is aangegeven in figuur 6a.3, worden twee dunne concentrische cylinderstromen in tegengestelde richting door de centrifuge gestuwd. Het materiaal wordt toegevoerd en afgevoerd door twee kranen van gaatjes, die tegenover elkaar geboord zijn in de beide einddeksels op twee verschillende diameters. De temperatuur van de rotor wordt zo goed mogelijk constant gehouden in de tijd, terwijl ook temperatuurgradiënten over de rotor zoveel mogelijk vermeden worden. We mogen in eerste instantie daarom aannemen, dat het gas star roteert met de hoeksnelheid van de trommel, waarbij de tangentiële snelheid dus gegeven wordt door $v_\varphi = \omega r$, terwijl de drukopbouw uit de radiale Navier-Stokes vergelijking volgt

$$\frac{\partial p}{\partial r} = \frac{\rho v^2}{r} = \rho \omega^2 r \quad (62.3)$$

Door gebruik te maken van de ideale gaswet

$$p = \frac{RT}{M} \rho \quad (63.3)$$

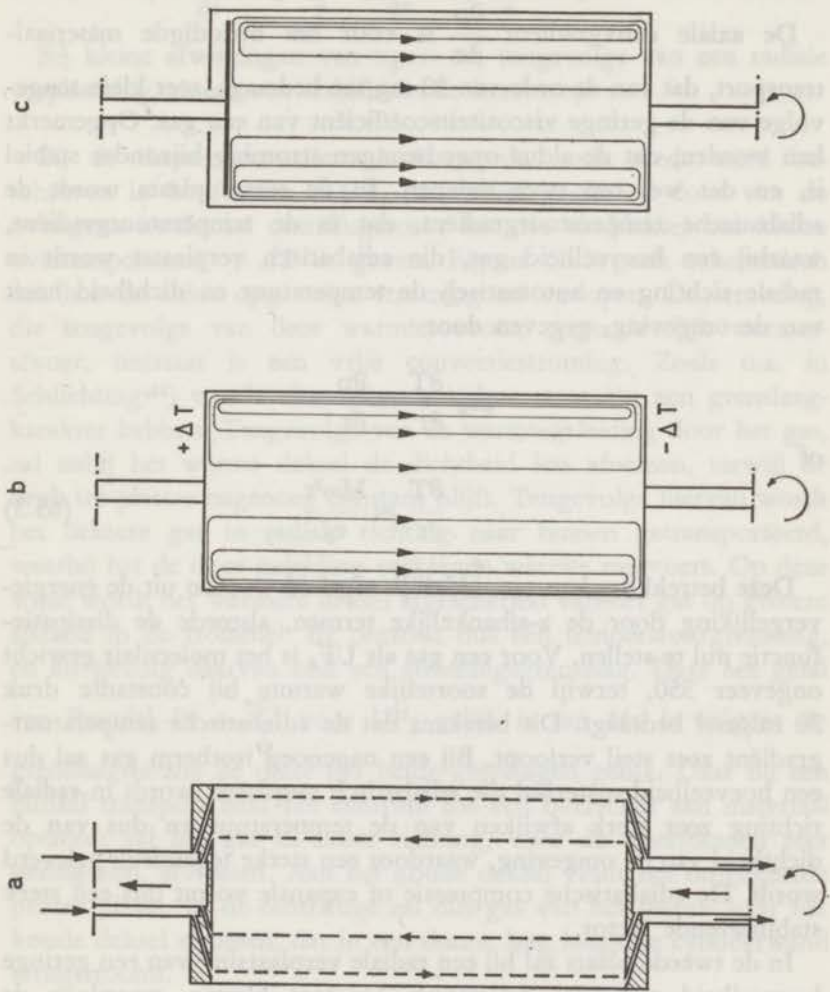


Fig 6.3

wordt de druk als functie van de radius gevonden

$$p(r) = p(0)e^{\frac{M\omega^2 r^2}{2RT}} \quad (64.3)$$

De axiale drukgradiënt $\frac{\partial p}{\partial z}$ is voor het benodigde materiaaltransport, dat van de orde van 30 mg/sec bedraagt, zeer klein tengevolge van de geringe viscositeitscoëfficiënt van een gas. Opgemerkt kan worden, dat de aldus opgedwongen stroming bijzonder stabiel is, en dat wel om twee redenen. In de eerste plaats wordt de adiabatische temperatuurgradiënt, dat is de temperatuurgradiënt, waarbij een hoeveelheid gas, die adiabatisch verplaatst wordt in radiale richting en automatisch de temperatuur en dichtheid heeft van de omgeving, gegeven door

$$\rho c_p \frac{\partial T}{\partial r} = \frac{\partial p}{\partial r}$$

of

$$\frac{\partial T}{\partial r} = \frac{M\omega^2 r}{c_p} \quad (65.3)$$

Deze betrekking kan onmiddellijk afgeleid worden uit de energievergelijking door de z-afhankelijke termen, alsmede de dissipatiefunctie nul te stellen. Voor een gas als UF_6 is het moleculair gewicht ongeveer 350, terwijl de soortelijke warmte bij constante druk 30 cal/mol bedraagt. Dit betekent dat de adiabatische temperatuurgradiënt zeer steil verloopt. Bij een nagenoeg isotherm gas zal dus een hoeveelheid materiaal die adiabatisch verplaatst wordt in radiale richting zeer sterk afwijken van de temperatuur en dus van de dichtheid van de omgeving, waardoor een sterke tegendruk geleverd wordt. De adiabatische compressie of expansie vormt dus een sterk stabiliserende factor.

In de tweede plaats zal bij een radiale verplaatsing van een geringe hoeveelheid materiaal de impuls constant blijven, waardoor de tangentiële snelheid niet meer past bij de omgevingssnelheid. Dit is af te leiden uit de tangentiële Navier-Stokes vergelijking, waarin bij zeer geringe radiale snelheid v_r , in een overigens star roterend gas de viscositeitstermen verwaarloosd kunnen worden, waaruit volgt, dat $v_\varphi = \frac{c}{r}$. Dit betekent dat de centrifugale kracht niet meer past

bij de radius, wat weer een teruggrijvende kracht tengevolge heeft. Dit laatste is ook af te lezen uit de radiale Navier-Stokes vergelijking, waar bij geringe radiale verplaatsingen gesteld kan worden dat

$$\rho v_r \frac{\partial v_r}{\partial r} = \rho \frac{v_\varphi^2}{r} - \frac{\partial p}{\partial r} = \rho \frac{v_\varphi^2}{r} - \rho \omega^2 r.$$

Bij kleine afwijkingen van $v_\varphi = \omega r$, tengevolge van een radiale verplaatsing, treedt een stabiliserende kracht op.

Bij de thermoconvectiemethode wordt, zoals reeds werd beschreven in hoofdstuk I, § 3, de wervel gecreëerd door van de overigens isotherme centrifugerotor het ene einddeksel een kleine overtemperatuur $+\Delta T$ te geven. Figuur 6b.3 geeft schematisch aan hoe de aldus opgewekte stroming zal verlopen. De stroming, die tengevolge van deze warmtetoevoer, respectievelijk warmteafvoer, ontstaat is een vrije convectiestroming. Zoals o.a. in Schlichting³⁴⁾ wordt uiteengezet zal deze stroming een grenslaagkarakter hebben. Tengevolge van de warmtegeleiding door het gas, zal nabij het warme deksel de dichtheid iets afnemen, terwijl de druk ter plaatse nagenoeg constant blijft. Tengevolge hiervan wordt het lichtere gas in radiale richting naar binnen getransporteerd, waarbij het de door geleiding verkregen warmte meevoert. Op deze wijze wordt het warmere deksel afgeschermd van het gas op grotere afstand in de trommel. Er ontstaat dus een temperatuurgrenslaag, en als gevolg daarvan ook een stromingsgrenslaag. Daar het getal van Prandtl, $Pr = \frac{\eta c_p}{\lambda}$ voor UF_6 gelijk is aan één is volgens de grenslaagtheorie de dikte der beide grenslagen gelijk. Daar bij een radiaal transport naar het centrum toe een overschot aan materiaal optreedt zal het gas in axiale richting, waar de weerstanden zeer gering zijn, afvloeien. Aan het koude deksel vindt het omgekeerde proces plaats. In de centrifuge zal dus gas van het warme naar het koude deksel stromen, dat in een dunne laag langs de cylinderwand terugstroomt.

Op grond van deze door de grenslaagtheorie gegeven schematisering is het mogelijk het stelsel vergelijkingen, dat de stroming beschrijft, sterk te vereenvoudigen. We nemen dus aan dat het gas star roteert met de hoeksnelheid van de trommel. Radiaal transport kan uitsluitend plaats vinden in dunne grenslagen aan de einddeksels van de rotor, terwijl in de star roterende kern axiaal transport plaats

vindt, welk transport gevoed respectievelijk afgevoerd wordt via de grenslagen aan de deksels. Zoals gebruikelijk is bij een grenslaagstroming nemen we aan dat de druk over de grenslaag constant is.

Verder kunnen op grond van een onderlinge afschatting der diverse termen verwaarloosd worden: de wrijvings- en warmtegeleidingstermen in radiale richting ten opzichte van die in axiale richting in de grenslaag; de dissipatieve termen in de energievergelijking; en de stromingsvergelijking voor de axiale component. Het stelsel vergelijkingen dat de stroming in de grenslaag beschrijft reduceert hierdoor tot de volgende vergelijkingen

$$\rho v_r \frac{\partial v_r}{\partial r} + \rho v_z \frac{\partial v_r}{\partial z} - \rho \omega^2 r = - \frac{\partial p}{\partial r} + \eta \frac{\partial^2 v_r}{\partial z^2} \quad (66.3)$$

$$\frac{\partial}{\partial r} (\rho r v_r) + \frac{\partial}{\partial z} (\rho r v_z) = 0 \quad (67.3)$$

$$\rho c_p v_r \frac{\partial T}{\partial r} + \rho c_p v_z \frac{\partial T}{\partial z} = v_r \frac{\partial p}{\partial r} + \lambda \frac{\partial^2 T}{\partial z^2} \quad (68.3)$$

De druk wordt gegeven door de druk in de star roterende kern

$$p(r) = p(0) e^{-\frac{M\omega^2 r^2}{2RT}}$$

Een nadere beschouwing laat zien, dat in de eerste plaats de transporttermen in radiale en axiale richtingen in de bewegingsvergelijking zowel als in de energievergelijking van dezelfde orde van grootte zijn. Dit volgt uit de continuïteitsvergelijking. Maken we nu een schatting van de grootteorde der transporttermen ten opzichte van de wrijvingsterm, respectievelijk geleidingsterm, uitgaande van de veronderstelling dat het totale axiale transport in de orde van grootte van 30 mg/sec ligt, dan blijkt dat de verhouding van deze termen ongeveer gelijk aan de grenslaagdikte δ is. Deze wordt volgens de grenslaagtheorie³⁴⁾ gegeven door

$$\delta \approx \sqrt{\frac{\eta}{\rho \omega r^2}} \quad (69.3)$$

Bij een druk van ca. 100 mm Hg aan de wand, de dampspanning van UF₆ bij kamertemperatuur, een omtreksnelheid van 350 m/sec, betekent dit dat op grotere radius de convectietermen verwaarloosbaar klein zijn ten opzichte van de wrijvingsterm, respectievelijk gelei-

dingsterm. Daar de aandrijving op grotere radius de belangrijkste bijdrage levert, kunnen we voor een eerste orde oplossing volstaan met het eenvoudiger stelsel vergelijkingen.

$$-\rho\omega^2 r = -\frac{\partial p}{\partial r} + \eta \frac{\partial^2 v_r}{\partial z^2} \quad (70.3)$$

$$\frac{\partial}{\partial r} \rho r v_r + \frac{\partial}{\partial z} \rho r v_z = 0 \quad (71.3)$$

$$v_r \frac{\partial p}{\partial r} + \lambda \frac{\partial^2 T}{\partial z^2} = 0 \quad (72.3)$$

We beschouwen nu de warme wand, waarvan de temperatuur T_w groter is dan de temperatuur T_∞ van het gas in de trommel. De uitzettingscoëfficiënt β van het gas stellen we gelijk aan $\frac{1}{T_\infty}$, wat bij kleine temperatuurverschillen geoorloofd is. Tenslotte voeren we de volgende nomenclatuur in.

$$\Delta T = T_w - T_\infty \quad (73.3)$$

$$\theta = \frac{T - T_\infty}{\Delta T} \quad (74.3)$$

Daar $\frac{\partial p}{\partial r}$ gegeven wordt door de dichtheid van het gas bij een temperatuur T_∞ , wordt de aandrijvende kracht in de grenslaag geleverd door het dichtheidsverschil tussen het gas in de grenslaag en in de star roterende kern.

$$\eta \frac{\partial^2 v_r}{\partial z^2} = \frac{\rho\omega^2 r \Delta T}{T} \cdot \theta \quad (75.3)$$

$$\frac{\partial}{\partial r} \rho r v_r + \frac{\partial}{\partial z} \rho r v_z = 0 \quad (76.3)$$

$$\rho\omega^2 r v_r + \lambda \Delta T \frac{\partial^2 \theta}{\partial z^2} = 0 \quad (77.3)$$

De index bij de temperatuur is vervallen, daar we verder dichtheid en temperatuur over de grenslaag constant nemen. Differentiëren

we (75.3) tweemaal naar z en substitueren we vervolgens $\frac{\partial^2 \theta}{\partial z^2}$ in (77.3) dan vinden we de gewone differentiaalvergelijking.

$$\frac{d^4 v_r}{dz^4} + a^4 v_r = 0 \quad (78.3)$$

waarbij
$$a = \sqrt[4]{\frac{\rho^2 \omega^4 r^2}{\lambda \eta T}} \quad (79.3)$$

De randvoorwaarden voor deze vergelijking zijn

$$\text{voor } z = 0: \quad v_r = 0 \quad \frac{d^2 v_r}{dz^2} = \frac{\rho \omega^2 r \Delta T}{\eta T}$$

$$\text{voor } z = \infty: \quad v_r = 0 \quad \frac{d^2 v_r}{dz^2} = 0$$

De oplossing luidt dan

$$v_r = -\Delta T \sqrt{\frac{\lambda}{\eta T}} e^{-\frac{a}{\sqrt{2}} z} \sin \frac{a}{\sqrt{2}} \quad (80.3)$$

Deze oplossing is gelijklopend aan die welke door Martin¹⁹⁾ was gevonden. De oplossing van Martin resulteerde uit een beschouwing over de vrije convectie langs een wand in een sterk gravitatieveld, waarbij de verkregen resultaten getransformeerd werden voor een centrifugaal veld. Onder gebruikmaking van de continuïteitsrelatie (76.3) vinden we het axiale transport als functie van de radius door integratie van het radiale transport in de grenslaag over de grenslaagdikte.

$$\begin{aligned} 2\pi Q(r) &= \int_0^r 2\pi \rho r v_z dr = - \int_0^\infty 2\pi \rho r^2 v_r dz = \\ &= \frac{2\pi \Delta T}{\omega \sqrt{2}} \sqrt[4]{\frac{\lambda^3}{\eta T}} \cdot \sqrt{\rho r} \text{ g/sec} \quad (81.3) \end{aligned}$$

Speciaal in het hart van de centrifuge zal deze oplossing onjuist zijn, wat kan blijken uit de randvoorwaarden voor v_z als r naar nul nadert.

$$\lim_{r \rightarrow 0} r \frac{\partial v_z}{\partial r} = 0$$

Dit betekent dat de stromingsfunctie voor het middengedeelte evenredig is met r^2 en evenredig met de wortel uit de dichtheid. Representatief voor de stromingsfunctie van een thermoconvectiewervel achten wij daarom

$$Q(r) \sim r^2 \sqrt{\rho} \quad (82.3)$$

De benodigde temperatuurverschillen liggen in de orde van enkele graden Celsius.

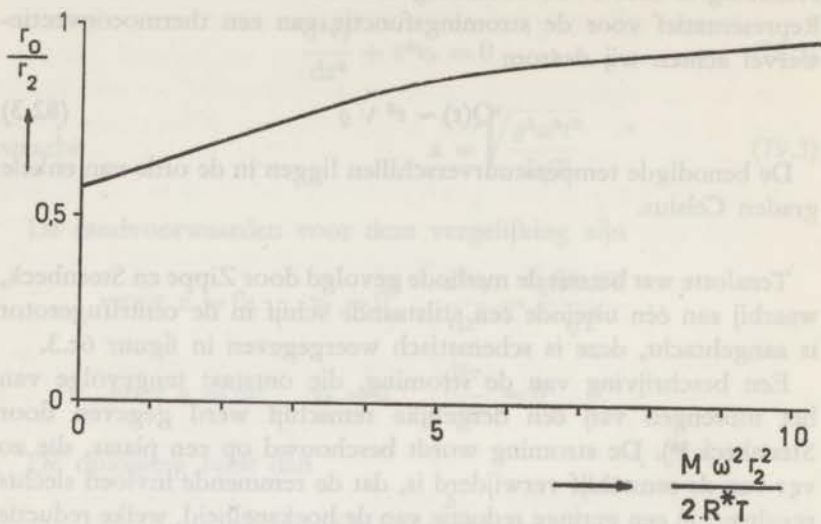
Tenslotte wat betreft de methode gevolgd door Zippe en Steenbeck, waarbij aan één uiteinde een stilstaande schijf in de centrifugerotor is aangebracht, deze is schematisch weergegeven in figuur 6c.3.

Een beschrijving van de stroming, die ontstaat tengevolge van het inbrengen van een dergelijke remschijf werd gegeven door Steenbeck²⁴). De stroming wordt beschouwd op een plaats, die zo ver van de remschijf verwijderd is, dat de remmende invloed slechts resulteert in een geringe reductie van de hoeksnelheid, welke reductie een functie is van de radiale en axiale coördinaat. Als gevolg daarvan is ook een geringe correctie nodig op de ideale exponentiële drukopbouw, welke correctie eveneens een functie is van de radiale en axiale coördinaat. Tengevolge van deze kleine afwijkingen van de onverstoorde evenwichtstoestand vindt er een gering radiaal transport en een axiaal transport plaats. De berekening van Steenbeck laat zien, dat bij deze veronderstellingen, speciaal bij grote waarden van het kental $\frac{M\omega^2 r^2}{2RT}$, een profiel ontstaat, dat weinig afwijkt van het ideale profiel.

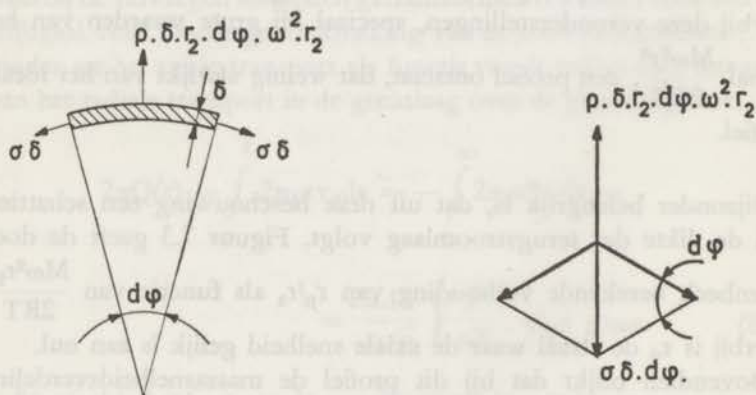
Bijzonder belangrijk is, dat uit deze beschouwing een schatting van de dikte der terugstroomlaag volgt. Figuur 7.3 geeft de door Steenbeck berekende verhouding van r_0/r_2 als functie van $\frac{M\omega^2 r_2^2}{2RT}$.

Hierbij is r_0 de straal waar de axiale snelheid gelijk is aan nul.

Bovendien blijkt dat bij dit profiel de massasnelheidsverdeling naar de wand van de centrifuge verschoven is ten opzichte van de gewone snelheidsverdeling. Dit ondersteunt de argumenten, die wij in de voorgaande paragraaf aanvoerden voor de veronderstelling dat de terugstroom als een δ -functie aangenomen mag worden langs de cylinderwand van de centrifuge.



Figuur 7.3.



Figuur 8.3.

§ 4. Mechanische beperkingen

Uit de uitdrukking (11.3) voor het maximale scheidend vermogen van een centrifuge, of voor de maximale verandering van de mengentropie (12.3), blijkt dat er een premie staat op hoge omtreksnelheden, en wel evenredig met de vierde macht, alsmede op een grote lengte, en wel evenredig met de lengte. De afleiding van deze maximale prestatie laat zien, dat het scheidend vermogen en eveneens de verandering der mengentropie, evenredig zijn met de inhoud der centrifuge, en het kwadraat der optimale concentratiegradiënt in radiale richting. Deze concentratiegradiënt, welke veroorzaakt wordt door de centrifugale kracht is, zoals te verwachten is evenredig met $\omega^2 r$. De integratie over het volume maakt het scheidend vermogen echter homogeen in ω en r . Dit is de reden dat voor een hoog scheidend vermogen niet de voorkeur gegeven behoeft te worden aan hoge hoeksnelheden, doch veeleer aan hoge omtreksnelheden.

De omtreksnelheid van een centrifuge wordt vrijwel uitsluitend bepaald door de maximaal toelaatbare specifieke spanning in de cylinderwand. De specifieke spanning is de spanning σ gedeeld door het soortelijk gewicht ρ .

Uit figuur (8.3) is af te lezen, dat de centrifugale kracht uitgeoefend op een sector van een dunwandige cylinder met straal r_2 , wanddikte δ en een hoogte van 1 cm gelijk doch tegengesteld moet zijn aan de resultante van de tangentiële spanningen.

$$\rho \delta r_2 d\varphi \omega^2 r_2 = \delta \sigma d\varphi$$

Hieruit volgt dat het kwadraat van de omtreksnelheid gelijk is aan de specifieke spanning

$$\omega^2 r_2^2 = \frac{\sigma}{\rho} \quad (83.3)$$

Het verdient dus aanbeveling als constructiemateriaal te kiezen een materiaal met hoge toelaatbare trekspanning en een laag soortelijk gewicht.

Naast de omtreksnelheid komt als tweede mechanisch te kiezen grootheid de lengte in aanmerking. Ook hier echter zijn de beperkingen met een eenvoudige beschouwing aan te geven. Een dunwandige cylinder heeft een spectrum van eigen frequenties. De voor rotatie belangrijke trillingen zijn de buigingstrillingen, daar bij

rotatiefrequenties, die gelijk zijn aan een eigen frequentie van de buigingstrillingen de doorbuiging van de cylinder exponentieel met de tijd kan verlopen, indien niet de passende maatregelen worden genomen. Deze opslingering bij het z.g. kritische toerental wordt zeer exact behandeld door Biezeno en Grammel³⁵).

De kritische toerentallen van een cilindervormige rotor worden gegeven door

$$(\omega_n)_{\text{krit.}} = \frac{c_n^2}{l^2} \sqrt{\frac{EI}{\rho F}} \quad (84.3)$$

De index n heeft betrekking op de orde van de buigtrilling; c_n is de eigenwaarde, welke een functie is van de randvoorwaarden. Veronderstellen we dat de rotor zo slap gelagerd is, dat de stijfheid van deze lagering verwaarloosd kan worden, en dat tevens de rotor niet belast wordt door extra massa's aan de uiteinden, dan spreken we van een vrij-vrij oplegging. Voor dit geval wordt de eigen waarde c_n gegeven door $n\pi$. E is de elasticiteitsmodulus, ρ het soortelijk gewicht van het rotormateriaal. F is de oppervlakte-doorsnede, terwijl I het geometrische traagheidsmoment is, beiden bepaald voor een doorsnede loodrecht op de as. Voor een dunwandige cylinder met inwendige straal r_1 en uitwendige straal r_2 wordt het quotiënt van I en F gegeven door

$$\frac{I}{F} = \frac{\frac{1}{4} \pi (r_2^4 - r_1^4)}{\pi (r_2^2 - r_1^2)} \approx \frac{r_2^2}{2}$$

Substitueren we dit in de uitdrukking voor het kritisch toerental, dan volgt hieruit

$$(\omega_n)_{\text{krit.}} = \frac{n^2 \pi^2 r_2}{l^2} \sqrt{\frac{E}{2\rho}} \quad (85.3)$$

en voor de bijbehorende omtreksnelheid

$$(v_{\text{omtrek}})_{\text{krit.}} = \frac{n^2 \pi^2 r_2^2}{l^2} \cdot \sqrt{\frac{E}{2\rho}} \quad (86.3)$$

Beperken we ons tot z.g. onderkritische rotoren, dan volgt hieruit dat bij gegeven omtreksnelheid de verhouding van diameter en lengte vastligt. De keuze der diameter wordt gemaakt op grond van mechanische overwegingen, waardoor ook de lengte van de centrifuge vastligt.

Het is uiteraard mogelijk met bovenkritische rotoren te werken, wat o.a. door Beams werd gedaan. Dit betekent echter dat aanzienlijk hogere eisen aan de mechanische constructie gesteld worden.

Tenslotte willen we nog wijzen op de uit mechanische overwegingen gestelde maximaal toelaatbare druk in de centrifuge. Daar de meeste materialen bij toenemende temperatuur in sterkte afnemen, verdient het aanbeveling de rotortemperatuur zo laag mogelijk te houden. De dampspanning van UF_6 bij kamertemperatuur is ca. 100 mm Hg, wat dus de maximale druk aan de wand mag zijn, indien de rotor de kamertemperatuur heeft. Ook van vele andere zware gassen ligt de dampspanning betrekkelijk laag bij kamertemperatuur.

Dit houdt overigens geen beperking in van het scheidend vermogen of de scheidingsfactor van een centrifuge, omdat deze functies onafhankelijk zijn van de holdup. De oorzaak hiervan is dat het produkt ρD in eerste orde onafhankelijk is van de dichtheid.

HOOFDSTUK IV

DISCUSSIE

Aan de hand van de theorie zullen enkele aspecten belicht worden van de door verschillende onderzoekers verrichte scheidingsexperimenten. Daar de experimenten van Beams^{16, 17)} vergeleken zijn met een volledig adequate theorie zullen deze buiten beschouwing blijven.

In verschillende publicaties^{22, 23)} geeft Groth een overzicht over de met UF_6 verrichte scheidingsexperimenten in een tegenstroomcentrifuge. De gebruikte methode voor de wervelopwekking is de thermoconvectiemethode, waarvoor in hoofdstuk III, § 3, de vormfactor γ berekend werd. Allereerst werd experimenteel bepaald de maximale verrijkingfactor als functie van het temperatuurverschil ΔT , van de deksels ten opzichte van de gemiddelde rotor- en gastemperatuur. Daar bij variatie van ΔT de wervelsterkte wordt gevarieerd, betekent dit dat experimenteel de wervelsterkte wordt bepaald waarbij $m = 1$ is. Volgens (30.3) en (32.3) wordt de verrijking dan gegeven door

$$\frac{R(l)}{R(o)} = e^{(2\varepsilon_o)_{\max} \sqrt{\gamma} \cdot l}$$

waarbij

$$(2\varepsilon_o)_{\max} = \frac{\Delta M \omega^2 r_2^2}{2RT} \cdot \frac{1}{r_2 \sqrt{2}}$$

Experimenten werden gedaan bij twee verschillende omtreksnelheden, en wel 252 m/sec en 280 m/sec. De lengte van de rotor bedroeg 63,5 cm, de diameter 13,4 cm. De gemiddelde temperatuur bedroeg 37° C. Voor de theoretisch maximale scheidingsfactoren bij de twee verschillende snelheden vinden we respectievelijk 1,27 en 1,35. Experimenteel werd gevonden 1,19 en 1,22. De vormfactor γ welke hieruit volgt is 0,9 voor de lagere omtreksnelheid en 0,8 voor de hogere omtreksnelheid. Uit figuur (5c.3) volgt dat voor een exponentieel profiel met een waarde van $Ar_2^2 = 2,5$ de vormfactor ongeveer 0,8 bedraagt. De waarde van Ar_2^2 volgt uit het feit dat bij 250 m/sec het kental $\frac{M\omega^2 r_2^2}{2RT} = 5$ is, terwijl het thermische profiel

evenredig met de wortel uit de dichtheid is. Evenwel volgt uit figuur 7.3, dat bij deze omtreksnelheid de dikte van de terugstroomlaag gegeven wordt door $\frac{r_0}{r_2} \approx 0,8$, wat voor $\left(\frac{r_0}{r_2}\right)^2$ de waarde 0,64 betekent. Dit zou betekenen dat volgens (55,3) de vormfactor weer nagenoeg gelijk aan één zou worden. Bij totale reflux is de verrijking van de centrifuge dus kleiner dan theoretisch verwacht kan worden.

Nu is o.a. uit metingen aan thermodiffusiekolommen bekend, dat de discrepantie tussen de theoretische en de experimentele waarde van de verrijkingsfactor bij totale reflux vrij groot kan zijn, terwijl uit metingen in de niet stationaire toestand blijkt, dat het netto materiaaltransport van de kolom gelijk is aan de theoretisch berekende waarde. Door Dickel³⁶⁾ werd aangetoond dat kleine verstoringen elementen op het transport een veel geringer invloed hebben dan op de verrijking bij totale reflux. De argumentatie van Dickel is toe te passen op alle tegenstroomkolommen die werken in de gasfase.

Vervolgens werd door Groth bij de gevonden optimale temperatuurverschillen bij totale reflux, het scheidend vermogen als functie van de aftap gemeten. Het maximale scheidend vermogen wordt gevonden bij een aftap van ongeveer 6,5 mg/sec. Uit (37.3) blijkt dat de optimale aftapstroom een functie is van de wervelsterkte m .

$$(P)_{opt.} = \varrho D (\sqrt{5}-1) \frac{2\pi r_2^2}{1} (1+m^2) \text{ mg/sec.}$$

Hieruit volgt dat de experimenteel gevonden wervelsterkte m ongeveer gelijk aan 2 is. Dit betekent dat volgens (36.3) het scheidend vermogen 80 % moet bedragen van het theoretisch maximaal scheidend vermogen, indien de vormfactor γ gelijk aan één wordt gesteld. De factor 0,8 voor het scheidend vermogen werd hierbij niet in rekening gebracht. Experimenteel werd gemeten een rendement van 75 %. De waarde van γ bedraagt dus experimenteel 0,95, wat in goede overeenstemming is met de theoretisch verwachte waarde.

Hierbij willen we opmerken, dat Groth het scheidend vermogen als functie van de aftap bepaald heeft, niet door een reële doorstroming van gas door de centrifuge, maar uit tijdsafhankelijke metingen van de verrijkingsfactor bij totale reflux. Uit de instelnelheid bij een totale refluxmeting kan de stationaire verrijking bij produktie geschat worden. Daarom kan de factor 0,8 in de uit-

drukking voor het scheidend vermogen verwaarloosd worden. Immers bij totale reflux is de verrijdingsfactor, dus ook de insteltijd onafhankelijk van de cascadevorm. Dat de waarde van γ geschat uit de insteltijdmetingen in goede overeenstemming is met de theorie, terwijl de verrijking achterblijft bij de theoretische waarde, is in overeenstemming met analoge experimenten met thermodiffusiekolommen.

In de tweede plaats valt het op, dat de metingen van de insteltijd gedaan zijn bij een temperatuurverschil, dat voor de verrijking bij totale reflux de maximale waarde gaf. Dit houdt in, dat de wervelsterkte gelijk aan één moet zijn. Uit metingen van de insteltijd vinden we echter een waarde van m , welke gelijk aan twee is. Dit is in overeenstemming met de beschouwingen van Dickel³⁶⁾ en ook van Furry, Jones en Onsager¹⁴⁾ betreffende thermodiffusiekolommen. Uit de insteltijdmetingen volgt voornamelijk de transportcapaciteit van de kolom, waartoe ook eventuele parasitaire wervels kunnen bijdragen. Voor de uiteindelijke verrijking bij totale reflux zijn deze parasitaire wervels een constante verliespost.

Zippe²⁷⁾ heeft experimenten gedaan met UF_6 bij een omtreksnelheid van 350 m/sec. De nuttige lengte van de rotor bedroeg 30,5 cm, de diameter 7,4 cm. De gemiddelde temperatuur was 350° K. Bepaald werd de verrijdingsfactor als functie van de aftap, waaruit het experimentele scheidend vermogen werd berekend.

Uit de curve van het scheidend vermogen tegen de aftap blijkt, dat de optimale aftap bij 3,5 mg/sec ligt, wat met behulp van (37.3) een waarde voor m gelijk aan 1,7 geeft. Het experimenteel gemeten scheidend vermogen bedroeg 30 % van het maximale scheidend vermogen. Uit (36.3) volgt dan dat de waarde van γ bij dit experiment ongeveer 0,5 bedraagt.

De verrijdingscurve als functie van de aftap laat zien, dat de verrijking nagenoeg naar nul nadert bij zeer kleine aftap. Als functie van de aftap wordt de verrijking eerst groter, om vervolgens een maximale waarde te bereiken en daarna weer af te nemen. Dit wijst er op, dat Zippe de aftap heeft gevarieerd, door de holdup van de trommel te variëren. De wervelsterkte zal ongeveer evenredig zijn met de wortel uit de holdup bij een remschijfstroming. Dit betekent dat bij geringe holdup de wervelsterkte naar nul nadert, waardoor ook de verrijking naar nul nadert. De verrijgingscurve kan dus niet vergeleken worden met de curven uit fig. 2.3.

De lage waarde van γ zal te wijten zijn aan de werking van de stilstaande schijf die bij zo'n geringe lengtediameterverhouding van de rotor een integrale afremming van het gas in de trommel tengevolge heeft. Dit moet ook de reden zijn dat het maximale rendement gevonden wordt bij $m = 1,7$. De invloed van de remschijf zal bij hogere vullingen, dus grotere wervelsterkten, relatief groter zijn. Immers, de wervel wordt gecreëerd door afremming van het gas.

SAMENVATTING

In dit proefschrift wordt behandeld de scheiding van zware isotopen, meer in het bijzonder de uraniumisotopen, met behulp van centrifuges.

In hoofdstuk I wordt een historisch overzicht gegeven van het werk, dat op dit gebied werd verricht, zowel experimenteel als theoretisch. In 1919 werd door Lindemann en Aston reeds gewezen op de mogelijkheid isotopen te scheiden door gebruik te maken van het gravitatieveld of van een centrifugaal veld. Vrij spoedig daarna werden de eerste experimenten verricht om het elementair effect aan te tonen. Deze experimenten werden door Beams met succes afgesloten in 1938. Beams onderkende ook reeds, dat de capaciteit van een centrifuge evenredig moest zijn met de lengte, reden waarom hij een in vacuum roterende buisvormige centrifuge construeerde.

De verdere experimentele ontwikkeling van de centrifuge werd voor een groot deel bepaald door de theorie der isotopenscheiding in het algemeen en van de isotopenscheiding met behulp van centrifuges in het bijzonder, welke theorie door een groep theoretici onder leiding van Cohen werd ontwikkeld.

De theoretische beschrijving van het scheidingsmechanisme in een centrifuge leidde tot de conclusie, dat de tegenstroomcentrifuge het meest geschikt was voor de scheiding van isotopen op grote schaal. De experimenten na 1945 waren dan ook voornamelijk gericht op de realisering van dit type centrifuge.

In hoofdstuk II van dit proefschrift worden enkele aspecten van de cascadetheorie belicht. Daar deze theorie veelal onbekend is, werd in paragraaf één een samenvatting gegeven van de door Cohen ontwikkelde theorie der ideale cascade. De fundamentele begrippen, scheidend vermogen, scheidingscapaciteit en waardefunctie worden hierbij nader toegelicht. In paragraaf 2 hebben wij getracht de ideale cascade te beschouwen vanuit een thermodynamisch standpunt, waarbij – zoals te verwachten is – de mengentropie van een ideaal

mengsel als de bepalende grootheid optreedt. Afgeleid wordt, dat bij een ideale cascade, per trap, de maximale verandering der meng-entropie bereikt wordt.

Dat in de cascadetheorie de algemeen gangbare thermodynamische functies vervangen worden door de waardefunctie, vindt zijn oorsprong in het feit, dat de waarde van een scheidingselement in de cascade onafhankelijk moet zijn van de plaats in de cascade, dus van de concentratie van de voeding van het element.

Vervolgens hebben we naar analogie van de thermodynamische potentiaal de scheidingspotentiaal ingevoerd, waardoor het mogelijk is het scheidend vermogen van een scheidingselement eenvoudig te berekenen. Tevens biedt dit wellicht de mogelijkheid de scheiding van een meer-componenten systeem te beschouwen.

Tenslotte wordt in de vierde paragraaf van dit hoofdstuk de theorie der rechthoekige cascade verder ontwikkeld. Speciale aandacht wordt geschonken aan een cascade, die ongeveer in het midden gevoed wordt, terwijl aan beide einden nagenoeg gelijke fracties worden afgetapt. Deze vorm, welke nog niet eerder werd behandeld, is van belang voor een kolom. Aangetoond wordt, dat het scheidend vermogen van een dergelijke kolom 80 % bedraagt van het scheidend vermogen van een kolom, waarbij de circulatiestroom in de kolom deel uitmaakt van de circulatiestroom in de cascade.

In het derde hoofdstuk wordt de theorie behandeld van de tegenstroomcentrifuge. De vergelijking, die het verloop van de concentratie in een centrifuge beschrijft, wordt aan een nauwkeurige analyse onderworpen. Bij vele auteurs vindt een verwisseling plaats tussen een barycentrische en een moleculaire beschrijving, welke onnauwkeurigheid voor lichte isotopen of voor een mengsel van twee in massa zeer verschillende componenten, niet geoorloofd is. De in het vorige hoofdstuk afgeleide uitdrukkingen voor scheidend vermogen en scheidingsfactor van een kolom worden dan toegepast op een tegenstroomcentrifuge.

Vervolgens wordt de invloed van de vorm van de tegenstroomwervel op het scheidend vermogen en de scheidingsfactor behandeld. Aangetoond wordt, dat ook profielen, die sterk afwijken van het optimale profiel, een goed rendement kunnen hebben, mits de wervel beperkt wordt tot ongeveer 0,7 van de diameter van de rotor van de centrifuge.

Enkele hydrodynamische aspecten van de tegenstroomwervel worden nader toegelicht. Speciaal voor de eenvoudig te realiseren thermoconvectiewervel wordt berekend hoe in eerste orde het wervelprofiel zal verlopen als functie van de radius.

Het derde hoofdstuk wordt besloten met enkele zeer elementaire beschouwingen omtrent de beperkingen, die aan een centrifuge worden gesteld.

In het vierde hoofdstuk worden de experimenten van Groth en van Zippe besproken aan de hand van de in de vorige hoofdstukken ontwikkelde theorie. Hoewel theorie en experiment een grote discrepantie vertonen bij totale reflux, is de overeenstemming wat betreft het scheidend vermogen goed te noemen.

LITERATUUROPGAVE

- 1) F. A. Lindemann and F. W. Aston, *Phil. Mag.*, No. 6, 37, 523 (1919).
- 2) R. S. Mullikan, *J. Am. Chem. Soc.* 44, 1033, 1729 (1922).
- 3) R. S. Mullikan, *J. Am. Chem. Soc.* 45, 1592 (1923).
- 4) J. Joly and J. H. J. Pool, *Phil. Mag.*, No. 6, 39, 372 (1920).
- 5) J. W. Beams and E. G. Pickels, *Rev. Sci. Instruments* 6, 299 (1935).
- 6) J. W. Beams, *Rev. Mod. Phys.* 10, 245 (1938).
- 7) J. W. Beams, *Rev. Sci. Instr.* 9, 413 (1938).
- 8) J. W. Beams and C. Skarström, *Phys. Rev.* 56, 266 (1939).
- 9) R. F. Humphreys, *Phys. Rev.* 56, 684 (1939).
- 10) J. W. Beams, *Phys. Rev.* 55, 591 (1939).
- 11) H. C. Urey, *Reports on Progress in Physics* VI, 72 (1939).
- 12) A. Bramley and K. Brewer, *Science* 92, 427 (1940).
- 13) H. Martin und W. Kuhn, *Z. Physik. Chem. A* 189, 219 (1940).
- 14) W. H. Furry, R. Clark Jones and L. Onsager, *Phys. Rev.* 55, 1083 (1939).
- 15) K. Cohen, *The Theory of Isotope Separation as Applied to the Large-Scale Production of ^{235}U* , McGraw - Hill Book Company, Inc. (1951).
- 16) J. W. Beams, A. C. Hegg and E. V. Murphree, TID - 5230, U.S. Atomic Energy Commission (1951).
- 17) J. W. Beams, L. B. Snoddy and A. R. Kulthau, U.N. Peaceful Uses of Atomic Energy, Second International Conference (1958).
- 18) K. Beyerle, W. Groth, P. Harteck, H. Jensen, u.a., *Monographien zu Angew. Chem. und Chem. Ing. - Techn.* No. 59.
- 19) H. Martin, *Z. f. Elektrochemie* 54, 120 (1950).
- 20) H. G. Hertz und E. Nann, *Z. f. Naturforschung* 10a, 170 (1955).
- 21) W. Groth, E. Nann und K. H. Welge, *Z. f. Naturforschung* 12a, 81 (1957).
- 22) K. Beyerle und W. Groth u.a., *Proceedings of the Symposium on Isotope Separation*, North-Holland Publ. Comp. (1958).
- 23) W. Groth, K. Beyerle, E. Nann und K. H. Welge, U.N. Peaceful Uses of Atomic Energy, Second International Conference (1958).
- 24) M. Steenbeck, *Kernenergie, Sonderausgabe* (1958).
- 25) G. Zippe, J. W. Beams, A. R. Kulthau, ORO - 210, U.S. Atomic Energy Commission (1958).
- 26) G. Zippe, ORO - 202, U.S. Atomic Energy Commission (1959).
- 27) G. Zippe, ORO - 216, U.S. Atomic Energy Commission (1959).
- 28) G. Zippe, ORO - 315, U.S. Atomic Energy Commission (1960).

- 29) S. R. de Groot, Thermodynamics of Irreversible Processes, North-Holland Publ. Comp. (1961).
- 30) J. Meixner und H. G. Reik, Thermodynamik der irreversiblen Prozesse, Handbuch der Physik, Band III/2, Springer Verlag (1959).
- 31) J. O. Hirschfelder, C. F. Curtiss and R. B. Bird, Molecular Theory of Gases and Liquids. John Wiley & Sons, Inc., New York (1954).
- 32) J. Los and J. Kistemaker, Proceedings of the Symposium on Isotope Separation, North-Holland Publ. Comp. (1958).
- 33) K. Cohen and I. Kaplan, A-101, U.S. Atomic Energy Commission (1942).
- 34) H. Schlichting, Boundary Layer Theory, Pergamon Press Ltd, London (1955).
- 35) C. B. Biezeno und R. Grammel, Technische Dynamik II. Springer Verlag, Berlin (1953).
- 36) G. Dickel, Proceedings of the International Symposium on Isotope Separation, North-Holland Publ. Comp., Amsterdam (1958).

LIJST VAN GEBRUIKTE SYMBOLEN

F	voeding van een cascade of een kolom.
P	product van een cascade of een kolom.
W	afval van een cascade of een kolom.
L	in een cascade de voeding van een trap; in een kolom de sterkte van de tegenstroomwervel.
L*	voeding van een trap in een ideale cascade.
L ₀	de sterkte van de tegenstroom in een kolom, waarbij zonder productie de grootste verrijking optreedt.
G	voeding van een element.
θ	verrijkte fractie van de voeding van een element.
s	nummer van een trap in een cascade.
n	aantal elementen.
n ₁	aantal g mol van één component.
N	molaire concentratie van één component in een binair mengsel.
N', N''	molaire concentratie van de verrijkte respectievelijk verarmde fractie van een element.
R	molenbreuk van een binair mengsel.
α	scheidingsfactor van een element.
ε	voor een infinitesimaal element is $\varepsilon = \alpha - 1$; in een kolom is $\varepsilon = \frac{c_1}{2c_5}$
α_0	elementaire scheidingsfactor van een separatieproces.
V(N)	waardefunctie.
U	waarde van gesepareerd materiaal.
ΔU	scheidingscapaciteit van een cascade.
δU	scheidend vermogen van een element of een kolom.
V'(N)	elementaire waardefunctie.
u	scheidingspotentiaal.
S	entropie.
s*	entropie per eenheid van massa.
Φ	entropie stroomdichtheid.
σ	entropieproductie per volume-eenheid.
μ	thermodynamische potentiaal.
R	algemene gasconstante.
c ₁ , c ₂ , c ₃ , c ₅	kolom parameters.

ψ	gereduceerde productstroom van een kolom.
ε_0	maximale waarde van ε als functie van de werfelsterkte in een kolom.
m	gereduceerde werfelsterkte in een kolom.
P_0	eenheid van productstroom.
z	lengtecoördinaat van een kolom.
l	lengte van een kolom.
J	barycentrische diffusie stroomdichtheid.
J^m	moleculaire diffusie stroomdichtheid.
v	gemiddelde massasnelheid van een mengsel.
v^m	gemiddelde deeltjesnelheid van een mengsel.
v_1	gemiddelde snelheid van de deeltjes van een component.
ρ	dichtheid.
M	moleculair gewicht.
ΔM	absolute verschil van de moleculairgewichten van de componenten van een binair mengsel.
p	druk.
T	absolute temperatuur.
D_{12}	diffusiecoëfficiënt.
η	viscositeitscoëfficiënt.
λ	warmtegeleidingscoëfficiënt.
c_p	soortelijke warmte bij constante druk.
r, z, φ	cylinder coördinaten.
u, v, w	respectievelijk radiale, tangentiële en axiale component van de snelheid.
ω	hoeksnelheid.
γ	vormfactor.
$Q(r)$	stromingsfunctie.
K	stromingsgetal.

SUMMARY

The subject of this thesis is the separation of heavy isotopes by means of a centrifuge.

In chapter I the experimental and theoretical work, that has been done on centrifuges, is reviewed. After the original suggestion of Lindemann and Aston in 1919, about the applicability of gravitational and centrifugal fields for separation purposes, a series of experiments have been done to measure the elementary separation factor. After the construction of the vacuum type centrifuge in 1938, Beams was successful in measuring separation factors in several isotopic mixtures.

The development of the centrifuge as a tool for isotope separation has been influenced largely by the theoretical work done by Cohen and co-workers. From theoretical considerations it follows that the countercurrent type centrifuge is the most promising one. So, the later investigations all concentrated on a countercurrent centrifuge.

In chapter II of this work a summary has been given of the cascade theory as developed by Cohen. The concepts of ideal cascade, separative power and value function are derived. Because the functions used in cascade theory are not very familiar to physicists, we tried to show the connection between the value function and the entropy. Working out the analogy between the thermodynamic functions and the value function we formulated the separation potential. This function is very suitable for calculating the separative power of an element.

The last part of this chapter has been devoted to column theory. Special attention was given to the column consisting of a stripping and a rectifying part. For a symmetrical column of this type it was shown that the separative power can only be 80 % of the maximum separative power. Calculated are separation factor and separative power as a function of the production.

In the third chapter we treated the theory of the countercurrent centrifuge. Special care was taken in deriving the equation, which describes the concentration field. The difference between a barycentric and a molecular description was pointed out. According to the method of Bramley the equation of the countercurrent centrifuge

was brought in the form of the column equation. Separative power and separation factor can be found by applying column theory.

The influence of the pattern of the countercurrent on the separative power is very large. We treated several profiles of the countercurrent, showing how a discrepancy between the optimal and the actual flow pattern leads to severe losses of separative power. It has been shown that radial baffles correct to a large extent these losses.

Some hydrodynamical aspects of the countercurrent have been treated. Strength and flow profile of the thermoconvective countercurrent have been calculated from the Navier Stokes equation and the energy equation.

In the last chapter a short discussion has been given of the experimental results of Groth and Zippe.

STIJLINGEN

Chloëse lanta en Raman aanmerken dat in een thermodynamische proces de temperatuurverandering slechts bepaald wordt door geleiding, volgens verandering van de warmteoverdrachtscoëfficiënt en veranderingen in ρ , op, dat de geleiding door constante een verandering in ρ voor het bestaan van een effectieve thermodynamische proces.

S. C. Sauer and A. Raman, *Rev. of Mod. Phys.* **24**, 223 (1952);
M. Zeman, Czech. J. Phys. **4**, 196 (1958).

In deze Hoofdstuk en Hirschfelder veronderstelt de koppeling tussen de moleculen-impulsmomenten bij de beweging van twee moleculen, zoals in het geval dat de beweging eelastisch is, een constantie van de bewegingsmomenten voor diffusie en viscositeit. De selectieve processen van deze constantie behaagt ongeveer 1%.

J. E. Hirschfelder and J. G. Hirschfelder, *Phys. Rev.* **124**, 202 (1961).

Het door Onsager geformuleerde criterium betreffende het maximale gemiddelde moment in een thermodynamisch proces is niet veranderd maar kan te worden toegevoegd differentiaalveranderingen.

L. Onsager, *Phys. Rev.* **64**, 519 (1948);
Revised, J. Chem. Phys. **27**, 370 (1957).

De verandering van de schijnbare op de diepe veranderingen tussen kleine moleculen, kan met behulp van moleculaire kinetiek een veld van veranderingen in de veranderingen van de veranderingen van de veranderingen.

H. B. G. Casimir and H. B. G. Casimir, *Phys. Rev.* **75**, 202 (1949).

De verandering van de schijnbare op de diepe veranderingen tussen kleine moleculen, kan met behulp van moleculaire kinetiek een veld van veranderingen in de veranderingen van de veranderingen van de veranderingen.

M. Fugate and G. Casimir, *Phys. Rev.* **75**, 202 (1949).

was brought in the form of the velocity equation. Separative power and separation factor can be found by applying collision theory.

The influence of the pattern of the environment on the separative power is very large. We studied several profiles of the concentration, showing how a discrepancy between the optimal and the actual flow pattern leads to severe losses of separative power. It has been shown that radial buffer currents to a large extent cause these losses.

Some hydrodynamical aspects of the countercurrents have been treated. Strength and flow profile of the thermooxidative countercurrent have been calculated from the Navier-Stokes equation and the energy equation.

In the last chapter a short discussion has been given of the experimental results of Grotz and Zipp.



STELLINGEN

1

Ofschoon Saxena en Raman aannemen dat in een thermodiffusiekolom de temperatuurverdeling slechts bepaald wordt door geleiding, wijzen metingen van de warmteoverdrachtscoëfficiënt in verticale spleten er op, dat de geleiding door convectie een voorwaarde is voor het ontstaan van een effectieve thermoconvectiewerfel.

S. C. Saxena and S. Raman, *Rev. of Mod. Phys.* **34**, 252 (1962).
H. Kraussold, *Forsch. Ing. - Wes.* **5**, 186 (1934).

2

De door Hornig en Hirschfelder veronderstelde koppeling tussen de rotatie-impulsmomenten bij de botsing van twee moleculen, leidt, in het geval dat de botsing adiabatisch is, tot correcties van de botsingsdoorsneden voor diffusie en viscositeit. De relatieve grootte van deze correcties bedraagt ongeveer 1 %.

J. F. Hornig and J. O. Hirschfelder, *Phys. Rev.* **103**, 908 (1956).

3

Het door Onsager geformuleerde criterium betreffende het maximale entropie-rendement in een thermodiffusiekolom is niet zonder meer toe te passen op andere diffusieprocessen.

L. Onsager, *Phys. Rev.* **55**, 1137 (1939).
Hoofdstuk II en III van dit proefschrift.

4

De invloed van de retardatie op de dispersiekrachten tussen kleine moleculen, kan met behulp van moleculaire bundels niet worden aangetoond tengevolge van de onzekerheidsrelatie van Heisenberg.

H. B. G. Casimir and D. Polder, *Phys. Rev.* **73**, 360 (1948).

5

Ten onrechte verwaarlozen Puglisi en Sacerdoti bij de beschrijving van de beweging van een geladen deeltje in een roterend elektrisch en magnetisch veld de invloed van het geïnduceerde elektrische veld.

M. Puglisi and G. Sacerdoti, *Elettrotecnica* **48a**, 1 (1961).

6

De door Reynolds gemeten anomalie tussen de relatieve veelvuldigheden van aards en meteoritisch Xenon kan met uitzondering van de anomalie der ^{129}Xe veelvuldigheid ook verklaard worden met een ontsnapingsmechanisme.

J. H. Reynolds, *Phys. Rev. Letters* **4**, 8 (1960).

E. Anders, *Rev. of Mod. Phys.* **34**, 287 (1962).

7

De vorming van kooldioxyde uit koolmonoxyde en zuurstof atomen in de grondtoestand, kan zowel volgens een bimoleculair als een termoleculair mechanisme plaats vinden.

B. H. Mahan and R. B. Solo, *J. Chem. Phys.* **37**, 2669 (1962).

M. A. A. Clyne and B. A. Thrush, *Proc. Roy. Soc. A*, **269**, 404 (1962).

8

Meting van de invloed van het magnetisch veld op de thermodynamische factor van binaire mengsels waarvan één of beide componenten paramagnetisch zijn, kan essentieel bijdragen tot een beter inzicht in het Senftleben-effect.

H. Senftleben und J. Pietzner, *Ann. Phys.* **30**, 541 (1937).

F. Zernike and C. van Lier, *Physica* **6**, 961 (1939).

C. J. Gorter, *Ned. T. Nat.* **3**, 89 (1940).

9

Het contact tussen beoefenaars der wetenschap en scheppende kunstenaars leidt tot wederzijdse inspiratie.

10

Het verschil in gedrag van asymmetrische isotope moleculen bij transportverschijnselen kan worden beschreven met een effectieve bolvormige intermoleculaire potentiaal, die afhankelijk is van de temperatuur.

A. E. de Vries, A. Haring and W. Slots, *Proc. Int. Symp. on Isotope Separation*, 478. North Holland Publ. Comp., Amsterdam (1958).

J. Schirdewahn, A. Klemm und L. Waldmann, *Z. f. Naturf.* **16a**, 133 (1961).

BIBLIOTHEEK VAN HET
FARMACEUTISCH LABORATORIUM
DER R. U. TE LEUVEN

