

метода прокатки, позволяющего получать тонкие пластины (~ 1 мм) с плотностью до 97% от теоретической.

Поступила в Редакцию 29/I 1966 г.

ЛИТЕРАТУРА

1. Bradbury Brian. Nucl. Engng, 8, 430 (1963).
2. W. Ramke, J. Zatzka. Aerospace Engng, 22, 76 (1963).
3. W. Sterry. Space aeronautics, 45, 53 (1965).
4. А. И. Августинник. «Порошковая металлургия», № 6, 11 (1963).

5. З. И. Шольц. «Порошковая металлургия», № 2, 107 (1963).
6. А. И. Августинник. «Порошковая металлургия», № 1 (1962).
7. П. С. Кислый и др. «Порошковая металлургия», № 2, 38 (1962).
8. Г. И. Аксенов. Основы порошковой металлургии. М., Metallurgizdat, 1962.
9. Г. А. Виноградов, И. Д. Радомысльский. Прессование и прокатка металлокерамических материалов. М., Metallurgizdat, 1963.
10. Г. А. Виноградов. Прокатка металлических порошков. М., Metallurgizdat, 1960.

Исследование разделения изотопов неона в пленочной ректификационной колонке

В. Н. ГРИГОРЬЕВ, К. Г. БРЕСЛАВЕЦ

УДК 621.039.332:546.292

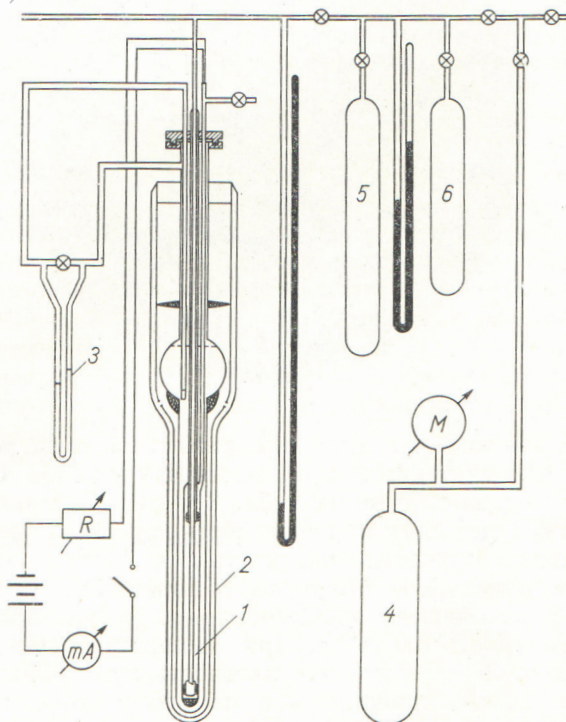
Исследовано разделение изотопов неона ректификацией в пленочных колонках при скорости пара 0,3; 0,4; 0,5 см/сек и различных величинах отбора. Показано, что разделяющая способность колонок не зависит от числа параллельно работающих трубок. Зависимость числа теоретических тарелок от отбора хорошо описывается формулами Куна. В безотборных режимах число теоретических тарелок в 2—2,5 раза меньше расчетного. Получен газообразный неон с концентрацией Ne^{22} 84,5%.

В теоретических и экспериментальных работах показано [1, 2], что пленочные ректификационные колонки при малых скоростях пара обладают весьма высокой разделяющей способностью. Это обстоятельство позволяет использовать их для разделения веществ с малым различием давлений насыщенных паров. Преимущества пленочных колонок отчетливо проявляются при работе в области низких температур, когда уменьшение габаритов установки становится особенно существенным. Колонка такого типа была с успехом использована для разделения смесей изотопов водорода [3]. Основной недостаток пленочных колонок — малые величины допустимых отборов. Для устранения этого недостатка необходимо использовать колонки, состоящие из большого числа ректификационных трубок. В настоящей работе была исследована зависимость разделяющей способности от отбора для однотрубной и многотрубной колонки при ректификации естественной смеси изотопов неона.

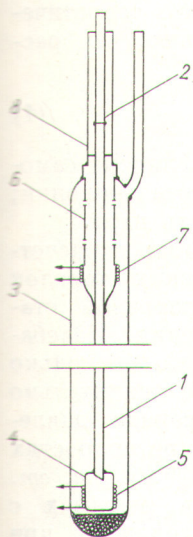
Описание установки

Принципиальная схема установки показана на рис. 1. Ректификационная колонка 1 нахо-

дится в металлическом криостате 2 высотой 1300 мм, заполненном жидким водородом. Криостат имеет резервуар для жидкого азота и полированный экран, соединенный с азотной ванной. В верхней части водородного дьюара расположена медная сфера объемом ~ 5 л. Скорость испарения жидкого водорода состав-



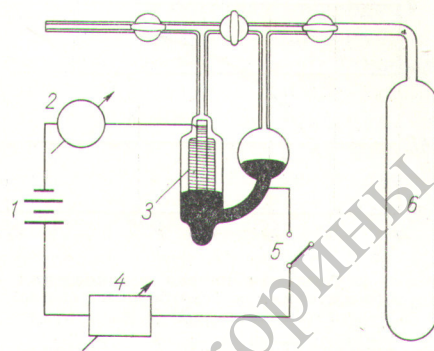
Р и с. 1. Принципиальная схема установки для низкотемпературной ректификации неона



Р и с. 2. Одно-
трубчатая ректи-
фикационная ко-
лонка.

ляла около $100 \text{ см}^3/\text{ч}$, так что запаса его хватало на двое суток непрерывной работы. Уровень жидкого водорода определялся с точностью в несколько миллиметров по величине гидростатической разности давлений, измеряемой масляным манометром 3. Колба 4 использовалась для хранения исходного неона, а колбы 5 и 6 — для неона, отбираемого в процессе ректификации.

Схема ректификационной колонки показана на рис. 2. Ректифицирующей частью колонки служит медная трубка 1 высотой 680 мм с рабочей частью в 350 мм и внутренним диаметром 3 мм, соединенная при помощи тонкостенной нейзильберовой трубки 2 с системой напуска и отбора газа. Колонка изолирована от водорода, находящегося в дьюаре, вакуумной рубашкой 8. К нижнему концу трубки 1 припаян кипятильник 4 объемом около 2 см^3 в случае однотрубчатой колонки и около 15 см^3 для четырехтрубчатой колонки. На кипятильник намотан нагреватель 5 из константановой проволоки. Конденсатором служит верхняя часть трубки 1, охлаждаемая «холодоподводом» 6, находящимся в контакте с жидким водородом. «Холодоподвод» рассчитывали так, чтобы с некоторым избытком компенсировать возможный приток тепла к колонке. Для получения и поддержания необходимой температуры ($27,1^\circ \text{ К}$) использовали нагреватель 7, ток через который регулировался автоматически при помощи схемы, приведенной на рис. 3 [4]. В печь нагревателя включали последовательно катушку из нихромовой проволоки, частично погруженную в ртуть дифференциального манометра. Сопротивление катушки, а следовательно, и ток, проходящий через нагреватель, зависят от положения ртути. При подсоединении манометра к колонке ток уменьшится при росте давления (температуры) в колонке и возрастет при понижении давления. При соответствующем подборе напряжения батареи и регулировочного сопротивления легко добиться стационарного положения уровня ртути в манометре, а следовательно, постоянного давления и температуры в колонке. В стационарном состоянии температура поддерживалась постоянной в течение многих



Р и с. 3. Принципиальная схема регулятора температуры:

1 — батарея; 2 — миллиамперметр; 3 — дифференциальный манометр; 4 — регулировочное сопротивление; 5 — ключ; 6 — колба для поддержания постоянного давления.

часов с точностью в несколько тысячных градуса.

Колонка непосредственно присоединялась к масс-спектрометру МС-4 при помощи нейзильберового капилляра длиной 1600 мм и внутренним диаметром 0,4 мм. Все коммуникации в системе напуска, измерения и регулировки давления были выполнены из тонких капилляров, так что общий объем системы не превышал 25 см^3 .

Экспериментальные данные и их обсуждение

Для ректификации использовался неон обычного изотопного состава ($90,92\% \text{ Ne}^{20}$; $0,26\% \text{ Ne}^{21}$; $8,82\% \text{ Ne}^{22}$). Все разгонки проводились при температуре кипения жидкого неона под атмосферным давлением ($27,1^\circ \text{ К}$). Исследовалась ректификация в колонках, состоящих из одной и четырех трубок. На первой стадии было исследовано разделение в безотборных режимах для колонок обоих типов при скоростях пара 0,5; 0,4; 0,3 $\text{ см}/\text{сек}$. (Скорость отбора вещества в масс-спектрометр была в 10^4 раза меньше потока вещества в колонке даже при самой малой скорости пара.) Для каждого режима снималась кривая установления стационарного состояния. На рис. 4 приведена одна из таких кривых, полученная для четырехтрубчатой колонки при скорости пара 0,5 $\text{ см}/\text{сек}$. Строго говоря, вследствие изменения изотопного состава в верхней части колонки в процессе ректификации давление неоднозначно определяется температурой, однако для случая изотопов неона этот эффект довольно мал и не превышает нескольких сотых

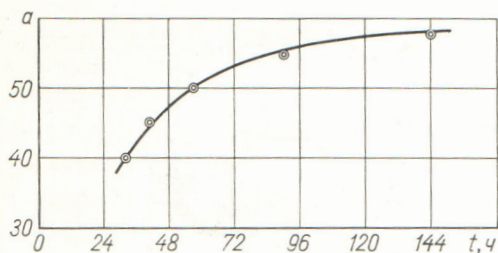


Рис. 4. Типичная кривая установления стационарного состояния в безотборном режиме.

градуса. На рис. 4 приведена зависимость отношения концентраций изотопов Ne^{20} и Ne^{22} ($a = \frac{C^{20}}{C^{22}}$) от времени. Эта зависимость хорошо описывается обычной формулой $a - a_0 = (a_\infty - a_0)(1 - e^{-t/t_0})$ [5], где a_0 — отношение концентраций в исходной смеси; a_∞ — отношение концентраций в стационарном состоянии; t — время; t_0 — время установления стационарного состояния, которое по порядку величины совпадает со значением, рассчитанным по формулам Куна [1]. В настоящих экспериментах t_0 для различных режимов было равно 30—100 ч. Величина обогащения в стационарном состоянии использовалась для расчета числа теоретических тарелок $N_0 = \frac{1}{\epsilon} \ln \frac{a_\infty}{a_0}$, где ϵ — коэффициент обогащения, равный для неона $4 \cdot 10^{-2}$ [6]. Результаты разгонок для режимов без отбора приведены в табл. 1.

Результаты безотборных разгонок смесей изотопов неона в пленочных ректификационных колонках Таблица 1

Тип колонки	Скорость пара, см/сек	a_∞	$N_{\text{эксп}}^0$	ВЭТТ, мм	$C_{\text{макс}}^{20}$, %
Однотрубчатая	0,5	41	36	9,6	97,7
	0,4	66	48	8,8	98,5
	0,3	~115	~63	5,6	>99,1
Четырехтрубчатая	0,5	59	45	9,3	98,4
	0,4	80	52	8,1	98,8
	0,3	200	76	5,5	99,5

Из полученных данных видно, что для обеих колонок высоты, эквивалентные теоретической тарелке (ВЭТТ), в пределах точности измерений одинаковы и уменьшаются по мере уменьшения скорости пара, что качественно совпадает с теоретической зависимостью. Однако количественное сравнение показывает, что

экспериментально найденное число теоретических тарелок в 2—2,5 раза меньше, чем рассчитанное по формуле Куна [1]:

$$N = \frac{4DH}{r^2u}, \quad (1)$$

где $D = 6,8 \cdot 10^{-3}$ см²/сек — коэффициент самодиффузии неона [7]; H — высота колонки; r — радиус колонки; u — скорость пара.

Несовпадение экспериментальных и расчетных значений числа теоретических тарелок связано, по-видимому, с недостаточной стабильностью температуры и давления. Колебания давления, составляющие всего несколько сотых мм рт. ст., были все же значительно больше гидродинамического перепада давлений по высоте колонки, которое при скоростях пара меньше 1 см/сек было $< 10^{-3}$ мм рт. ст.

Исследование ректификации в режимах с отбором проводилось в обеих колонках при $u = 0,3$ см/сек. При самых малых величинах отбора неон отбирался в камеру масс-спектрометра; для поддержания постоянных потоков использовались вентили тонкой регулировки напускной системы. При больших величинах отбора газ собирался в колбы известного объема [см. 5, 6 на рис. 1], скорость потока определялась по увеличению давления в этих колбах. Полученные результаты приведены в табл. 2.

Расчет работы пленочных колонок при наличии отбора был выполнен Куном [1]. Формулы, полученные им для произвольных величин C_0 , C_k (C_0 и C_k — концентрация легкого изотопа внизу иверху колонки соответственно), N

Результаты работы на пленочных ректификационных колонках с отбором при скорости пара 0,3 см/сек Таблица 2

Тип колонки	Флегмовое число	Скорость отбора, см ³ /ч	$N_{\text{эксп}}$	Средняя концентрация Ne^{20} в отборе, %
Однотрубчатая	414	1,8	58	>99,1
	155	5,0	56,5	98,3
Четырехтрубчатая	414	7,36	73	99,5
	147	21,05	72	99,2
	41	74	41	67,2

и R (R — флегмовое число), очень сложны. Однако в некоторых частных случаях были получены решения, дающие связь C_k с C_0 и R в явном виде.

При этом Кун ввел понятие эффективного числа теоретических тарелок: $N_{\text{эфф}} = \frac{1}{\epsilon} \ln \frac{a_k}{a_0}$.

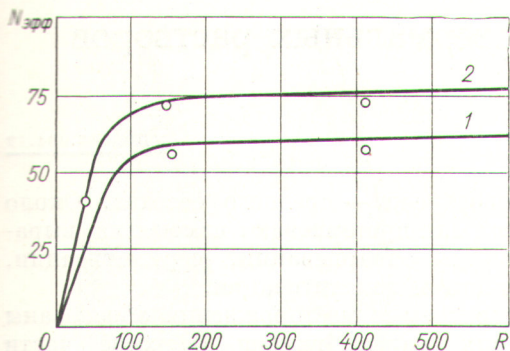


Рис. 5. Зависимость числа эффективных тарелок от величины флегмового числа.

При выполнении условий $\varepsilon \ll 1$, $R\varepsilon \gg 1$, $C_0 R\varepsilon > 1$, $(1 - C_h) \ll 1$ формула, полученная Куном, принимает вид

$$N_{\text{эфф}} = N - \frac{1}{\varepsilon} \ln \frac{C_0 R\varepsilon}{C_0 R\varepsilon - 1}. \quad (2)$$

На рис. 5 приведены зависимости $N_{\text{эфф}}(R)$ для однотрубчатой (кривая 1) и четырехтрубчатой колонок (кривая 2), рассчитанные по формуле (2). Здесь же нанесены экспериментальные точки. Видно, что экспериментально найденные значения N хорошо согласуются с результатами, полученными по формуле (2). Отличие результатов для однотрубчатой колонки от четырехтрубчатой объясняется различием длин ректификарующих трубок (350 и 420 мм соответственно).

На каждой из колонок были проведены эксперименты, в которых отбор проводился до полного исчерпания смеси из кипятыльника, в результате чего было получено 2300 см³ газообразного неона с концентрацией Ne²², равной 32,5%; 270 см³ — с концентрацией 49,7%; 75 см³ — с концентрацией 84,5%.

Представляет интерес привести для сравнения результаты первых экспериментов по ректификации неона, проведенных Кеезомом и Ван-Дейком [8, 9]. Эти авторы применили ректификационную тарельчатую колонку, работающую при температуре кипения водорода. Колонка была изготовлена из стекла, имела кипятыльник объемом 250 см³, содержала в себе 60 тарелок и помещалась в двухметровом стеклянном дьюаре. Общая высота всей разделяющей установки составляла более 3,5 м, расход жидкого водорода был равен 2 л/ч. Наилучшие результаты, полученные в этих работах: в легкой фракции концентрации Ne²⁰ \approx 95,6%; в тяжелой Ne²² \approx 27,7%.

Таким образом, в результате исследования разделения изотопов неона в однотрубчатой и четырехтрубчатой колонках было показано, что разделяющая способность обеих колонок одинакова как в безотборных режимах, так и при работе с отбором. Полученная экспериментально зависимость числа теоретических тарелок от отбора хорошо согласуется с данными расчета Куна. В режимах без отбора число теоретических тарелок в 2–2,5 раза меньше расчетного.

В результате разгонки было получено 75 см³ газообразного неона с концентрацией Ne²² 84,5%.

В заключение авторы выражают свою искреннюю благодарность дру физ-матем. наук В. С. Когану за интерес к работе.

ЛИТЕРАТУРА

1. W. Kuhn, E. Vaertsh, *Chimia*, 8, 109 (1954).
2. В. Н. Григорьев, «Укр. фіз. ж.», 6, 472 (1961).
3. Р. Ф. Булатова, В. Н. Григорьев, В. С. Коган, «Атомная энергия», 13, 428 (1962).
4. В. Н. Григорьев. Авторское свидетельство № 155973 от 3/VIII 1962 г.
5. А. М. Розен. В кн. «Теория разделения изотопов в колонках». М., Госатомиздат, 1960, стр. 292.
6. G. Boato, G. Casanova, *Nuovo Cimento*, 20, 1, 87 (1961).
7. Argon, Helium and the Rare Gases. London, 1961.
8. W. Keesom, H. Van Dijk, *Communications Leiden University*, 19, 213a (1929-1931).
9. W. Keesom, H. Van Dijk, J. Haantjes, *Physica*, 1, 1109 (1934).

Поступила в Редакцию 23/VII 1965 г.