Verwydering van MoF_6 en HF uit ’n helium-MoF_6-gasmengsel

E. Ungerer

Departement Chemiese Ingenieurswese

Universiteit van Pretoria

Studieleier:

Prof. P.L. Crouse

2019

Verklaring

Ek verklaar dat hierdie verhandeling geheel my eie, oorspronklike werk is, dat ek die outeursregeienaar daarvan is (behalwe tot die mate uitdruklik anders aangedui) en dat ek dit nie vantevore, in die geheel of gedeeltelik, ter verkryging van enige kwalifikasie aangebied het by enige ander universiteit nie. Ek het na alle bronne wat ek gebruik het verwys in die bronnelys.

Esbè Ungerer

Erkenning

"There is only one thing that makes a dream impossible to achieve: the fear of failure."
Paulo Coelho, The Alchemist

Hierdie verhandeling is deel van ŉ merkwaardige reis wat my lewe verdiep en verryk het. Dit het begin by ŉ preek wat ŉ droom geword het om as ŉ senior student, ingenieurswese by Potchefstroom te gaan studeer. Deel van die begin was Professor Frans Waanders wat in my droom geglo het en my die geleentheid gegee het om as student wat dertig jaar ouer as die ander studente was, te studeer. Ek is dankbaar teenoor medestudente en dosente wat my verdra het.

Ek is dankbaar vir finansiële steun van die Suid-Afrikaanse Akademie vir Wetenskap en Kuns en vir Klydon vir die geleentheid om navorsing te doen. Baie dankie aan my kollegas vir begrip, bystand en ondersteuning. Dankie Diether, Mitch, Petro, Ben en Bernard vir al die hulp. Ek wil die ingenieursbestuurder, Japie Grant, in besonder bedank. Sy absolute toegewydheid en aandrang op kwaliteit was inspirerend.

Ek is dankbaar vir my kinders, Christiaan, Nadè en Merike, skoonkinders, Anina, Michiel en Francois, my liewe man, André, ouers, familie en vriende wat saam met my gedroom, gehoop, geglo en geworstel het. Die reis sou onmoontlik gewees het sonder julle konstante ondersteuning. Julle is kosbaar vir my.

My dank aan my studieleier Professor Philip Crouse vir sy hulp en ondersteuning om verhandeling in Afrikaans te voltooi en aan Me. E du Toit vir deeglike redigering.

Ek is dankbaar teenoor my man André, wat soveel opgeoffer het om my droom ŉ realiteit te maak. Hierdie verhandeling word in besonder opgedra aan jou. Sonder jou hulp en ondersteuning sou ek dit nooit reggekry het nie. Dankie dat jy altyd in my glo.

Ek dank die Vader wat my die krag gegee het om alles moontlik te maak.

"Soli Deo Gloria."

Opsomming

Die wêreldwye mark vir kernmedisyne, wat radio-isotope en mediese toerusting insluit, was in 2016 meer as $11 miljard sterk en sal na verwagting teen 2021 na byna $20 miljard groei. Klydon het die aërodinamiese skeidingsproses (ASP) met die doel van isotoopverryking in molibdeen-100 vir die doeleindes van mediese-isotoopproduksie ontwikkel. Helium word as draergas saam met molibdeen in die vorm van molibdeenheksafluoried (MoF_6) tydens die proses gebruik. Die MoF_6 word as produk uit die heliumstroom verwyder deur dit uit te vries. Die helium moet gesuiwer word en indien waterstoffluoried (HF) of molibdeenheksafluoried (MoF_6) nog teenwoordig is, moet dit effektief verwyder word. Die doel van die studie is om 'n effektiewe manier te vind om MoF_6 en HF in die finale poleringstap uit die heliumstroom te verwyder.

In die literatuurstudie is navorsing oor al die reagense en moontlike produkte wat kan vorm, gedoen. Die fisiese eienskappe van die elemente, verbindings en mengsels is bespreek. Die gevare van HF en hantering van HF is onder die loep geneem. Noodbehandeling na blootstelling aan HF is ook bespreek. Aangesien materiaalkeuse uiters belangrik is weens die korrosiewe aard van die gasse, is dit volledig bespreek en aanbevelings oor droging en passivering is gemaak.Verskillende moontlikhede van gasskeiding en verwydering van HF en MoF_6 uit die stroom is ondersoek en bespreek. Die keuse het geval op adsorbente en die verskillende adsorbente word bespreek.

Twaalf verskillende adsorbente is gekies met die oorwig van keuse wat op ioonuitruilharse geval het. Die rede vir die keuse was dat harse maklik bekombare sintetiese polimeermateriale is, wat in staat is om spesifieke ione uit te ruil of vas te lê. Sommige het selfs die baie belangrike vermoë om hierdie funksionaliteit om te keer. Eksperimente is gedoen met die verskillende adsorbente om die adsorbsievermoë van die adsorbente ten opsigte van MoF_6 te bepaal. Data van druk en temperatuur teenoor tydsverloop is versamel.

Na afloop van die eksperimente en dataverwerking is bevind dat die adsorbeervermoë van A100Mo en MN102 die beste van die getoetsde adsorbente was. Die resultate was nie verrassend nie want A100Mo is ŉ makroporeuse, gemengde basis anioon hars, wat juis gebruik word om molibdeen uit suuroplossings te verwyder. MN102 is ŉ makroporeuse hidrofobiese, swak basisanioon hars. A100Mo adsorbeer 2,276 g MoF_6 per gram adsorbent en MN102 3,293 g MoF_6 per gram adsorbent. Die gevolgtrekking is gemaak dat A100Mo en MN102 duidelike potensiaal toon vir gebruik in die finale poleringstap om MoF_6 uit helium te verwyder. Dit word aanbeveel dat MN102 en A100Mo verder ondersoek moet word om as adsorbente MoF_6 uit helium te verwyder in die finale poleringsstap.

Uit die adsorbente is alumina en koolstof gekies vir verdere eksperimente met HF. Die adsorbeervermoë van alumina teenoor HF is bereken as 2,208 g HF per gram alumina. As dit vergelyk word met adsorbeervermoë van alumina teenoor MoF_6 wat 0,2405 g gas per gram adsorbent is, is dit ŉ belangrike adsorbent om verder te ondersoek om selektiewe adsorpsie van HF uit helium te verkry.

Adsorbeervermoë van koolstof teenoor HF is 1,22 g HF per gram koolstof. Vergelykenderwys is die adsorbeervermoë van koolstof teenoor MoF_6 0,457 g MoF_6 per gram adsorbent. Die moontlikheid om koolstof te gebruik om HF selektief te verwyder uit MoF_6-heliumgasmengsel behoort verder ondersoek te word.

Die aanvanklike eksperimente het getoon dat alumina en koolstof moontlik die potensiaal het om HF selektief uit ŉ heliumstroom te verwyder. Verdere studie en eksperimentering met ‘n mengsel van HF en MoF_6 om die selektiewe adsorbering van HF te ondersoek word dus sterk aanbeveel.

Summary

The global nuclear medicine market, which includes radio isotopes and medical devices, was over $ 11 billion in 2016 and is expected to grow to nearly $ 20 billion by 2021. Klydon developed the Aerodynamic Separation Process (ASP) for the purpose of isotope enrichment in molybdenum-100 for medical-isotope production purposes. Helium is used as carrier gas with molybdenum in the form of molybdenum hexafluoride (MoF_6) during the process. The MoF_6 is removed from the helium stream as a product by freezing it. The helium must be purified and if hydrogen fluoride (HF) or molybdenum hexafluoride (MoF_6) is still present, it must be removed effectively. The aim of the study is to find an effective way to remove MoF_6 and HF from the helium stream in the final polishing step.

In the literature study, research was done on all the reagents and possible products that may form. The physical properties of the elements, compounds and mixtures were discussed. The dangers of HF and the handling of HF were examined. Emergency treatment after exposure to HF was also discussed. As material selection is extremely important due to the corrosive nature of the gases, it has been fully discussed and recommendations on drying and passivation have been made. Various possibilities of gas separation and removal of HF and MoF_6 from the stream have been investigated and discussed. The choice fell on adsorbents and the various adsorbents are discussed.

Twelve different adsorbents were selected with the balance of choice falling on ion exchange resins. The reason for the choice was that resins are readily available synthetic polymeric materials, capable of exchanging or capturing specific ions. Some even have the very important ability to turn around this functionality. Experiments were conducted with the different adsorbents to determine the adsorbent capacity of the adsorbents with respect to MoF_6. Pressure and temperature versus time data were collected.

After the experiments and data processing, the adsorbents of A100Mo and MN102 were found to be the best of the adsorbents tested. The results were not surprising as A100Mo

is a macroporous, mixed base anion resin, which is used to remove molybdenum from acid solutions. MN102 is a macroporous hydrophobic, weak base anion resin. A100 Mo adsorb 2,27 g MoF_6 per gram adsorbent and MN102 3,293 g MoF_6 per gram adsorbent. It was concluded that A100Mo and MN102 show clear potential for use in the final polishing step to remove MoF_6 from helium. It is recommended that MN102 and A100Mo be further investigated to remove adsorbent MoF_6 from helium in the final polishing step.

From the adsorbents, alumina and carbon were selected for further experiments with HF. The adsorption capacity of alumina to HF was calculated as 2,208 g HF per gram of alumina. When compared to adsorption capacity of alumina to MoF_6 which is 0,2405 g gas per gram of adsorbent, it is an important adsorbent to investigate further to obtain selective adsorption of HF from helium.

Carbon adsorption capacity against HF is 1,22 g HF per gram of carbon. Comparatively, the adsorption capacity of carbon versus MoF_6 is 0,457 g of MoF_6 per gram of adsorbent. The possibility of using carbon to selectively remove HF from MoF_6 helium gas mixture should be further investigated.

The initial experiments showed that alumina and carbon may have the potential to selectively remove HF from a helium stream. Further study and experimentation with a mixture of HF and MoF_6 to investigate the selective adsorption of HF is therefore strongly recommended.

Nomenklatuur

a	Harde kernradius	Å
C	Konsentrasie	mol/m^3
$C_{p,g}$	Warmtekapasiteit van gas	kJ/(kmol·K)
$E_{1,2}$	Gemiddelde effektiwiteit van momentumoordrag	
k_T	Warmtegeleidingsvermoë	W/(m·K)
m_i	Molêre massa	g/mol
η_{gas}	Viskositeit	μP
p	Dampdruk	Pa
r	Skeidingafstand tussen molekules	Å
σ	Botsingkansvlak	Å
T	Temperatuur	K
μ_{gas}	Viskositeit	μP
U	Potensiële energie	J
x_i	Molfraksie	-
y_i	Momentumfraksie	-
ρ_s	Digtheid van vaste stof	kg/m^3

Akronieme en afkortings

AHF	Anhidriese HF
ASP	Aërodinamiese skeidingsproses
GB	Gay–Berne
IAEA	International Atomic Energy Agency
MOF’s	Metaal-organiese-raamwerk (Engels: Metal-organic frameworks)
MMM’s	Gemengde-matriksmembrane (Engels: Mixed matrix membranes)
Necsa	Suid-Afrikaanse Kernenergiekorperasie (Engels: South African Nuclear Energy Corporation)
PSA	Adsorpsie deur drukvariëring (Engels: Pressure swing adsorption)
PBT	Persoonlike beskermende toerusting
RPSA	Vinnigedrukswaaiadsorpsie (Engels: Rapid pressure swing adsorption)
TSA	Adsorpsie deur temperatuurverandering (Engels: Temperature swing adsorption)

Inhoudsopgawe

Verklaring i

Erkenning ii

Opsomming iii

Summary v

Nomenklatuur vii

Akronieme en afkortings viii

Lys van figure xiii

Lys van tabelle xvii

1 Navorsingsvraag 1

1.1 Inleiding 1

1.2 Definieer die navorsingprobleem 2

1.3 Relevansie en motivering vir studie 2

1.4 Doelstelling en doelwitte 3

1.5 Navorsingbenadering en -ontwerp 3

1.6 Struktuur en vloei van verhandeling 3

2 Literatuurstudie 5

2.1 Agtergrond 5

2.1.1 Molibdeen 5

2.1.2 Fluoor ... 6

2.1.3 Molibdeenheksafluoried MoF_6 ... 7

2.1.4 Ander molibdeenfluoriede ... 13

2.1.5 Oksifluoriede ... 14

2.1.6 Helium ... 15

2.1.7 Viskositeit van mengsels ... 17

2.1.8 Gebruike van tegnesium-99 ... 19

2.2 Isotoopskeiding van MoF_6 ... 21

2.2.1 Genesis-tegnologie ... 21

2.2.2 ASP-skeiding ... 22

2.3 HF ... 24

2.3.1 Gevare van HF ... 24

2.3.2 Noodhulp ... 24

2.3.3 Persoonlike beskermende toerusting (PBT) ... 25

2.3.4 Fisiese eienskappe van HF ... 27

2.3.5 Natuurlike bronne van HF ... 27

2.3.6 Interaksie van HF met materiale ... 28

2.3.7 Betroubare seëls vir HF ... 28

2.3.8 Roes by sweislasse ... 29

2.3.9 Materiaalkeuse in HF-omgewing ... 29

2.3.10 Droging....32

2.3.11 Passivering 34

2.4 Gasskeiding....36

2.4.1 Adsorbente 36

2.4.2 Adsorpsie....37

2.4.3 Kriogeniese distillasie vir gassuiwering by lae temperature....48

2.4.4 Kriogeniese gaschromatografie....48

2.4.5 Gasskeiding deur poreuse, anorganiese membrane 49

2.4.6 Pervaporasie 52

2.4.7 Gasskeiding deur ’n kriogene proses 52

2.5 Langmuir Isoterm....55

2.6 Keuses 56

3 Metodologie 59

3.1 Opsomming van eksperimentele benadering....59

3.2 Keuse van harse en adsorbente 64

3.3 Stap-vir-stap-metode....66

4 Resultate en bespreking....70

4.1 Resultate....70

4.1.1 A110 70

4.1.2 A111 74

4.1.3 A100Mo 76

4.1.4 MN 102 78

4.1.5 S984 81

4.1.6 A870 83

4.1.7 A850FL 86

4.1.8 Bentoniet 88

4.1.9 Geaktiveerde alumina ZT-200 90

4.1.10 Koolstof 93

4.1.11 CCP 510 (Alphasorb 5) 97

4.1.12 CCP 310 (Alphasorb 15) 99

4.1.13 Gedrag van hardeware 101

4.1.14 Opsomming 102

4.2 Bespreking 106

5 Gevolgtrekkings 112

6 Bronnelys: 115

7 Bylaag 126

Lys van figure

Figuur 2.1: Dampdruk van MoF_6 (Osborne *et al.*, 1966) 9

Figuur 2.2: Dampdrukkrommes van verskillende fluoriede (Cady en Hargreave, 1961) 10

Figuur 2.3: Viskositeit van MoF_6 12

Figuur 2.4: Vergelyking tussen gemete en berekende viskositeit van MoF_6 (Oh, 2008) 12

Figuur 2.5: Viskositeit van helium 16

Figuur 2.6: Fasediagram van helium (Thuneberg, 2003) 16

Figuur 2.7:Viskositeit van MoF_6-heliumgasmengsel 18

Figuur 2.8: Molfraksie HF vir ʼn tipiese MoF_6-HF-oplossing (Hedge, 1968) 19

Figuur 2.9: Interaksie tussen CaF_2 en HF 42

Figuur 2.10*:* He/N_2-skeidingsfaktor vs He-deurdringbaarheid (Robeson, 1991) 50

Figuur 2.11*:* Korrelasie vir diffusie bo-grens vir He/N_2 (Robeson *et al.*, 2013) 51

Figuur 2.12*:* Skematiese voorstelling van die proseskonsep (Tuinier *et al.*, 2011) 54

Figuur 3.1: Vloeidiagram wat ontwerp van adsorbenttoetslus illustreer 60

Figuur 3.2: Reaktore en kleppe van adsorbenttoetslus wat in oond geïnstalleer is 61

Figuur 3.3: Spruitstuk met kleppe om gastoevoer na reaktore in oond te voorsien 61

Figuur 3.4: Koppeling van spruitstuk aan reaktore in oond 62

Figuur 3.5: Agterkant van oond met sensors 62

Figuur 3.6: Klein koperhouers met verskillende adsorbente 62

Figuur 3.7: Adsorbenttoetslus gekoppel aan rekenaar 63

Figuur 3.8: Reaktore met aluminiumseël sigbaar 66

Figuur 3.9: Reaktor in bankskroef 67

Figuur 3.10: Laai van MoF_6 68

Figuur 4.1: A110 voor adsorpsie 70

Figuur 4.2: A110 na adsorbsie 71

Figuur 4.3: Korrels van A110 na adsorbsie (vergroot) 71

Figuur 4.4: A110 na adsorbsie met oormaat MoF_6 72

Figuur 4.5: Verloop van P_1, P_2 en temperatuur vir A110 73

Figuur 4.6: A111 na adsorpsie op 21 September 2017 74

Figuur 4.7: A111 na adsorpsie 4 Oktober 2017 74

Figuur 4.8: Verloop van P_1, P_2 en temperatuur vir A111 75

Figuur 4.9: A100Mo na adsorbsie 76

Figuur 4.10: Korrels van A100Mo na adsorbsie (vergroot) 76

Figuur 4.11: Verloop van P_1, P_2 en temperatuur vir A100Mo 77

Figuur 4.12: MN102 voor adsorpsie 78

Figuur 4.13: MN102 na adsorbsie 79

Figuur 4.14: MN102 na adsorpsie 79

Figuur 4.15: Verloop van P_1, P_2 en temperatuur vir MN102 80

Figuur 4.16: S984 voor en na adsorpsie ... 81

Figuur 4.17: S984 na adsorbsie ... 81

Figuur 4.18: Verloop vir P_1, P_2 en temperatuur vir S984 ... 82

Figuur 4.19: A870 voor adsorpsie ... 83

Figuur 4.20: A870 voor adsorbsie ... 83

Figuur 4.21: A870 na adsorpsie ... 84

Figuur 4.22: Verloop van P_1, P_2 en temperatuur vir A870 ... 85

Figuur 4.23: A850FL voor adsorpsie ... 86

Figuur 4.24: A850FL na adsorbsie ... 86

Figuur 4.25: Verloop van P_1, P_2 en temperatuur vir A850FL ... 87

Figuur 4.26: Bentoniet voor adsorpsie ... 88

Figuur 4.27: Bentoniet na adsorpsie ... 88

Figuur 4.28: Bentoniet na adsorpsie ... 89

Figuur 4.29: Verloop van P_1, P_2 en temperatuur vir bentoniet ... 89

Figuur 4.30: Alumina voor adsorpsie ... 90

Figuur 4.31: Alumina na adsorpsie ... 91

Figuur 4.32 Verloop van P_1, P_2 en temperatuur vir alumina ... 92

Figuur 4.33: Koolstof na adsorpsie ... 93

Figuur 4.34: Verloop van P_1, P_2 en temperatuur vir koolstof (20 September 2017) ... 94

Figuur 4.35 Verloop van P_1, P_2 en temperatuur vir koolstof (23 November 2017) ... 94

Figuur 4.36: KF·HF en koolstofadsorbent....................95

Figuur 4.37: CCP 510....................97

Figuur 4.38: CCP 510 na adsorbsie....................97

Figuur 4.39: Verloop van P_1, P_2 en temperatuur vir CCP510....................98

Figuur 4.40:CCP310 (Alphasorb15)....................99

Figuur 4.41: CCP310 na adsorbsie....................99

Figuur 4.42: Verloop van P_1, P_2 en temperatuur vir CCP 310....................100

Figuur 4.43: Reaktore met oksifluoried neerslag....................101

Figuur 4.44: Neerslag se tekstuur onder mikroskoop beskou....................101

Figuur 4.45: Drukmeter wat gefaal het....................101

Figuur 4.46: Voorspelde termodinamiese chemiese ewewig wanneer drie mol molibdeen en een mol molibdeenheksafluoried gekombineer word (Roine, A (2006) HSC Chemistry v7.1, Outotec Research Centre, Pori, Finland). 106

Lys van tabelle

Tabel 2.1: Isotope van molibdeen wat natuurlik voorkom (Royal Society of Chemistry, 1999) 5

Tabel 2.2: Fisiese eienskappe van F_2 7

Tabel 2.3: Fisiese eienskappe van MoF_6 (Yaws, 2010) 8

Tabel 2.4: Vergelykings van dampdruk van MoF_6 by verskillende temperature (Cady en Hargreave, 1961) 10

Tabel 2.5: Fisiese eienskappe van helium (Yaws, 2010) 15

Tabel 2.6: Tipiese skeidingsfaktore vir uraan (Whitaker 2005) 23

Tabel 2.7: Ni, Si en Cr inhoud van verskillende tipes staal (Internasionale Nikkelmaatskappy, 1968) 31

Tabel 2.8: Fluoorkoolstowwe vir gebruik met AHF 32

Tabel 2.9: Eienskappe van DMP 34

Tabel 2.10: Oplosbaarheid van HF in CaF_2 en NaF by verskillende temperature 43

Tabel 2.11: Oppervlakarea en absorpsie van HF 44

Tabel 2.12: Keuse van skeidingproses 57

Tabel 3.1: Opsommende inligting van adsorbente 65

Tabel 4.1: Opsommende resultate 102

Tabel 4.2: Kleurverandering van adsorbente en moontlike verklaring 108

HOOFSTUK 1: NAVORSINGSVRAAG

1 Navorsingsvraag

1.1 Inleiding

Die vervalproduk van Mo-99, Tegnesium-99m, is die mediese radio-isotoop wat die meeste gebruik word. Jaarliks word dit as ŉ radioaktiewe spoorelement in meer as 40 miljoen mediesdiagnostieseprosedures gebruik. Tc-99m (die m staan vir metastabiele energietoestand) is ongewoon omdat dit ŉ halfleeftyd van 6,03 uur het wat baie lank is vir elektromagnetiese verval — gewoonlik is dit 10^{-16} sekondes. Die algemeenste metode om Mo-99 te produseer, is deur die splitsing van 235-U in ŉ kernreaktor. Die Mo-99 verval met ŉ halfleeftyd van 66 uur na die meta-stabiele toestand van Tc. Hierdie proses laat die produksie van Tc-99 vir mediese doeleindes toe. Die kernroete om Mo-100 te produseer vereis egter verrykte uraan as brandstof. ŉ Verdere nadeel daarvan is die groot hoeveelhede radio-aktiewe afval wat vorm en uitdagings in die vervoer van radioaktiewe molibdeen.

Kommer oor tekorte in Tc-99 en die nadele van die huidige kernreaktorroete van produksie het tot hernieude belangstelling in die siklotronproduksie van hierdie isotoop gelei. In die siklotronproses word Mo-100 met protone bestraal om Tc-99 te vorm. Die aanvangsmateriaal vir hierdie roete is 98% suiwer Mo-100 wat van al sy ander isotope geskei moet word en tot die verlangde suiwerheid verryk moet word. Die aërodinamiese skeidingsproses (ASP-tegnologie) van Klydon is uitstekend geskik om komponente van ŉ gasmengsel of verskillende isotope van ŉ spesifieke gasverbinding gebaseer op die massaverskil van die gaskomponente of die isotope te skei. Dit word deur ŉ hoë-spoed sentrifugale rotasie van die gas- of isotoopmengsel gedoen. Die stilstaandewandsentrifuge, wat geen bewegende meganiese dele het nie, word deur Klydon gebruik.

Helium word as draergas saam met molibdeen in die vorm van molibdeenheksafluoried (MoF_6) tydens ASP-skeiding gebruik. Die voordeel van ASP-tegnologie is dat ŉ

stabiele Mo-100 isotoop, wat nie radioaktief is nie, gevorm word. Die Mo-100 word in ŉ siklotron na Tc-99 omgeskakel.

1.2 Definieer die navorsingprobleem

Klydon het die aerodinamiese-skeidingsproses (ASP) ontwikkel wat in staat is om gasse met verskillende molêre massas te skei. Hierdie tegnologie is ideaal geskik vir isotoopskeiding. Na die skeidingsproses en uitvries van die gewenste produk bly volgens berekeninge ongeveer 0,0009 molfraksie MoF_6 in die heliumgasstroom oor. Alhoewel alle moontlike voorsorgmaatreëls getref is om die vorming van HF sover as moontlik te beperk is die waarskynlikheid dat die heliumgasstroom geringe hoeveelhede HF kan bevat ŉ sterk moontlikheid. Indien HF wel gevorm het, moet dit effektief uit die sisteem verwyder word. Alle MoF_6 en HF moet in die finale poleringstap verwyder word aangesien die helium met ASP-tegnologie herbruik word. Indien daar nog MoF_6 teenwoordig is in die helium wat herbruik word, lei dit tot verlies in skeidingswerk van die aanleg. Die HF en MoF_6 wat verwyder word in die finale poleerstap word nie herbruik nie. Dit mag egter sinvol wees om die hergebruik van MoF_6 uit die adsorbent in verdere studies te ondersoek.

1.3 Relevansie en motivering vir studie

Helium is ŉ nie-hernubare produk en die hergebruik van helium is verantwoordelik teenoor die omgewing, sowel as kostebesparend vir die industrie. Verskeie studies is reeds met UF_6-heliumgasmengsels gedoen, maar MoF_6-heliumgasmengsels is ŉ veld waarin weinig navorsing reeds gedoen is. Die wêreldwye mark vir kernmedisyne, wat radio-isotope en mediese toerusting insluit, was in 2016 meer as $11 miljard sterk en sal na verwagting teen 2021 na byna $20 miljard groei. Navorsing op die gebied van MoF_6-heliumgasmengsels kan dus ŉ waardevolle bydrae tot die industrie en omgewing lewer.

1.4 Doelstelling en doelwitte

Die doelstelling van die studie is om ŉ effektiewe manier te vind om MoF_6 en HF in die finale poleringstap uit die heliumstroom te verwyder om sodoende helium te kan hersirkuleer.

Doelwitte:

- Ondersoek verskillende skeidingsprosesse aan die hand van beskikbare literatuur om mees geskikte proses om gasse te skei, te identifiseer.
- Ontwerp en ontwikkel instrumente en toerusting om toetse uit te voer.
- Ontwerp en ontwikkel toetsbank.
- Doen eksperimente om metodes wat gekies is na aanleiding van literatuurstudie om MoF_6 te verwyder, te evalueer.
- Evalueer ‘n adsorbent om HF te verwyder.

1.5 Navorsingbenadering en -ontwerp

Deeglike literatuurstudie is gedoen om moontlikhede te ondersoek om MoF_6 en HF uit helium te verwyder. Na die literatuurstudie is besluit om adsorbente te gebruik. Die adsorbente wat die meeste potensiaal getoon het, is geïdentifiseer. ŉ Toetslus is ontwerp om deur middel van die volumetriese metode die effektiwiteit van die verskillende adsorbente te bepaal.

1.6 Struktuur en vloei van verhandeling

In Hoofstuk 1 word die probleemstelling, doelstelling en doelwitte uitgelig.

Die volledige literatuurstudie is in Hoofstuk 2 waarin die agtergrond van reagense en produkte wat hulle fisiese eienskappe insluit, asook gebruike van tegnesium bespreek word. Isotoopskeiding van MoF_6 word kortliks verduidelik asook die gevare van HF,

noodhulp, persoonlike beskermende toerusting (PBT) en fisiese eienskappe van HF. Natuurlike bronne van HF, interaksie van HF met materiale en materiaalkeuse in HF omgewing word bespreek. Verder word die verskillende moontlikhede van gasskeiding en gassuiwering oorweeg en bespreek. Die keuse van adsorbente word kortliks bespreek.

In hoofstuk 3 word die eksperimentele opstelling, stap-vir-stap-metode en keuse van adsorbente bespreek. Die eksperimentele opstelling word getoon en die prosedure in detail bespreek.

In hoofstuk 4 word resultate weergegee van die toetsing van die twaalf adsorbente. Grafieke van druk en temperatuur teenoor tyd word getoon. Die adsorbeervermoë van elke adsorbent soos bereken in tabelle wat in bylae is word gegee. Die gevolgtrekkings word ook in tabelvorm bespreek. Die pad vorentoe word bespreek en redes aangevoer hoekom verdere toetse aanbeveel word. Die resultate word ook in hoofstuk 5 bespreek.

Die bronnelys volg in hoofstuk 5 met bylae in hoofstuk 6.

HOOFSTUK II:
Literatuurstudie

2 Literatuurstudie

2.1 Agtergrond

2.1.1 Molibdeen

Molibdeen (Mo) is ŉ oorgangselement met ŉ atoommassa van 95,95 g/mol. Die naam is afgelei van die Griekse woord, molybdos, wat lood beteken en die metaal is deur Peter Jacob Hjelm in 1781 geïsoleer nadat Carl Wilhelm Scheele dit in 1768 geïdentifiseer het. Molibdeen kom in groep 6, periode 5 in die d-blok, op die periodieke tabel voor. Chemies is die kenmerkende eienskap van molibdeen die buitengewone veelsydigheid met oksidasietoestande wat wissel van −II tot VI en koördinasie-getalle van 4 tot 8. Verder het die metaal ŉ hoë smeltpunt en ŉ lae koëffisiënt van termiese uitsetting (International Molybdenum Association). Aangesien konsentrasies van so min as 0,2% molibdeen lei tot ŉ drastiese toename in staalhardheid, is die grootste gebruik van molibdeen as ŉ legeringselement vir staal (Dictionary of Metals, 2012).

Daar is 35 bekende isotope van molibdeen met atoommassas wat wissel van 83 tot 117 met vier metastabiele isomere. Sewe isotope van molibdeen kom natuurlik voor. Die atoommassa van isotope wat natuurlik voorkom word in Tabel 2.1 getoon.

Tabel 2.1: Isotope van molibdeen wat natuurlik voorkom (Royal Society of Chemistry, 1999)

Isotoop	^{92}Mo	^{94}Mo	^{95}Mo	^{96}Mo	^{97}Mo	^{98}Mo	^{100}Mo
Atoommassa	91,907	93,905	94,906	95,905	96,909	97,905	99,907
Voorkoms %	14,77	9,23	15,9	16,68	9,56	24,19	9,67

Die isotoop van molibdeen wat die algemeenste toepassing het, is molibdeen-99, wat ŉ splytingsproduk is.

2.1.2 Fluoor

Reeds in die 1500's, het Georgius Agricola, ŉ Duitse mineraloog, ŉ kristallyne materiaal beskryf wat gehelp het dat sommige erts teen laer temperature smelt. Hy noem dit *fluores*, van die Latynse *fleure*, wat beteken "om te vloei" (Hoover, 1950).Vandag is dit as vloeispaat, fluoriet, kalsiumfluoried of CaF_2 bekend. In 1771 het Carl Wilhelm Scheele bevind dat die binneste oppervlak van ŉ glasretort deur kalsiumfluoried geërodeer word. As een van die reuse van chemie in die 18de eeu het hy ongelooflike insig en maak die gevolgtrekking dat CaF_2 ŉ suur bevat wat hy fluoorsuur noem (Lennartson, 2017).

Die voorloper tot basiese fluoor is anhidriese waterstoffluoried met ŉ kookpunt van 19 °C. Beide die vloeistof en damp is giftig, met die vloeistof wat diep brandwonde veroorsaak. Soos beskryf deur Thenard en Gay-Lussac (1809) het Sir Humphry Davy, Louis-Joseph Gay Lussac en Louis-Jacques Thénard na die inaseming van waterstoffluoried intens gely. Davy het beserings aan sy oë en naels opgedoen. George Knox en sy broer, Thomas Knox, het ook aan fluoorsuurvergiftiging gely.Tydens ondersoeke, vermoedelik as gevolg van die inaseming van HF, het Thomas Knox byna gesterf terwyl Paul Louyet en Jerome Nickles gesterf het (Toon, 2011).

Fluoor is in 1886 deur Ferdinand Frederick Henri Moissan geproduseer. Sy werk vorm die basis van die moderne fluoorelektrolise. Hy ontvang die Nobelprys vir sy werk in 1906 (Toon, 2011).

Fluoor, ŉ liggeel gas met ŉ molekulêre massa van 38 g/mol het ŉ skerp reuk. Die element F, kom regs bo in die periodieke tabel voor, wat dit die mees reaktiewe element maak. In Tabel 2.2 word die fisiese eienskappe van fluoor gegee. Dit oksideer die meeste materiaal waarmee dit in aanraking kom, insluitend plastiek, reduseermiddels

en organiese materiaal. Dit kan ook reageer met vlambare materiaal en spontane ontbranding kan plaasvind (PubChem, 2005).

Tabel 2.2: Fisiese eienskappe van F_2

Fisiese eienskap	Waarde
Smeltpunt	-219,61 °C
Kookpunt	-188,11 °C
Digtheid – gas	1 670 kg/m^3

2.1.3 Molibdeenheksafluoried MoF_6

By kamertemperatuur is MoF_6 ŉ kleurlose, vlugtige vloeistof met ŉ molêre massa van 209,93 g/mol. MoF_6 word gebruik in sy gasvorm om isotope van molibdeen te skei deur gebruik te maak van die aërodinamiese-skeidingsproses om sodoende Mo-99 te vervaardig. Die MoF_6 hidroliseer vinnig om waterstoffluoried (HF) en molibdeenoksiede te vorm. Die vorming van HF gaan gepaard met die reduksie van MoF_6 na laer oksidasietoestande en moet vermy word. Oor die algemeen word die vervaardiging van MoF_6 gedoen deur molibdeenmetaal (Mo) te laat reageer met fluoorgas (F_2). Aangesien F_2(g) moeilik verkrygbaar is in groot hoeveelhede word aanbeveel dat dit vervaardig word om toevoer te verseker. F_2(g) is afkomstig van HF, wat weer van kalsiumfluoried (CaF_2) afkomstig is. Om deurlopende produksie van F_2 te verseker moet ŉ bron van fluorieterts, wat ŉ bron van CaF_2 is, verkry word. Plaaslik word F_2 en MoF_6 deur Necsa vervaardig. Die fisiese eienskappe van MoF_6 word opsommenderwys in Tabel 2.3 weergegee.

Tabel 2.3: Fisiese eienskappe van MoF_6 (Yaws, 2010)

Fisiese eienskap	Waarde of vergelyking
Smeltpunt	17,5 °C
Kookpunt	34 °C
Digtheid - vastestof	2,540 g/ml
Dampdruk - gas	$P = 10^{\left(A - \frac{B}{(T+C)}\right)}$ (69,939 kPa by 298 K)
Dampdruk - vloeistof	$\log P^*_{\mathrm{MoF_6}} = 7{,}766 - 14499{,}9 \cdot T^{-1}$ (in mmHg)
Warmte geleidingsvermoë	$Y = A + B \cdot T + C \cdot T^2 + D \cdot T^3$ $3{,}123 \cdot 10^{-2}$ W/(m·K) by 25 °C (298 K)
Warmtekapasiteit	$C_{pg} = 41{,}68 + 0{,}41T - 6{,}03 \cdot 10^{-4}T^2 + 4{,}03 \cdot 10^{-7}T^3 - 1 \cdot 10^{-10}T^4$ kJ/(kmol·K)
Viskositeit	$n_{gas} = A + B\,T + C\,T^2$ (µP, T in Kelvin)

Volgens Zarkova en Hohm (2002) is akkurate en sistematiese metings van die termofisiese eienskappe van swaar gasse soos MoF_6, veral by hoë temperature, gevaarlik en duur. Die alternatief is om die termofisiese eienskappe deur middel van betroubare, intermolekulêre-interaksiepotensiaal te bereken. Die grootste probleem met MoF_6, wat ŉ swaar globulêre molekule is, is dat dit onmoontlik is om gelyktydig sy ewewig en vervoereienskappe deur middel van net een, eenvoudige, sferiese, simmetriese potensiaal te pas. Die algemene manier om hierdie probleem op te los is om ŉ enkele, effektiewe, isotropies intermolekulêre potensiaal met onveranderlike parameters wat ŉ goeie passing het met óf die gemete tweede viriaalkoëffisiënt $B(T)$ óf viskositeit $\eta(T)$, te kry.

2.1.3.1 Dampdruk van MoF_6

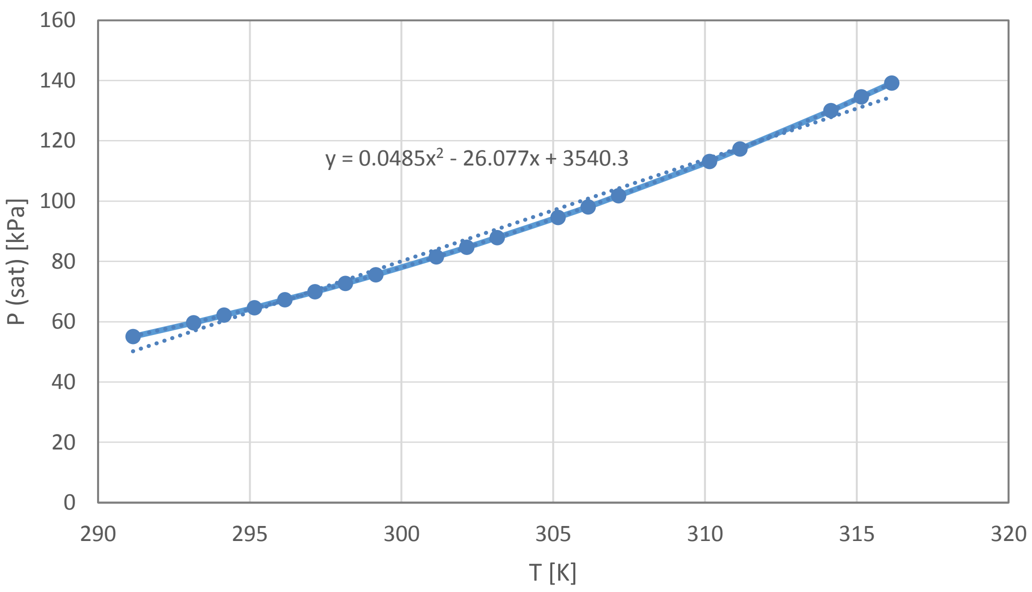
Die eksakte waarde van die dampdruk van MoF_6 by verskillende temperature is uiters belangrik in die aërodinamiese skeidingsproses. Die dampdruk van MoF_6 kan bereken word deur middel van Antoine vergelyking wat uit Yaws (2010) geneem is. Dié vergelyking (2.1) is slegs van 207,65 K (-65,5 ˚C) tot 307,15 K (34 ˚C) geldig. Die vergelyking is soos volg:

$$P = 10^{\left(A - \frac{B}{(T+C)}\right)} \tag{2.1}$$

Met temperatuur (T) in Kelvin, die verbindingspesifieke konstantes A, B en C met A = 7,06989, B = 1018,54 en C = 209,143.

Die dampdruk is by 298 K (25 °C) bereken as 69,939 kPa.

Data soos verskaf deur Osborne *et al*. (1966) is gebruik om grafiek, Figuur 2.1: te trek:



Figuur 2.1: Dampdruk van MoF_6 (Osborne *et al.*, 1966)

Om die akkuraatheid van die kwadratiese passing te verifieer is die dampdruk van MoF_6 by 298 K (25 °C) bereken om sodoende dit te vergelyk met die waarde van 69,939 kPa wat met Antoine vergelyking bereken is. Die berekende waarde met die passing is 76,348 kPa wat 9,16 % van die waarde soos bereken deur Antoine vergelyking verskil.

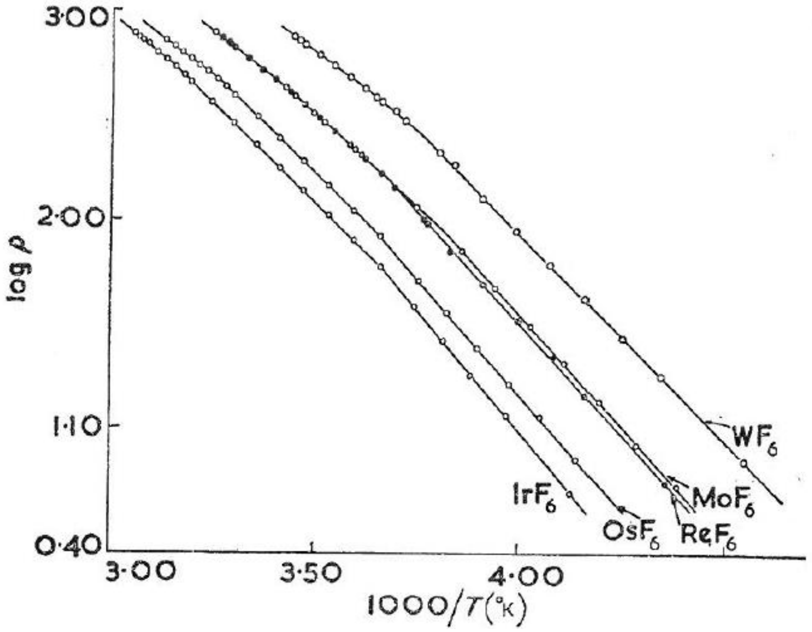
Volgens Cady en Hargreave (1961) is die vergelyking vir dampdruk van MoF_6 by verskillende temperature soos in Tabel 2.4 weergegee:

Tabel 2.4: Vergelykings van dampdruk van MoF_6 by verskillende temperature (Cady en Hargreave, 1961)

Fase	Vastestof	Vastestof	Vloeistof
Temperatuur	- 60 °C tot – 8,7 °C	- 8,7 °C tot 17,4 °C	17,4 °C tot – 34 °C
Vergelyking	$log\ P_{mm} = 10{,}216 - \frac{2166{,}5}{T}$	$log\ P_{mm} = 8{,}533 - \frac{1722{,}9}{T}$	$\log P_{mm} = 7{,}766 - \frac{1499{,}9}{T}$

Temperatuur in Kelvin.

In Figuur 2.2 het Cady en Hargreave (1961) die dampdruk van die verskillende fluoriede geplot om die noue verwantskap tussen die fluoriede te demonstreer. In die grafiek is die nou verwantskap tussen veral MoF_6 en ReF_6 duidelik.



Figuur 2.2: Dampdrukkrommes van verskillende fluoriede (Cady en Hargreave, 1961)

2.1.3.2 Warmtekapasiteit van MoF_6

Die formule (2.2) uit Yaws (2010) is gebruik om die warmtekapasiteit te bereken. Die berekende waarde is 120,636 kJ/(kmol·K) by 25 °C wat uitstekend met die waarde soos gegee deur Osborne *et al (*1966*)* van 120,664 kJ/(kmol·K) by 25 °C vergelyk.

$$C_{pg}(T) = 41{,}68 + 0{,}4113\,T - 6{,}026\cdot10^{-4}\,T^2 + 4{,}031\cdot10{-}7\,T^3 - 1{,}0025\cdot10^{-10}\cdot T^4 \text{ kJ/(kmol·K)} \quad (2.2)$$

2.1.3.3 Warmtegeleidingsvermoë van MoF_6

Die warmtegeleidingsvermoë van MoF_6 is 0,003123 W/(m·K) by 25 °C (298 K) en is bereken deur die formule (2.3) uit Yaws (2010) te gebruik.

$$k = A + B\cdot T + C\cdot T^2 + D\cdot T^3 \quad (2.3)$$

met A = 0,0393544 W/(m·K), B = 0,000238089 W/(m·K^2) , C = 1,70239 x 10^7 W/(m·K^3) en D = -5,84935 x 10^{-10} W/(m·K^4) en T in Kelvin.

2.1.3.4 Viskositeit van MoF_6

Die eksakte waarde van die viskositeit van MoF_6 by verskillende temperature is baie belangrik in die aërodinamiese skeidingsproses. Uit die data soos verskaf deur Zarkova en Hohm (2002), is die krommepassing

$$\mu(T) = -6{,}223042\text{x}10^{-12}(T)^2 + 4{,}700922\text{x}10^{-8}(T) + 9{,}932960\text{x}10^{-7} \text{ Pa·s} \quad (2.4)$$

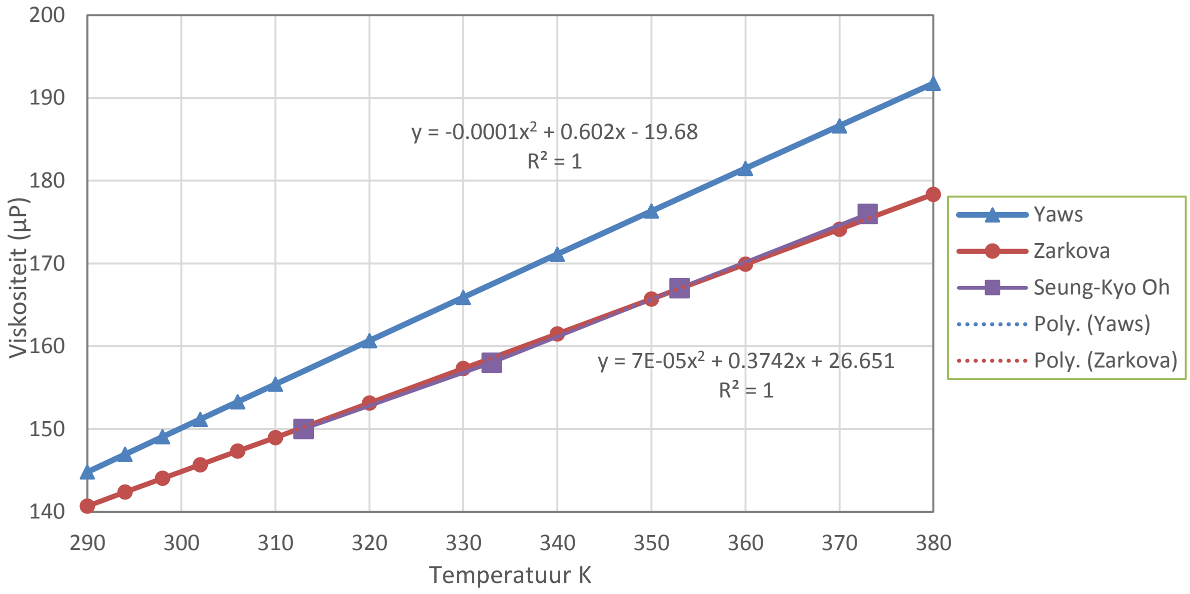
met T in Kelvin. Die krommepassing is geldig vir gebied 200 K tot 840 K.

Die waardes soos gebruik deur Zarkova en Hohm is gebruik om die volgende vergelyking af te lei soos geïllustreer deur krommes in Figuur 2.3:

$$\mu_{gas} = 26{,}651 + 0{,}3742\cdot T + 6{,}5909\cdot10^{-5}\cdot T^2 \quad (2.5)$$

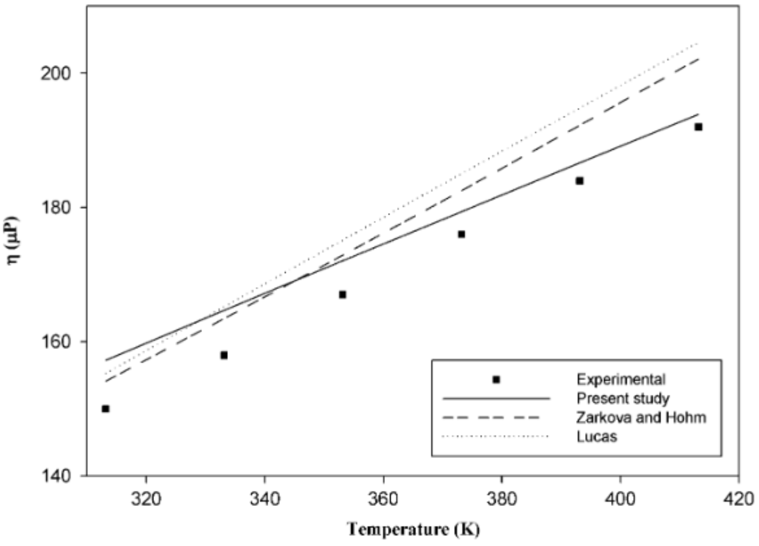
$$\mu_{gas} = 144{,}0332 \text{ µP } T = 298 \text{ K} \quad (2.6)$$

met T in Kelvin.



Figuur 2.3: Viskositeit van MoF_6

Vergelyking van die gemete en berekende viskositeit van MoF_6 word geïllustreer in Figuur 2.4 soos gevind in artikel deur Oh (2008). Alhoewel die berekende viskositeitwaardes soos bepaal deur al drie metodes neig om groter te wees as die eksperimentele waardes is die metode deur Oh voorgestel die naaste aan eksperimentele waardes by hoër temperature.



Figuur 2.4: Vergelyking tussen gemete en berekende viskositeit van MoF_6 (Oh, 2008)

In die artikel gebruik Oh die Kihara sferiese kernpotensiaal, getoon in 2.7, wat toegepas word op swaar, bolvormige molekules.

$$U = 4\varepsilon\left[\left(\frac{\sigma - 2a}{r - 2a}\right)^{12} - \left(\frac{\sigma - 2a}{r - 2a}\right)^{6}\right] \qquad (2.7)$$

U en *r* is onderskeidelik die potensiële energie en skeidingafstand tussen molekules 1 en 2, σ is botsingkansvlak in Å, ε is potensiële putdiepte in J, en *a* is harde kernradius in in Å

2.1.4 Ander molibdeenfluoriede

As gevolg van die vele oksidasietoestande van molibdeen bestaan verskeie fluoriede, waarvan die belangrikste MoF_3, MoF_4, MoF_5 en MoF_6 is. Metaalhaliedverbindings is sterk ionies (Morris, 1996).

Tydens die aërodinamiese skeidingsproses is die reduksie van MoF_6 ŉ sterk moontlikheid. Die kleur van die verskillende fluoriede kan gebruik word vir identifikasiedoeleindes. Die reduksie van MoF_6 lewer MoF_5 — ŉ geel, higroskopiese stof met ŉ molêre massa van 190,96 g/mol. MoF_5 ontbind om MoF_4 en MoF_6 by 165 °C te vorm. Die smeltpunt van MoF_5 is 66 °C, die kookpunt 215,6 °C en die digtheid by kamertemperatuur is 3 500 kg/m^3.

Die reduksie van MoF_6 of MoF_5 vorm MoF_4, ŉ ligte groen stof met ŉ molêre massa van 171,96 g/mol. MoF_4 kan ook voorberei word deur die reaksie van $Mo(CO)_6$ met fluoorgas by temperatuur onder 65 °C en ontbinding van die produk na MoF_5 en MoF_4 by temperature bo 100 °C (Weaver & Friedman, 1967).

MoF_3 kan gevorm word deur die reduksie van MoF_6. MoF_3 (en waterstof) kan ook geproduseer word deur die reaksie van Mo-metaal met HF by 225 °C vir 24 uur. Die kleur van MoF_3 wissel tussen oker, liggroen, grys, swart, donkerrooi, geelbruin, bruin en selfs donkerpienk. MoF_3 het ŉ smeltpunt hoër as 600 °C, ŉ molêre massa van 152,96 g/mol en ŉ digtheid van 4 640 kg/m^3 (Greenwood & Earnshaw, 1997).

2.1.5 Oksifluoriede

McNamara *et al.* (2011) skryf dat molibdeen in ŉ verskeidenheid van oksidasietoestande gevind kan word. Die vlugtige oksifluoriede van belang volgens die skrywers is $MoOF_4$, ŉ wit vastestof en MoO_2F_2 wat by 270 °C sublimeer. $MoOF_4$ met ŉ smeltpunt van - 98 °C en ŉ kookpunt van 180 °C vorm volgens vergelykings 2.8 en 2.9 wanneer MoF_6 met onderskeidelik O_2 en H_2O reageer (Brookman *et al.*, 1958).

$$MoF_6 + O_2 \rightarrow MoOF_4 + F_2 \quad (2.8)$$

$$MoF_6 + H_20 \rightarrow MoOF_4 + 2HF \quad (2.9)$$

Daar is ŉ sterk moontlikheid dat oksifluoriedes tydens die skeidingsproses kan vorm as gevolg van die onvermydelike voorkoms van suurstof en watermolekules.

Aldous en Lightfoot (2012), beskryf die sintese en kristalstruktuur van vyf nuwe molibdeenoksifluoriede waarvan drie nuwe strukturele eenhede het nl. $Mo_2O_4F_2(C_2H_8N_2)_2$ ŉ dimeriese eenheid met Mo^{4+}, ŉ tetrameriese eenheid $[Mo_4O_8F_{10}]^{6-}$ met Mo^{5+} en ŉ oneindige ketting $[MoOF_3]^-$ eenheid met Mo^{4+}. Mo-Mo binding is in elk van die nuwe bou-eenhede waargeneem. In navorsing gedoen deur Bogdanov *et al.* (2016) word bevestig dat $A^+{}_2MoO_2F_4$ ortorombies is ongeag die katioon se samestelling. Verder bevind Bogdanov *et al.* (2016) dat by molibdeenoksifluoriedes protone makliker vervang word deur deuterone in vergelyking met ŉ verwante wolframoksifluoriedes, soos blyk uit ŉ hoër mate van deuterasie (95% teenoor 85%) vir dieselfde aantal rekristallisasie in swaar water.

Adil *et al.* (2010), beweer dat die ontwikkeling van oksifluoriede ŉ gebied is wat nog in sy kinderskoene is, ryp vir verdere en wyer verkenning, ryk aan nuwe kristal chemiese eienskappe en, miskien, met groot potensiaal vir die ontwikkeling van nuwe fisiese en chemiese funksies.

2.1.6 Helium

Helium word as draergas tydens die aërodinamiese skeidingsproses gebruik. Dit is dus belangrik om die fisiese eienskappe van helium te bestudeer.

Helium se kookpunt en smeltpunt is die laagste van al die elemente soos gesien kan word in Tabel 2.5. Dit bestaan slegs as 'n gas, behalwe by buitengewone toestande.

Tabel 2.5: Fisiese eienskappe van helium (Yaws, 2010)

Fisiese eienskap	Waarde
Smeltpunt	-272 °C
Kookpunt	-269 °C
Digtheid	0,00018 g/cm^3

2.1.6.1 Viskositeit van helium

Daar word aanbeveel dat die volgende vergelyking (2.10) uit Yaws gebruik word:

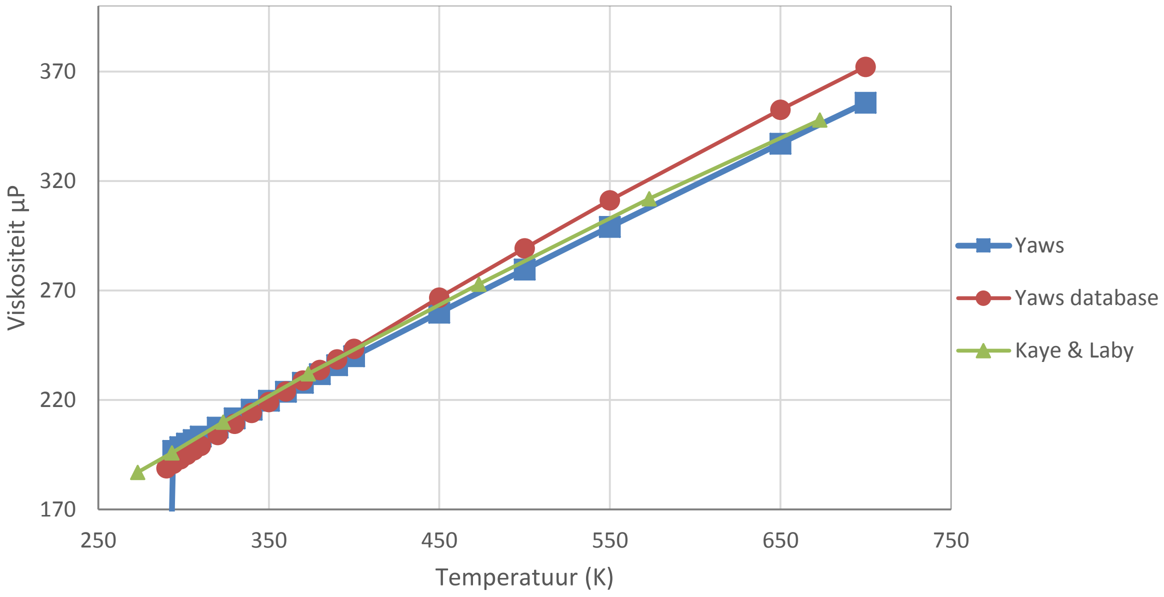
$$\mu = A + B \cdot T + C \cdot T^2 \quad (2.10)$$

met A = 71,094, B= 4,43 x 10^{-1} en C = -5,18 x 10^{-5}.

Die waarde soos bereken deur middel van formule by 298,15 K (25 °C), nl. 198,63 µP, vergelyk skitterend met die eksperimentele waarde soos gedokumenteer deur Kestin *et al*. (1972) nl. 198,82 ± 0,02 µP.

Bogenoemde formule is geldig vir T_{Min} = 150 K tot T_{Maks} = 2000 K. Waardes van μ_{gas} by T_{min} is 136,41 µP en by T_{maks} 750,41 µP.

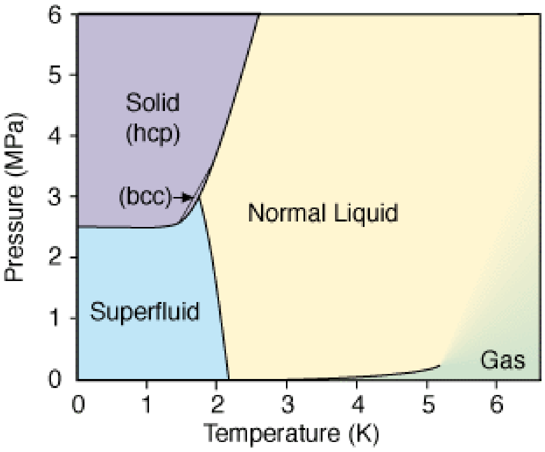
In Figuur 2.5 word die viskositeit soos bereken deur vergelyking 2.10, uit Yaws se databasis en soos gegee deur Kaye en Laby (1995) geïllustreer. Soos gesien kan word in grafiek is die waardes van drie grafieke onder 400 K feitlik dieselfde. Die viskositeit van helium as draergas in die skeidingsproses is van kardinale belang.



Figuur 2.5: Viskositeit van helium

2.1.6.2 Fasediagram van helium

Figuur 2.6 illustreer die fasediagram van helium soos getoon deur Thuneberg (2003).



Figuur 2.6: Fasediagram van helium (Thuneberg, 2003)

2.1.7 Viskositeit van mengsels

In die aërodinamiese skeidingsproses word ŉ mengsel van helium en molibdeenheksafluoried gebruik. Die eksakte waarde van die viskositeit van die mengsel is baie belangrik in die proses. Volgens die bekende boek van Perry (2008), kan Wilke se vergelyking nie gebruik word in mengsels waar helium of waterstof teenwoordig is nie (Lin *et al.*, 2008). Die metode deur Thomas A. Davidson (1993), word aanbeveel om viskositeit van gasmengsels te bepaal. Davidson neem die momentumfraksie in aanmerking.

Die momentumfraksie, y_i word bereken deur

$$y_{i=} \frac{x_i\sqrt{M_i}}{\sum_i(x_i\sqrt{M_i})} \qquad (2.11)$$

met molfraksie, x_i en M_i molekulêre massa te gebruik.

Die gemiddelde effektiwiteit van momentumoordrag word bereken deur;

$$E_{1,2} = \frac{2\cdot\sqrt{m_1}\cdot\sqrt{m_2}}{(m_1+m_2)} \qquad (2.12)$$

met $m_1\ en\ m_2$ molêre massa te gebruik.

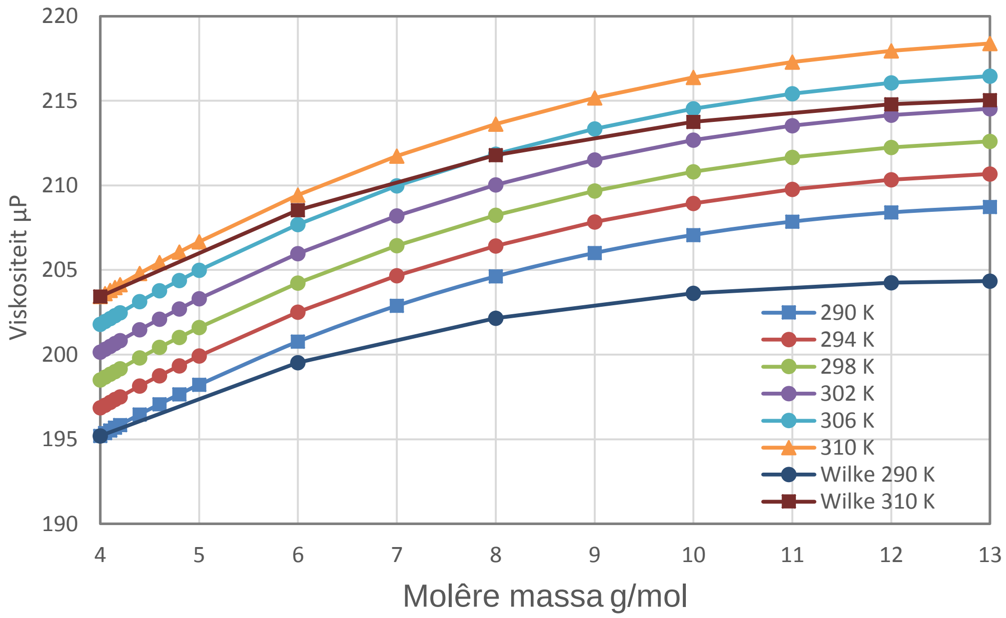
Vloeibaarheid van eenvoudige binêre mengsels word bereken deur die volgende formule:

$$f_{12} = \frac{y_1^2}{\mu_1} + 2\cdot\frac{y_1\cdot y_2}{\sqrt{\mu_1}\cdot\sqrt{\mu_2}}\cdot E_{1,2}^A + \frac{y_2^2}{\mu_2} \text{ met } \mu_{12} = \frac{1}{f_{12}} \qquad (2.13)$$

Die waarde van empiriese konstante A is as $\frac{1}{3}$ gekies as eenvoudig en konsekwent volgens data. Die momentumfraksie y_1 en y_2 van komponent is bereken deur vergelyking 2.11 te gebruik. μ_1 en μ_2 is die viskositeit van die twee komponente. $E_{1,2}$

is die gemiddelde effektiwiteit van momentumoordrag wat bereken is deur vergelyking 2.12 te gebruik.

Vergelyking 2.13 is gebruik om die viskositeit van die helium-MoF_6 gasmengsel met verskillende molmassas en by verskillende temperature te bereken. Die verband tussen molêre massa, viskositeit en temperatuur word in Figuur 2.7 geïllustreer. Wilke se vergelyking is gebruik om die viskositeit te bereken by 290 K en 310 K. Soos in Figuur 2.7 gesien kan word is die verskil tussen waardes soos bereken deur die Davidson se vergelyking en Wilke se vergelyking is veral groot wanneer die molêre massa van die mengsel toeneem.

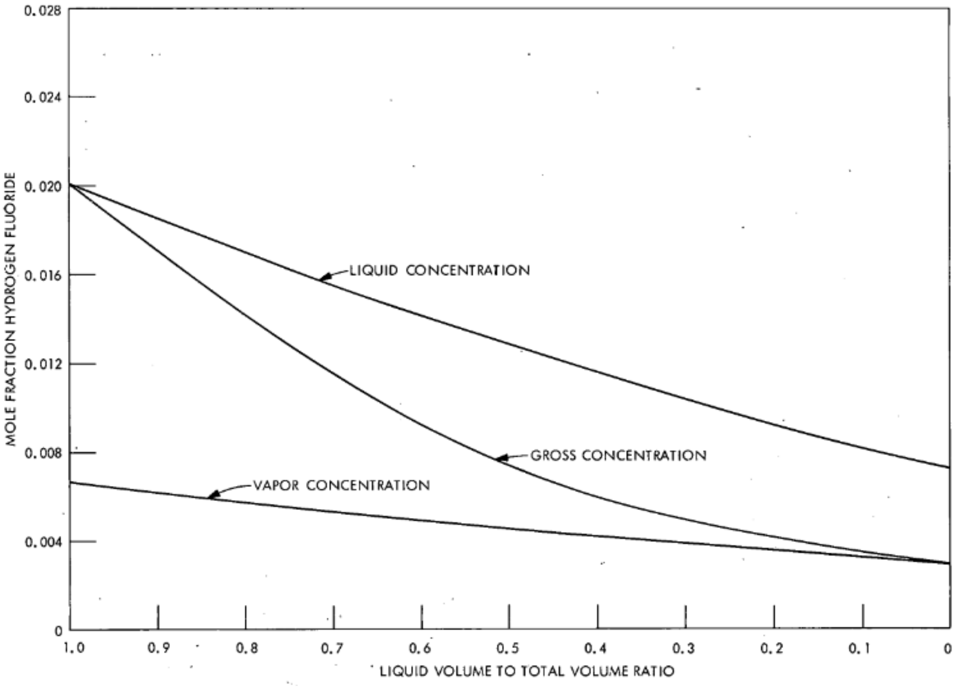


Figuur 2.7:Viskositeit van MoF_6-heliumgasmengsel

Die Gay-Berne (GB) potensiaalmodel is interessant en nuttig om werklike sisteme te bestudeer. Anisotrope binêre mengsels is ondersoek en die integrale vergelyking metode is toegepas en deur die Percus-Yevick (PY) integrale vergelyking numeries opgelos. Die uitsettingskoëffisiënte van korrelasie funksies is verkry om die termodinamiese eienskappe te bereken. Resultate is vergelyk met beskikbare eksperimentele data en dui daarop dat die GB-potensiaalmodel in staat is om die

termodinamiese eienskappe van binêre mengsels met aanvaarbare akkuraatheid te voorspel. Die GB-potensiaal kan as anisotroop beskou word en ʼn verskuifde weergawe van Lennard-Jones interaksie wat vir een-assige molekules geskik is (Khordad, 2012).

Figuur 2.8 is ʼn grafiese voorstelling van die verwagte bruto, vloeibare en dampsamestellings van ʼn tipiese molibdeenheksafluoried-waterstoffluoried binêre oplossing. Let daarop dat wanneer die verhouding van vloeibare volume tot totale volume gelyk is aan een (alles vloeistof), die bruto en vloeibare samestellings gelyk is. Wanneer die verhouding van vloeibare volume tot totale volume gelyk is aan nul (alles damp), is die bruto en dampsamestellings gelyk.



Figuur 2.8: Molfraksie HF vir ʼn tipiese MoF_6-HF-oplossing (Hedge, 1968)

2.1.8 Gebruike van tegnesium-99

Tegnesium-99, ʼn belangrike isotoop wat in kerngeneeskunde gebruik word, is ʼn produk van siklotronbombardement van molibdeen en word deur die radio-aktiewe verval van die ouer-isotoop, molibdeen-99 gevorm (Morreale *et al.,* 2011). Hierdie proses produseer molibdeen-99, ʼn radionuklied met ʼn langer halfleeftyd (2,75 dae), wat radio-aktief na Tc-99m verval. Tc-99m se kort half leeftyd van 6,01 h beperk die vervoer in

die suiwer vorm. Die half leeftyd van Mo-99 is egter 66 h en daarom is dit moontlik om Tc-99m verskeie kere oor ŉ week by ŉ mediese fasiliteit te onttrek. Die vooruitgang in diagnostiese kerngeneeskunde sedert die ontdekking van Tc-99m is inderdaad fenomenaal. Meer as 80% van die radioaktiewe farmaseutika maak van hierdie metastabiele radionuklied met sy kort lewensduur gebruik. Tc-99m is inderdaad die werkesel van diagnostiese kerngeneeskunde en dien as radio-aktiewe spoorder wat deur mediese toerusting (gamma kameras) in die liggaam opgespoor kan word (Banerjee *et al.*, 2001).

2.2 Isotoopskeiding van MoF_6

2.2.1 Genesis-tegnologie

Die huidige ASP-tegnologie het ontwikkel vanuit Genesis-tegnologie wat reeds vir die eerste keer in wetenskaplike media in die 1970's beskryf is (Wikdahl,1978). Dis ŉ proses waar die skeiding van gasmengsels volgens hul molekulêre gewig geskied.

Die meetkundige dimensies van die skeidingtoestel is relatief klein met ŉ lengte van ongeveer 100 mm en ŉ deursnee van 5 mm tot 12 mm. Die massadeurvoer per toestel is dus klein met ŉ relatief hoë energieverbruik. Die mengsel word aan sentrifugale krag wat in ŉ keëlvormige draaikolk toegedien word, blootgestel. ŉ Absolute gasdruk van ongeveer 5 tot 1000 mm kwik en ŉ drukverhouding van ongeveer 1,5 tot 10 tussen gasinlaat en –uitlaat word gebruik. Dit is belangrik dat die drukval tussen die gasinlaat en die uitlaat voldoende is om ŉ versnelling in die snelheid van die gas te veroorsaak. Die energie wat nodig is om die deeltjies te versnel en sodoende die skeiding moontlik te maak, word uit die drukval verkry. Dit is die rede waarom die drukverhouding redelik kritiek vir die proses is. Daar is egter geen bewegende of roterende dele in die toestel self nie. Verder is daar geen spesifieke materiaalvereistes vir die toestel nie.

Die hoër molekulêre gewigfraksies word by die buitenste gedeelte of periferie van die draaikolk geskei, en die laer molekulêre of gewigfraksies word by die binneste of kerngedeelte van die draaikolk geskei. Die sentrifugale kragte in die draaikolk veroorsaak dat die swaarder molekulêre gewigdeeltjies na die periferie van die draaikolk diffundeer en die ligter molekulêre gewigdeeltjies in die sentrale of kerngedeelte van die draaikolk diffundeer. Die kerngedeelte van die draaikolk is teen ŉ laer gasdruk as die periferie. Die buitenste gedeelte en kerngedeelte van die draaikolk word by teenoorgestelde ente van die skeidingskamer afgetrek en dus vorm twee teenstroomstrome binne die skeidingskamer. ŉ Buitenste gedeelte wat in een rigting vloei na die periferie of een einduitlaat, en ŉ kerngedeelte vloei in die teenoorgestelde

rigting, na die kerngedeelte of die ander einduitlaat. Dit strek die sone van skeiding aansienlik uit.

Die gas word tangensiaal deur die wand in die toestel ingespuit deur eweredig gespasieerde ingange — gewoonlik is twee tot ses gasingange voldoende. Die lengte van die skeidingskamer tesame met die deursnee bepaal die volume van die skeidingskamer, en die volume bepaal op sy beurt weer die retensietyd van die gasse daarin, wat natuurlik voldoende moet wees vir die verlangde skeiding. Die retensietyd van die prosesgas binne die toestel is baie kort – in die orde van millisekondes. Die skeidingfaktor per toestel is dus baie laag.

Dit is voordelig om die gasmengsel te meng met ŉ inerte gas van laer molekulêre of atoomgewig sodat die soniese snelheid van die gas, as gevolg van die verminderde gemiddelde molekulêre gewig van die mengsel, verhoog. Omdat die molekulêre of atoomgewig so min as moontlik moet wees word waterstof en helium verkies.

Na Genesis-skeiding kan die inerte gas deur konvensionele tegnieke soos kondensasie van die swaarder of minder vlugtige geskeide komponente geskei word.

2.2.2 ASP-skeiding

ASP-tegnologie is deur Klydon, vanuit dieselfde beginsels as die Genesis-tegnologie, ontwikkel. Dit word gebruik vir die skeiding van komponente van ŉ gasmengsel of van verskillende isotope van ŉ spesifieke, gasagtige verbinding gebaseer op die massaverskil en molekulêre struktuurverskille van die gas of die isotoopkomponente.

Skeiding word moontlik gemaak deur hoëspoed, sentrifugale rotasie van die gas of isotoopmengsel in ŉ skeidingtoestel waar die prosesgas deur die statiese wand van die ASP-skeier ingespuit word. Die skeidingtoestel kan dus as ŉ stilstaande-wandsentrifuge beskryf word. Skeiding geskied naby aan die geometriese as van die houer en die verskillende gasvloeifraksies word aan die endpunte van die ASP-skeier onttrek. Alle sentrifuge-tegnologie maak staat op klein verskille in massa om gas met geselekteerde isotope te verryk of van geselekteerde isotope te stroop.

Kommersiële sentrifuge-tegnologie maak gebruik van ŉ vinnig-draaiende meganiese houer, maar stilstaandewandsentrifuge-tegnologie maak staat op hoë-spoedgasrotasie in ŉ statiese ASP-skeier. Dit verminder grootliks die aantal bewegende dele, en sodoende die bedryfskoste en onderhoudskoste (Ronander *et al.*, 2012).

Een van die voordele van die ASP-gasskeiding is dat dit ŉ kontinue proses is, waar druk beheer word en die toerusting hoofsaaklik pype en kompressors is met geen groot drukvate nie. Die gasskeidingfaktore kan deur toetsing op ŉ toetsbank voor kommersialisering van die stelsel bepaal/bewys word. ŉ Verdere voordeel is dat segmentontwerp as basis gebruik word met dieselfde tipe toerusting as in al die ander segmente. Dis makliker om druk eerder as temperatuur te beheer en in die proses word slegs die druk beheer. Die proses word egter gekompliseer deurdat akkurate molmassameting nodig is vir prosesbeheer.

Skeidingsfaktore vir verskillende metodes word in Tabel 2.6 getoon. Die *Separative Work Units* (SWU) is ŉ eenheid wat die energieverbruik in die uraanverrykingsproses definieer met $\frac{kWh}{SWU} = \frac{4RT}{M(1-\alpha)^{\,2}}$ uit die termodinamika.

Tabel 2.6: Tipiese skeidingsfaktore vir uraan (Whitaker 2005)

Metode	Skeidingsfaktor	E/dU kWh/kg SWU
Gasdiffusie	1,004	2 400
Gassentrifuge	>1.3	50 – 100
Aërodinamiesevorteksbuis	1,03	3 500
Aërodinamieseskeidingsspuitstuk	1,015	2 500 – 3 500
Chemiese uitruilreaksie	1,0026	360
Laser	2 – 6	150

2.3 HF

2.3.1 Gevare van HF

Die vorming en vrystelling van waterstoffluoried is uiters gevaarlik en moet ten alle koste vermy word. Die gevaar van HF is as gevolg van die fisies-chemiese eienskappe van HF en die spesifieke aanval van HF op lewende weefsel. Anhidriese HF sowel as waterstoffluoried-oplossings is hoogs korrosief teenoor lewende weefsel. Inaseming, inname of velkontak met beide is dus uiters gevaarlik. Die verlaging van serumkalsium (hipokalsemie) is een van die ernstigste gevolge van erge blootstelling aan HF. Dit moet in ag geneem word in alle gevalle van inaseming, inname en wanneer velbrandwonde 160 cm^2 oorskry. As gevolg van hipokalsemie kan kardiale aritmie ontstaan. Dit kan verder lei tot akute lewensbedreigende lewer-, nier- en metabolisme-versteuring as gevolg van die binding van fluoried met kalsium- en magnesium-ione. Akute simptome van HF-inaseming sluit in hoes, verstikking, bors wat toetrek, koors, kouekoors, sianose (blou velkleur) en longedeem kan ontstaan (Peters & Miethchen, 1996).

As HF ingeasem word in die gasfase word dit feitlik volledig in die boonste lugweë geabsorbeer. Die halfleeftyd van fluoried in die mens is 8 tot 20 jaar in plasma en been. Die opmerking word gemaak dat mense deur voedsel en drinkwater 5 640 μg en tandepasta 300 μg F^-/dag inneem, teenoor die 50 μg F^-/dag uit die lug (Coleman *et al*., 2005).

2.3.2 Noodhulp

As velkontak met HF plaasgevind het moet die blootgestelde vel onmiddellik (binne die eerste minuut ná HF blootstelling) met groot hoeveelhede, vloeiende water afgespoel word. Spoel deeglik vir 5 minute. Dit is genoeg om HF effektief van die vel te verwyder. Bykomende spoeltyd is onnodig en vertraag verdere behandeling. Hoewel spoel effektief is vir die verwydering van oppervlaksuur, het dit geen invloed op die F^- wat reeds die vel binne gedring het nie (Segal, 2000). Verwyder besoedelde klere terwyl spoeling met water voortgaan. Na deeglike afspoeling moet die blootgestelde vel met

kalsiumglukonaatgel gemasseer word totdat die pyn verdwyn. Eagleson (1993) beweer dat dit die beste is om na HF velkontak die vel onmiddellik met water af te spoel en die brandwonde dan met 2 tot 3% ammoniakoplossing vir 1 tot 2 uur met kort onderbrekings te week, of met kompresse geweek in hierdie oplossing te behandel. Oop wonde moet nie aan ammoniak blootgestel word nie. Die behandeling van brandwonde met 20%-magnesiumsulfaatoplossing of 5%-natriumwaterstofkarbonaatoplossing mag ook nuttig wees. Behandeling moet onmiddellik na kontak begin aangesien latere pogings om die suur te neutraliseer nie suksesvol is nie. Chroniese opname van fluoorbevattende-soutstof en klein konsentrasies van HF lei tot CaF_2 deponering in die beenmatriks, wat immobiliteit en pyn veroorsaak (fluorose) (Eagleson,1993).

In die geval van oogkontak, moet die oë deeglik gespoel word, terwyl die ooglede heeltemal oopgehou word. Die oë moet nie gevryf word nie.

Indien ʼn persoon HF ingeasem het, moet die persoon na vars lug geneem word en met deksametasoonaërosol behandel word. As die slagoffer asemhalingsprobleme ondervind, moet suurstof toegedien word. Pasiënte wat HF ingeasem het, moet vir ten minste 24 uur gemoniteer word (Peters & Miethchen, 1996).

2.3.3 Persoonlike beskermende toerusting (PBT)

In ʼn dokument gepubliseer deur die Nasionale Beroepsgesondheid- en Veiligheid-Kommissie van Australië (1989) word aanbeveel dat werkers veiligheidsbrille, chemiese veiligheidsbrille, gesigskilde, hoede, oorpakke met langmoue, lang voorskote en veiligheidstewels wat gemaak is van materiaal bestand teen HF bv. PVC, Viton® of neopreen moet dra.

Handskoene moet slegs vir HF gebruik word en moet voor gebruik deeglik geïnspekteer word want selfs die kleinste gaatjie kan lei tot lekkasie en blootstelling. As handskoene besmet word met HF, verwyder dit dadelik, was hande deeglik, en inspekteer hande vir enige teken van besmetting. Besmette handskoene moet hanteer word soos HF-afval. ʼn Tweede nitrielhandskoen moet onder die handskoene vir beskerming teen lekkasies gedra word. Neopreen- en butielhandskoene is bekend as beskerming teen fluoorsuur,

maar dit is belangrik om die vervaardiger se gids te raadpleeg by die keuse van ŉ handskoen vir HF.

Voorbeelde van handskoene vir gebruik met 48% HF: Best® Viton® en ChemMaster®; Ansell Sol-Vex, Neoprene ™, Oranje Swaargewig en Chemi-Pro®; MAPA Trionic® E-194, Stanzoil® NK-22 en Stanzoil® NK-34.

Die volgende toerusting vir noodgevalle moet beskikbaar wees:

1. Gasmaskers met korrekte filter.
2. Selfbevattende asemhalingsapparaat buite die deur.
3. Chemiese handskoene.
4. Ventilasie.
5. Veiligheidsbrille.
6. Oorjasse.
7. Afvaldromme gemerk vir HF afval.
8. Alarm met noodstop om hulp te ontbied.
9. Kalsiumglukonaat - in vloeibare vorm, in gel vorm en verdun vir oogwas.
10. Oogwashouer.
11. Inspuitings vir onderhuidse toediening van kalsiumglukonaat.
12. Mediese suurstofsilinder vir suurstoftoediening in nood.
13. Suurstofmasker met mikro sproeiverstuiwer.
14. Gewone suurstofmasker.
15. Wetlike noodhulpkassie.
16. Kombers vir skok en vervoer.
17. Reëling met ŉ kliniek of hospitaal in die omgewing om ongevalle te hanteer.

2.3.4 Fisiese eienskappe van HF

AHF (anhidriese HF) het ŉ vriespunt van -83,6 °C, ŉ kookpunt van 19,5 °C, ŉ dampdruk van 122,84 kPa en digtheid van 0,9546 by 25 °C (Sinnott, R.K., 2005). Dit is uiters korrosief en korrodeer glas en ander apparaat gemaak van silika volgens die volgende vergelyking (Holleman *et al.*, 2007):

$$4HF + SiO_2 \rightarrow SiF_4 + 2H_2O \qquad (2.14)$$

HF bestaan uit ŉ sterk H—F-binding en dit veroorsaak dat die verbinding baie stabiel is. Die H—F ---- H—F binding bestaan ook in die gasfase en lei tot groot afwyking van die ideale gaswet en is verantwoordelik vir die hoë kookpunt. Dit is een van die mees "nie ideale" gasse bekend.

Waterstoffluoriedsuur, die waterige oplossing van waterstoffluoried, HF, is ŉ swak suur (pK_a = 3,17) wat reageer met baie metale om waterstof en metaalfluoriede as produk te vorm. Dit reageer nie met goud of platinum nie en korrodeer lood net oppervlakkig en gevolglik moet dit gestoor word en gebruik word in houers en apparaat wat van platinum, lood, poliëtileen of politetrafluoroetileen gemaak is (Eagleson, 1993). Waterstoffluoriedsuur is uiters korrosief en dit moet in ag geneem word in eksperimentele opstellings. SS-316 ondervind die hoogste koers van korrosie en het ongeveer 60% van sy massa tydens sewe dae korrosietoetse verloor. Die grootste bron van bekommernis is die korrosie van die kleppe. Korrosie van die balge van 316 vlekvrye staal het gelei tot falings in laboratoriumeksperimente. In korrosie-eksperimente wat gedoen is, het die legering C-276 alle ander legerings oortref, met ŉ gemiddelde roeskoers van 5 mpj, en ongeskonde en feitlik onaangeraak deur die toets vertoon (Osborne *et al.*, 2002).

2.3.5 Natuurlike bronne van HF

Die grootste natuurlike bron van waterstoffluoried en ander fluoriedvrylatings in die lug is van vulkaniese uitbarstings. Die bydrae van hierdie bron tot die aarde se atmosfeer is na raming tussen 1 en 7 miljoen ton per jaar, waarvan ongeveer 10% direk in die

stratosfeer gaan. Ongeveer 20 000 ton fluoried word elke jaar in die atmosfeer van marine-aërosole vrygestel. Die ander natuurlike bron van fluoried in die lug is die stof wat geskep is deur die verwering van rotse, wat dan deur die wind tot in die atmosfeer gedryf word. Waterstoffluoried is te reaktief om vir baie lank in die omgewing te bestaan en word vinnig na ander fluoriede omgeskakel (Coleman *et al*., 2005).

2.3.6 Interaksie van HF met materiale

2.3.6.1 Reaksies

Soos ander sure, is waterige HF korrosief teenoor ŉ aantal algemene, industriële materiale insluitend yster, vlekvrye staal, koper, glas, asbes, beton en natuurlike rubber. Om die korrosietempo te beskryf word die uitdrukking mils/jaar meestal in die Verenigde State gebruik. Een mils is gelyk aan een duisendste van ŉ duim. In die metrieke stelsel is een mil gelyk aan 0,0254 mm. Die meeste metale reageer met AHF en vorm metaalfluoriede en waterstof. Die fluoriede verminder die korrosietempo deur die ysterfluoried wat op sagte staal vorm. Die probleem is egter dat die ysterfluoried-afskilferings wat vorm, brandwonde kan veroorsaak, al vertoon dit droog. Pakmateriaal en pompseëls absorbeer AHF en dit is baie moeilik om dit te dekontamineer. Druppels HF kan op sulke materiaal vorm selfs nadat dit gewas is. Enige materiaal wat in aanraking met AHF was moet baie versigtig hanteer word (Howells *et al*., 2000).

NaF·HF wat vorm in NaF kolomme is korrosief teenoor die meeste legerings. In ŉ toets wat gedoen is met 38 g/l NaF·HF het vlekvrye staal Tipe 309 en 310 geen mils/jaar, Tipe 304 2 mils/jaar en Tipe 316 1 mils/jaar korrosietempo ondervind.

2.3.7 Betroubare seëls vir HF

Simonton (2006), beskryf die algemene probleem, wat al baie jare in chemiese bedryf bestaan, van flense wat as gevolg van die aggressie van waterstoffluoriedsuur roes. Dit veroorsaak groot finansiële koste in terme van onderhoud, herstel en vervanging. Die standaardseël wat tradisioneel gebruik is vir hierdie diens was ŉ ASME B16.20 spiraaltipeseël met Monelwindings, politetrafluoro-etileenvuller en ŉ buitenste

koolstofstaalspoorring. Hierdie tipe seël laat die flens binne die binne-diameter kwesbaar vir blootstelling aan die bytende proses, wat veroorsaak dat aansienlike skade aan flense veroorsaak word. Om te verhoed dat korrosie langs die hele flenskop plaasvind, sou dit nodig wees om die seël te verseël by die skag om te voorkom dat van die suur uit migreer na buite en die flensoppervlakte besoedel.

ʼn Nuwe tipe seël wat in die handel beskikbaar is, het ʼn getande binneste ring wat bedek is met politetrafluoro-etileen (PTFE) om direkte kontak van die proses met die metaal te voorkom. Die PTFE-bedekte gemasjineerde, getande kant is met buigsame, 0,5 mm dik grafiet bedek. Monel-windingmetaal word vir die spiraalwinding gebruik, en vullingsmateriaal van buigsame grafiet word gebruik.

2.3.8 Roes by sweislasse

Munsterman en Mayorga (2004), het korrosie wat by sweislasse voorkom ondersoek en bevind dat die selektiewe roes moontlik aan die hoë inhoud van die residuele elemente Cu, Ni en Cr toegeskryf kan word. Hulle beveel ʼn maksimum residuele inhoud van 0,15% vir Cu, Ni en Cr aan en ʼn minimum koolstofinhoud van ongeveer 0,18%.

2.3.9 Materiaalkeuse in HF-omgewing

Waterige HF roes staal en ander metale teen ʼn hoë koers en ander spesifieke konstruksiemateriaal moet gebruik word of materiaal moet spesiaal behandel word. Sagte staal word algemeen gebruik vir konsentrasies van 70% en hoër van waterige HF, terwyl chlorobutielrubbervoerings in toerusting vir waterige oplossings tot 70% gebruik kan word. Toerusting wat algemeen gebruik word in ʼn HF atmosfeer soos pakstukke, tenks, kleppe, pype en pompe moet bestand wees teen roes wat deur HF veroorsaak kan word.

2.3.9.1 Sagte staal

Volgens die dokument wat vrygestel is deur Hydrogen Fluoride Industry Practices Institute (2000), word beweer dat sagte staal korrosie-bestand is teenoor AHF tot by 66 °C. Die korrosietempo by kamertemperatuur is baie laag — 0,025 mm/jaar. Die

snelheid van AHF in vloeistofvorm moet egter beperk word tot 1,8 m/s om die beskadiging van die beskermende fluoriedlagie te keer. Indien die temperatuur hoër as 66 °C is, moet die snelheid tot minder as 0,6 m/s verlaag word. Die korrosie neem egter toe as die residuele elemente nl. Cu, Ni en Cr se inhoud saam meer as 0,2% volgens massa is.

Wanneer die druk en snelheid laag is, is sagte staal bevredigend vir gebruik met AHF damp tot 200 °C. By 1 atm. druk is 10 m/s ŉ aanvaarbare limiet (Howells *et al.*, 2000).

Aangesien HF ŉ sigbare wit wolk vorm, kan bedryf- en onderhoudpersoneel sien as daar klein lekkasies rondom flense, kleppe, en plekke is, en wat tot ernstiger vrystellings kan lei.

2.3.9.2 Vlekvrye staal

Austenitiese vlekvrye staal is roesbestand teen AHF-vloeistof tot en met temperature van 100 °C. Die legerings is: 304, 316, 304L, 316L, A744 CF8, CF8M, CF3, CF3M, CN7M, Legering 20, Legering 825 en Legering G30. Die legerings kan vir kleppe en pompe gebruik word (Howells *et al.*, 2000).

Monel 400 is die ideale materiaal om in HF-omgewing te gebruik. Hastelloy C het drie jaar diens in HF-oonde gelewer. Alhoewel PTFE as die mees korrosiebestande materiaal teen HF beskou word, is 316 vlekvrye staal, volgens Lokring (1991), genoegsaam bestand teen HF korrosie indien die pype, toerusting en kleppe voldoende gepassiveer en gedroog is.

2.3.9.3 Nikkel-gebaseerde legerings

In ŉ dokument gepubliseer deur die Internasionale Nikkel maatskappy (1968) word die korrosiebestandheideienskappe van nikkel en nikkelbevattende legerings in waterstoffluoriedsuur, fluoor en ander fluoorbevattende verbindings beklemtoon.

Die hoeveelheid nikkel en silikon in verskillende vlekvrye staal word in Tabel 2.7, soos in bg. dokument weergegee, getoon:

Tabel 2.7: Ni, Si en Cr inhoud van verskillende tipes staal (Internasionale Nikkelmaatskappy, 1968)

Vlekvrye staal AISI	Tipe 304	Tipe 304L	Tipe 316	Tipe 316L	Tipe 317	Tipe 309Cb	Tipe 310	Tipe 321	Tipe 329	Tipe 347
Ni, %	9,5	10	13	13	14	13	20	10	4,5	11
Si, %	0,5	0,5	0,5	0,5	0,4	1,0	1,0	1,0	0,5	1,0
Cr, %	18	18	17	17	19	21	25	18	27	18

Legerings met ŉ nikkelbasis en vlekvrye staal blyk volgens Internasionale Nikkel maatskappy (1968) die mees korrosiebestande materiaal te wees. Korrosie neem egter toe indien die chroominhoud van die legering verhoog word.

Koper-nikkel legerings soos 90/10 (C70600) en 70/30 (C71500) koper-nikkel lewer bevredigende gebruik in AHF (vloeistof) by kamertemperatuur.

2.3.9.4 Koper en koper-legerings

Koper en koper-legerings kan met groot omsigtigheid gebruik word want dis baie sensitief teenoor suurstof, suurstof-onsuiwerhede en snelheid. Antonovskaya en Vil'k (1961), het eksperimenteel getoon dat suurstof koperkorrosie laat toeneem. Hulle het ook vasgestel dat BrA5, BrAN en L-62 meer korrodeer as M-1 koper-legering.

2.3.9.5 Nie-metaalmateriale

In Tabel 2.8 word die fluoorkoolstowwe wat gebruik kan word gegee.

Tabel 2.8: Fluoorkoolstowwe vir gebruik met AHF

Afkorting	Beskrywing
PTFE	Politetrafluoro-etileen
FEP	Kopolimeer van PTFE en HFP (heksafluoropropileen)
PFA	Kopolimeer van PTFE en ŉ gefluorineerde eter
MFA	Kopolimeer van PTFE en ŉ gefluorineerde eter
ETFE	Kopolimeer van PTFE en poli-etileen
PVDF	Polivinielideenfluoried, kan ook verwys na ŉ kopolimeer van PVDF met HFP
CTFE	Polichlorotrifluoro-etileen
ECTFE	Kopolimeer van CTFE en poli-etileen
TFM	PTFE met PFA

2.3.10 Droging

Vlekvrye staal absorbeer water, asook vog deur die vorming van metaal-hidroksiedverbindings by sy oppervlak. Sodanige vog sal uitgas van ŉ vlekvrye staalkomponent en daarom moet vlekvrye staal behandel word om die oppervlak van die staal te passiveer deur geadsorbeerde en geabsorbeerde vog te verwyder en die korrosieweerstand teen korrosiewe materiale te verbeter. Volgens Davidson *et al.* (1991) word die beste resultate in oppervlakpassiveringsbehandeling verkry as die oppervlak wat behandel moet word, gespoel word met ŉ droë chemies nie-reaktiewe gas wat geen suurstof bevat nie, terwyl die staal vir ŉ voorafbepaalde tyd en temperatuur gebak en dan afgekoel word. Op die oppervlak van enige vlekvrye staalartikel vorm ŉ oppervlakoksiedlaag wat chroomoksied, chroom, hidroksied in die vorm van metaalhidroksiede, ysteroksied en geadsorbeerde vog bevat. Die regte baktyd per lengte en korrekte temperatuur sal voldoende wees om binne die oppervlakoksiedlaag ŉ toename in die chroominhoud te verkry, asook ŉ vermindering in geadsorbeerde vog en ŉ verminderde hidroksiedinhoud.

Volgens Fine *et al.* (1994), kondenseer atmosferiese vog maklik op metaaloppervlaktes in verskeie lae. Onder normale atmosferiese toestande sal minder as 1 molekulêre laag suurstof of stikstof fisies op ŉ metaaloppervlak geadsorbeer word. Onder dieselfde toestande sal tot 125 molekulêre lae vog op die metaal adsorbeer. Vog adsorbeer ook sterker aan metaaloppervlaktes as suurstof of stikstof. Die aktiveringsenergie van desorpsie vir suurstof vanaf ŉ metaaloppervlak is ongeveer 12,5 – 16,7 kJ/mol. Die aktiveringsenergie van die desorpsie van vog is tipies 62,7 – 83,6 kJ/mol. Hierdie groot verskil in aktiveringsenergie stem ooreen met die desorpsiesnelheid van vog wat ongeveer 100 000 000 keer stadiger is as die desorpsietempo van suurstof. Hierdie sterk adsorpsie van veelvuldige lae vog maak die verwydering van vog uit ŉ sisteem ŉ baie moeilike taak. Stelsels word verhit tot hoë temperatuur om vog te verwyder. Verhitting is egter nie altyd prakties nie, en dit doen niks om re-adsorpsie van water te voorkom as die stelsel weer aan die omgewing blootgestel word nie.

In baie gevalle is vog die kritieke kontaminant in die gasleweringsisteem. Dit is veral waar as die gas korrosief is. Gasse soos fluoor, wolframheksafluoried en ander halogeenbevattende gasse sal baie metale erg korrodeer as vog teenwoordig is. Korrosie van bergingsvate of spruitstukke kan lei tot die faling van die stelsel. Komponente soos kleppe, reguleerders en massavloeibeheerders is baie vatbaar vir faling weens korrosie en moet gereeld vervang word. As vog egter deurlopend verwyder word, sal hierdie gasse nie algemeen gebruikte metale soos vlekvrye staal en aluminium korrodeer nie. Die ideale verlangde graad van droogheid is 10 H_2O dele per miljoen gasdele.

Indien metaaloppervlaktes nie genoegsaam gedroog word nie, sal die molibdeenheksafluoried met die water op die oppervlak reageer om molibdeentrioksied en waterstoffluoried te vorm.

$$3H_2O + MoF_6 \rightarrow MoO_3 + 6HF \qquad (2.15)$$

Intermediêre produkte wat tydens hierdie reaksie gevorm word, is $MoOF_4$, MoO_2F_2 en $MoO_3 \cdot H_2O$. Die vorming van die oksiede sal die ASP nadelig beïnvloed aangesien alle berekeninge gegrond is op ‘n suiwer MoF_6-heliumgasmengsel.

ʼn Metode is nodig om geadsorbeerde water vinnig te verwyder en die metaaloppervlak te passiveer sodat re-adsorpsie van water geïnhibeer word.

In die halfgeleierindustrie word 2,2-dimetoksipropaan (DMP), ʼn hidrofiel, algemeen vir droging gebruik. DMP is ʼn kleurlose vloeistof en sal met die water op die binneste oppervlak van die pypleidings reageer om metanol en asetoon te vorm wat uit die stelsel verwyder moet word.

DMP sal volgens navorsing uitstekend werk maar die uitdaging van uiters brandbare produkte wat vorm sal deeglik bestuur moet word (Kimura *et al.*, 1997).

$$H_2O + C_5H_{12}O_2 \rightarrow 2CH_4O + C_3H_6O \qquad (2.16)$$

In Tabel 2.9: Eienskappe van DMP toegelig.

Tabel 2.9: Eienskappe van DMP

Chemiese formule:	$C_5H_{12}O_2$
Molêre massa:	104,15 g/mol
Voorkoms:	Kleurlose vloeistof
Digtheid:	0,85 g/cm^3
Smeltpunt:	-47 °C (226 K)
Kookpunt:	83 °C (356 K)
Oplosbaarheid in water:	15 g/l (20 °C)

2.3.11 Passivering

Die korrosiebestandheid van al die konstruksiemateriaal wat saam met fluoor gebruik word hang af van die vorming van ʼn passiewe fluoriedfilm.

Tydens passivering moet die gevaar van vog in die pype en toerusting baie deeglik besef word aangesien die reaksie van fluoor met water onvoorspelbaar is. Verslae dui daarop dat water in stoom-, vloeistof- of vaste-vorm plofbaar met fluoor kan reageer en in sekere omstandighede kan hoë konsentrasies van waterdamp ontbrand en brand in fluoor (Asunmaa *et al.,* 1967).

Fluoorpassivering is ondersoek en die filmkwaliteit geëvalueer deur Miki *et al*. (1990). Hulle bevestig dat die nie-stoigiometriese struktuur in die eerste stap van fluorering omgeskakel word na ŉ stoigiometriese struktuur deur hittebehandeling. Die gepassiveerde oppervlak na hittebehandeling het uitstekende korrosiebestandheid. Volgens studies deur Miki *et al*. (1990) word geen HF-molekules opgespoor wanneer die hittebehandeling temperatuur tot 400 °C verhoog is nie.

Die passiveringsprosedure behels kortliks die omsigtige blootstelling van die aanleg aan ŉ verdunde fluoorgasmengsel by verskillende drukke vir sekere tydperiodes. Die finale passiveringsdruk is dieselfde as die maksimum verwagte werksdruk van die stelsel. Tydens passivering word ŉ 10% F_2/N_2 gasmengsel stadig gelaai en daar word noukeurig op enige skielike drukveranderinge gelet. Indien sulke reaksies waargeneem word, moet die fluoorgasmengsel in die stelsel onmiddellik geventileer word na ŉ kalksteenskropper en die stelsel met droë inerte gas gespoel word. Nadat al die passiveringsstappe gevolg is word die fluoorgasmensel stadig na ŉ kalksteenskropper geventileer. Residuele fluoor, HF, OF_2 en ander fluoorverbindings in die stelsel word verwyder deur spoeling met droë, inerte gas soos bv. stikstofgas met ŉ nominale doupunt van minder as 1,53 dpm vog wat gebruik word om alle pype en toerusting te spoel.

Die gepassiveerde stelsel word gehou by ŉ oordruk helium en moet teen blootstelling aan vog en kontaminasie beskerm word.

2.4 Gasskeiding

In die literatuurstudie is die verskillende metodes om helium en MoF_6 te skei en te suiwer van HF, herwinning van waardevolle MoF_6 en hergebruik van helium asook die finale polering van die heliumgas voor vrystelling ingesluit het, ondersoek.

Rampersadh (2005) beklemtoon dat verskeie faktore in ag geneem moet word soos selektiwiteit, effektiwiteit, fisiese karaktereienskappe en laaste maar nie die minste nie, finansiële oorwegings tydens die ondersoek na die geskiktheid van ŉ adsorbent of tydens die vergelyking van twee adsorbente vir gasverwydering. Hierby kan beskikbaarheid en die moontlikheid van hergenerering ook gevoeg word.

2.4.1 Adsorbente

Gasmolekules wat naby aan ŉ oppervlak is, het verlaagde vrye-energie, omdat hulle na die elektrostatiese omgewing van die oppervlakte aangetrek word. Die aantrekkingskrag van die gas-vastestofinteraksies en die gepaardgaande verlies van entropie lei tot ŉ toename in die digtheid van die hoeveelheid gasmolekules naby die oppervlakte. In ŉ gas-vastestofsisteem vertoef gasmolekules ŉ baie langer tyd op die oppervlak as in die gas self. Die oormaat van molekules op die oppervlak word adsorpsie genoem. ŉ Adsorbent is ŉ vaste stof wat gebruik word om opgeloste molekules uit ŉ vloeistof of gas te versamel. Adsorpsie-isoterme beskryf die termodinamiese gedrag van die gas-vastestofstelsel en verklaar dat die oppervlak-oormaat afhanklik is van temperatuur en druk. In die geval van skeiding van ŉ gasmengsel van CO_2 en N_2 met adsorbente kan die adsorpsie van CO_2 met of sonder die vorming van chemiese bindings voorkom. Dieselfde meganismes mag dus dalk teenwoordig wees in die geval van ŉ MoF_6 en H_2 mengsel want H_2 en N_2 is beide nie-polêre molekules. Die hoeveelheid molekules wat adsorbeer neem toe met toename in druk tot maksimum kapasiteit. Adsorpsie is ŉ eksotermiese proses en dus sal hoeveelheid gas wat geadsorbeer word toeneem met afname in temperatuur (Hedin *et al.*, 2013).

2.4.2 Adsorpsie

2.4.2.1 Adsorpsie deur druk te varieer (PSA – pressure swing adsorption)

Dit is ŉ tegniek wat gebruik word om gasse te skei deur gebruik te maak van die gasse se molekulêre eienskappe en affiniteit vir adsorpsiemateriaal by verskillende druk. Die proses vereis ŉ adsorbent wat een komponent by voorkeur uit ŉ gemengde voer adsorbeer. Twee hoofstappe kenmerk hierdie proses: adsorpsie, waartydens die voorkeur geadsorbeerde spesie versamel word uit die voer, en desorpsie (of hergenerering) stap, waar spesies uit die adsorbent geneem word. Wanneer ŉ PSA proses bedryf word, word ten minste twee strome geproduseer. In die adsorpsie-stap, word ŉ stroom wat ryk is aan die minder geadsorbeerde spesies gevorm en dit word gewoonlik die "ligte produk" genoem. In die desorpsie stap, word ŉ stroom wat ryk is in die sterk geadsorbeerde spesies verkry en word die "swaar produk" genoem (Franco, 2014).

Die ontwikkeling van PSA het momentum gekry met Charles W. Skarstrom wat in 1958 aansoek gedoen vir registrasie van sy die patent. Skarstrom en Heilman (1960), het ŉ verbeterde metode en ŉ verbeterde apparaat vir fraksionering van gasmengsels gepatenteer. In die jare ná Skarstrom se uitvinding, was daar ŉ hele paar patent-aansoeke om die siklus te verbeter. Die strewe bly steeds om herwinning te verbeter sonder om suiwerheid in te boet. Die geval van Polybed PSA vir H_2 suiwering is ŉ goeie voorbeeld. In die 70's is eenhede gebou met 4 kolomme en die herwinning van H_2 was maar sowat 60%. Deesdae word PSA-eenhede met tussen 12 en 16 kolomme gepatenteer met H_2 herwinning naby aan 90%. Wanneer die aantal kolomme verhoog word, kan meer drukgelykmakingstappe gedoen word en dus sal minder waterstof verlore raak saam met die kontaminante wat sodoende die herwinning verbeter (Stöcker, 1998).

Die motivering om die PSA-proses te ontwikkel en te verbeter is om die suiwerheid en die herwinning van die teikenproduk(te) te verbeter. Van al die belangrike ontwikkelings in die prosesingenieurswese, is die uitdagendste een die ontwikkeling

van sikliese strategieë wat die prestasie-aanwysers van die PSA kan verbeter — ŉ tydrowende en iteratiewe proses.

Met moderne rekenaars, kan die ontwerp van die PSA-siklus uitgevoer word deur die modellering van verskillende opstellings. Daar is verskillende grade van kompleksiteit wat ŉ PSA-model definieer, gewoonlik bestaande uit ŉ hele paar parsiële differensiaalvergelykings wat gekoppel is deur toestand-vergelykings en die isoterm model om die termodinamiese eienskappe van die gas en geadsorbeerde fase onderskeidelik, te definieer. Hoewel die model opgelos kan word deur numeriese metodes is daar verskeie kommersiële programme wat reeds vir dié doel gebruik kan word: ASPEN, COMSOL, gProms, PROSIM, en dies meer (Grande, 2012).

Die simulasie van ŉ PSA-proses vereis ŉ aanvanklike stap van die definiëring van ŉ siklusstruktuur (rangskik die stappe in ŉ pre-gedefinieerde volgorde) en skat dan die prestasie-aanwysers wat verkry word. Vir die gekose siklus, moet al die staptye, afblaasdruk en vloeitempos van spoel- en reinigingstappe bepaal word (Grande, 2012).

2.4.2.2 Vinnigedrukswaai-adsorpsie (RPSA – rapid pressure swing adsorption)

Wanneer die totale siklustyd kleiner is as 30 sekondes, word die proses gewoonlik RPSA genoem. ŉ Tipiese tydsiklus (t_{siklus}) van ŉ normale PSA proses is in die orde van 10 minute. In daardie tyd word die adsorbent gebruik om ŉ sekere hoeveelheid gas te adsorbeer en te deadsorbeer. Binne elke kolom van die PSA word die hoeveelheid wat geadsorbeer word verdeel in ŉ aanvanklike sone waar ewewig bereik word en ŉ "massa-oordrag" sone naby aan die einde van die kolom waar die adsorbent nie heeltemal versadig is nie. Die verkorting van die siklustyd sal lei tot meer kinetiese beperkinge en dus meer massa-oordragsones (Todd & Webley, 2006).

Saamgeperste gas word gebruik om produk te lewer en hergenerasie deur vakuum word gebruik om residuele gasse te verwyder van die adsorbent. Die regenerasie word uitgevoer teen verlaagde druk, en die adsorpsie vind by die atmosferiese of naby-atmosferiese druk plaas (Hedin *et al.*, 2013).

2.4.2.3 Adsorpsie deur temperatuur te varieer (TSA – Temperature swing adsorption)

Regenerasie van adsorbent in ŉ TSA-proses word deur toename in temperatuur bewerkstellig. Vir enige gegewe parsiële druk van die adsorbaat in die gasfase lei ŉ toename in temperatuur tot ŉ afname in die geadsorbeerde hoeveelheid. As die parsiële druk konstant bly by P_1, sal die verhoging van die temperatuur van T_1 tot T_2 die ewewigsbelading van q_1 tot q_2 verlaag. Die adsorpsievermoë (of ewewigsbelading q) is die hoeveelheid adsorbaat wat deur die adsorbent per massa-eenheid van die adsorbent opgeneem word.

ŉ Klein toename in temperatuur kan ŉ groot afname in lading veroorsaak. Dit is dus oor die algemeen moontlik om enige komponent te desorbeer, mits die temperatuur hoog genoeg is. Dit is egter belangrik om te verseker dat die regenereringstemperatuur nie die afbreking van die adsorbente veroorsaak nie (Hedin *et al.*, 2013).

ŉ Verandering in temperatuur alleen word nie in kommersiële prosesse gebruik nie omdat daar geen meganisme is vir die verwydering van die adsorbaat vanaf die adsorpsie-eenheid nadat desorpsie van die adsorbente plaasgevind het nie. Vloei van ŉ warm gas of stoom, deur die bed om die gedesorbeerde komponente uit te vee, word gewoonlik gebruik in kombinasie met die toename in temperatuur.

2.4.2.4 NaF-kolomme

Natriumfluoried (NaF) is voorgestel as ŉ geskikte mineraalsout om HF te adsorbeer. Adsorpsie op die natriumfluoriedsout geskied volgens die volgende omkeerbare reaksie:

$$NaF + HF \rightleftharpoons NaF{\cdot}HF \qquad (2.17)$$

Gedurende die adsorpsieproses, moet HF molekules die eksterne en interne weerstand van massa-oordrag oorkom. Nadat hulle die interne en eksterne aktiewe oppervlak van die adsorbent bereik het, vorm ŉ kompleks op die oppervlak van die adsorbent. Om hierdie verbinding te breek en om HF te skei van natriumfluoriedsout, moet temperatuur

tot 280 – 300 °C verhoog word. Ten einde operasionele verlies te voorkom word die natriumfluoriedsout gebruik in die vorm van korrels in plaas van poeier wat verspreiding van natriumfluoriedpoeier na die volgende stappe van die proses verhoed (Afzal *et al.* 2010). Volgens Morel en Duperret (2009) hang die kapasiteit van adsorpsie af van die NaF-korrels maar ook van die temperatuur en druk, tipies kan HF/NaF = 0,5 verkry word by 100 °C.

ŉ Probleem ontstaan met die NaF-kolomme; HF reageer met Na om NaF·HF te vorm wat ŉ vaste stof is en verhitting sal die HF vrystel. Maar meer HF word op hierdie kompleks geadsorbeer, wat lei tot poli-suur vorming.

$$NaHF_2 + xHF \rightarrow NaHF_2 \cdot xHF \qquad (2.18)$$

Dit los die $NaHF_2$-kompleks op, wat lei tot kolomsintering. NaF kan tot 4,5 mol HF per mol NaF absorbeer as dit blootgestel word aan ŉ 10% HF/N_2 gasmengsel. Om hierdie kolomme by 90 °C te hou verhoed hierdie poli-suurvorming en kolomsintering.

Volgens Rampersadh (2005) is daar is ŉ aantal probleme wat verband hou met die gebruik van NaF. Eerstens, NaF adsorbeer 4 tot 5 HF-molekules per NaF-molekule wat veroorsaak dat NaF oplos in HF. Om dit te verhoed moet die adsorpsie kolom by ŉ verhoogde temperatuur gehou word wat tot ŉ hoër ewewigdampdruk van HF lei. ŉ Verdere probleem word ondervind wanneer die kolom regenereer moet word. Dit word gedoen deur die verhitting van die kante van hierdie kolom om HF te verwyder. Dit skep ŉ probleem, want daar is ŉ temperatuurgradiënt van die kante van die kolom na die kern. HF wat gedeabsorbeer word naby aan die warm kante is geneig om te migreer na die koeler kern en weer geadsorbeer te word daar, wat lei tot poli-suurvorming en kernsintering. Dit kan voorkom word deur eenvormige verhitting van die kolom te verseker en te verseker dat daar geen koel areas in kolom is nie (Rampersadh, 2005).

Om UF_6 te suiwer word ŉ NaF-kolom gebruik met twee afsonderlike gebiede, een by 400 °C en een by ongeveer 100 °C. In die hoërtemperatuursone word die meeste van die fusieprodukte, roesprodukte, en soute onomkeerbaar verwyder terwyl die UF_6 en ŉ paar fusieprodukte na die laer temperatuursone deurgaan. In hierdie sone, word UF_6 en

MoF_6 geabsorbeer. Wanneer die lae-temperatuursone van die NaF bed gelaai is met UF_6, word die bed uit die stroom geneem, en die temperatuur van die koue sone word stadig verhoog terwyl die bed met fluoorgas gevee word. By ŉ temperatuur van rondom 150 °C, word molibdeenfluoried deabsorbeer (Carter en Whatley, 1967).

In ŉ artikel deur Stojakovic *et al*. (1973) oor die skeiding van HF en SiF_4 met behulp van NaF-kolomme word die vorming van tot 70% Na_2SiF_6 as fluoriedproduk in die kolom beskryf as die stroom nie heeltemal droog is nie. In die afwesigheid van water reageer NaF en SiF_4 net by verhoogde temperature, waarskynlik as gevolg van die relatief hoë aktiveringsenergie wat nodig is om die oorgang vanaf die kubiese kristalrooster kenmerkend van NaF, na die seskantige rooster van Na_2SiF_6 te bewerkstellig. Wanneer SiF_4 en NaF in kontak gebring word by kamertemperatuur in die afwesigheid van water, is die aktiveringsenergie nie beskikbaar nie en die vorming van Na_2SiF_6 sal nie plaasvind nie. Indien slegs spoorhoeveelhede van water in die stelsel teenwoordig is, word die gemak waarmee transformasie van die NaF-kristalrooster plaasvind, vergemaklik deur die assosiasie tussen die Na^+ en F^- ione in die kristalrooster en die H_2O molekules deur die dipole in water. Alternatiewelik word dit vergemaklik deur die koördinasie tussen H_2O molekules en die silikon in die SiF_4 molekule. Dit stimuleer die oorgang van die tetraëdriese rangskikking van fluooratome in die SiF_4 molekule na die oktaëdriese rangskikking in die SiF_6^{2-} ioon. Dit lei tot ŉ laer aktiveringsenergie vir die omskakeling van NaF na Na_2SiF_6 met water wat in hierdie konteks waarskynlik as ŉ katalisator optree.

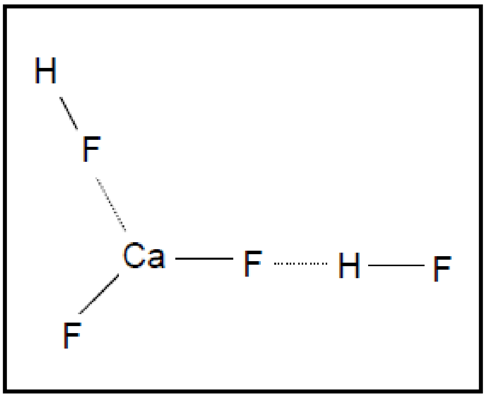
NaF toon wel die gewenste selektiwiteit en stel geen onsuiwerhede in die produkstroom vry nie. Dit verminder die HF-konsentrasie tot ŉ relatief doeltreffend 300 dpm, maar ŉ laer konsentrasie is egter noodsaaklik vir dié toepassing. Die opname van HF deur NaF is ook vinnig. Alhoewel NaF maklik in korrels saamgepers word, geregeneer en hergebruik kan word, bly die feit dat dit maklik oplos in HF ŉ probleem. Volgens Aßmann (1982) is te min inligting beskikbaar vir suksesvolle gebruik van die NaF kolom. ŉ Verdere komplikasie is dat NaF korrels disintegreer tot ŉ fyn poeier na ŉ paar keer se gebruik.

2.4.2.5 Adsorpsie van waterstoffluoried op metaalfluoriede

Die verwydering van HF kan ook bereik word deur adsorpsie op ander metaalfluoriede. Capps (1951) bevind dat HF geadsorbeer word op die volgende fluoriede: MnF_2, NaF, LiF en BiOF, waarvan LiF en BiOF, HF uitsluitlik adsorbeer. KF is ŉ HF adsorbeerder want KF vorm komplekse met HF met die formule KF·xHF, waar x = 1; 2; 2,5; 3 en 4.

2.4.2.6 CaF_2-kolomme

Kalsiumfluoried word hoofsaaklik gebruik om HF van elektrolietgasse soos HCl te adsorbeer. HF heg aan CaF_2 via die kalsiumkatioon in CaF_2 en die fluooranioon in HF of deur interaksies tussen die waterstof van HF en die fluoor van CaF_2 soos geïllustreer in Figuur 2.9.



Figuur 2.9: Interaksie tussen CaF_2 en HF

Rampersadh (2005) het die oplosbaarheid van CaF_2 in HF ondersoek en dit vergelyk met data vir NaF (Tabel 2.10). Een van die probleme wat ondervind word met NaF is sy hoë oplosbaarheid in HF. ŉ Adsorbent met ŉ laer oplosbaarheid is verkieslik vir adsorpsie van HF, bv. $CuSO_4$ sal vog absorbeer om $CuSO_4·5H_2O$ te vorm en dan sal adsorpsie stop, terwyl NaF HF sal bly adsorbeer totdat dit oplos.

Tabel 2.10: Oplosbaarheid van HF in CaF_2 en NaF by verskillende temperature

Sout	Temp (°C)	Oplosbaarheid (g/*l*)
CaF_2	12,2	8,2
	0	9,8
	-3,3	10,6
	-23,0	14,4
NaF	11,0	301
	-9,8	251
	-24,3	221

Soos in Tabel 2.10 deur Rampersadh (2005) gesien kan word is HF baie meer oplosbaar in NaF as in CaF_2.

Merchant en Hodges (1975) het ŉ patent ontwerp om HF-gas van gasmengsels te skei deur die gasmengsel in kontak te bring met anhidriese alkali-aardmetaalchloried in die afwesigheid van water. Na die absorpsie van HF-gas in hoeveelhede wat wissel volgens die absorpsievermoë van die spesifieke anhidriese alkali-aardmetaal word die vloei van die gasagtige mengsel gestop of herlei en die geabsorbeerde HF van die alkalie-aardmetaal verwyder, verkieslik deur desorpsie deur middel van hitte. Die geregenereerde alkali-aardmetaalfluoried word dan weer gebruik in die HF-verwyderingproses. Die term "absorpsie" word gebruik om chemisorpsie, adsorpsie en absorpsie in te sluit en die alkali-aardmetaal wat by voorkeur gebruik word is kalsium.

Laboratoriumtoetse het getoon dat natuurlike kalsiumchloried nie die vermoë het om ŉ beduidende hoeveelheid HF te absorbeer nie en na slegs sowat 5 tot 6% absorpsie volgens gewig HF, word deurbraak ondervind. Kalsiumfluoried wat gemaak is deur kalsiumchloried en HF te laat reageer kan sowat 20% HF absorbeer volgens gewig voor deurbraak onder dieselfde toestand van vloei, temperatuur en druk ondervind word.

In Tabel 2.11 is ŉ opsomming gemaak van die oppervlakarea en absorpsie van HF op kalsiumfluoried (CaF_2) wat voorberei is deur anhidriese HF deur ŉ bed anhidriese kalsiumchloried ($CaCl_2$) in die afwesigheid van water te stuur, totdat die $CaCl_2$ na CaF_2 omgeskakel is. Die geabsorbeerde HF is daarna deur hitte en lugsuiwering gedesorbeer.

Tabel 2.11: Oppervlakarea en absorpsie van HF

Monster	Verbinding	Spesifieke oppervlakarea (m^2/g)	HF geabsorbeer op CaF_2 (%)
I	CaF_2	13,5	40
II	CaF_2	16,5	40
III	CaF_2 (natuurlike fluoorspar)	1,8	10
IV	$CaCl_2$ (anhidries)	2,0	

Merchant en Hodges (1975) beweer dat die absorpsietoring wat in die aanwending van die uitvinding gebruik word, aanvanklik gelaai kan word met ŉ geskikte bed CaF_2, voorberei met anhidriese kalsiumchloried soos beskryf in voorafgaande paragraaf, of met anhidriese $CaCl_2$ wat dan gewoon omgeskakel word na CaF_2 wanneer die toevoerstroom van HF-bevattende gas in kontak met die $CaCl_2$ kom. Die kalsiumfluorieddeeltjies kan wissel van poeier tot korrels met die voorkeurkorrels met ŉ deeltjiegrootte van 0,625 tot 0,937 cm.

Die temperatuur waarby die gasagtige mengsel in kontak met die deeltjies CaF_2 mag wees, wissel van 15,5 °C tot ongeveer 54,5 °C, met verkieslik ŉ temperatuur vanaf 21 °C tot 45 °C. Dit is wenslik dat die kontaktemperatuur bo die doupunt van die gasagtige mengsel gehandhaaf word om te verhoed dat enige organiese substans teenwoordig daarin, in die kolomreaktor kondenseer. Druk kan wissel van atmosferies tot ongeveer 18 atm., na gelang van die prosestoestand. Omdat die stelsel in wese anhidries is, is eksotiese konstruksiemateriaal nie nodig nie en die absorpsietoring, pype en toerusting kan van gewone koolstofstaal wees omdat roes daarvan nie ŉ probleem blyk te wees nie. Die uitgeputte CaF_2 kan hergenereer word deur eksterne verwarming

van ŉ monster tot tussen 107 °C en 177 °C of verwarming van die monster tot ongeveer 93 °C of hoër en stuur van ŉ inerte gas soos N_2, lug of anhidriese HF deur die vaste stowwe (Merchant en Hodges, 1975).

Opalovsky *et al*. (1969) het die termiese stabiliteit van alkali-aardmetaalhidro-fluoriede bestudeer en die waardes van die aktiveringsenergie, reaksie-orde en tempokonstante bepaal. Korrelasie met die sterkte van die waterstofbinding in die struktuur en die verskil in termiese stabiliteit is gevind. Daar is bevind dat HF verwyder word uit $CaF_2 \cdot 2HF$ by 130 °C in ŉ een-stapontbindingreaksie met ŉ reaksie-orde van 0,34 en met aktiveringsenergie van 114,3 kJ/mol.

Rampersadh (2005) het drie CaF_2-monsters van verskillende oorsprong ondersoek in ŉ termogravimetriese analiseerder om die opname van gasagtige HF by kamertemperatuur te ontleed. Dit was CaF_2 van BDH, CaF_2 van Saarchem en CaF_2 as ŉ ontbindingproduk van $CaSiF_6$.

ŉ Massatoename is opgemerk wanneer al drie van die monsters blootgestel is aan ŉ 10% HF/N_2 mengsel in ŉ termogravimetriese ontleder. Die geadsorbeerde HF was egter nie sterk gebind nie, en sommige HF het gedeabsorbeer, so gou as wat die HF-mengsel met ŉ N_2-draergas vervang is. Rampersadh (2005) het bevind dat die opname van HF deur die kalsiumsoute baie laag is en dat CaF_2 beperkte kapasiteit het as ŉ HF-adsorpsiechemikalie. Die gevolgtrekking word verder deur hom gemaak dat alhoewel CaF_2 die nodige selektiwiteit toon en nie onsuiwerhede vrystel in die gasstroom nie dit ŉ kapasiteit van slegs ŉ paar persent het wat dit ondoeltreffend as absorbeerder maak.

2.4.2.7 Adsorpsieskeiding deur seoliete

Sedert die uitvinding van sintetiese seoliete in 1959, het innovasies in absorbantontwikkeling en adsorpsie-prosessiklusse, seolietadsorpsie ŉ belangrike skeidingsmeganisme gemaak in die chemiese, petrochemiese en farmaseutiese nywerhede. In alle toekomstige energie- en omgewingtegnologie, sal adsorpsie waarskynlik ŉ sleutelrol óf ŉ beperkende rol speel.

Die afgelope twee dekades het ŉ ontploffing in die ontwikkeling van nuwe nano-poreuse materiale getoon: meso-poreuse molekulêre siwwe, seoliete en nuwe koolstofmateriaal (koolstof-molekulêre-siwwe, super-geaktiveerde koolstof, geaktiveerde-koolstofvesel, koolstofnanobuise en grafiet-nanovesel).

Selektiewe adsorpsie en desorpsie van ŉ gewenste reaktant of produk kom voor in die kanale van ŉ seoliet. In die proses mag daar ook ŉ aanvanklike aktiveringstap wees om enige vog of ander ongewenste adsorbante van die seoliet te verwyder.

Adsorptiewe skeiding deur seoliete vind plaas deur die volgende drie meganismes: steriese-, kinetiese- of ewewig-meganismes. Enige steriese invloed wat verband hou met adsorpsie is as gevolg van die grootte en vorm van die molekules wat geskei moet word. Omdat seoliete definitiewe porie-vorms en -groottes het, sal net klein molekules en molekules met ŉ spesifieke vorm daarin kan diffundeer. Kinetiese skeiding word bereik wanneer daar verskil in diffusietempo tussen reagense is. Ewewigskeiding hang grootliks af van ŉ seoliet se eienskappe bv. ŉ molekule met hoë polariseerbaarheid sal adsorbeer op ŉ hoogs polêre seolietoppervlak. Produkherstel word bereik deur desorbering van die geadsorbeerde produk van die adsorbant. Dit word bereik deur een van die volgende tegnieke: termieseswaai-desorpsie, drukswaai-desorpsie, reinigende-gasstroping en verplasing-desorpsie (Rampersadh, 2005).

2.4.2.8 Geaktiveerde alumina as spesiale adsorbeerder

Geaktiveerde alumina is ŉ veelsydige absorbeerder wat vir baie spesiale toepassings aangepas kan word. Nuwe toepassings word voortdurend ontwikkel, veral deur die aluminiummaatskappye. Min inligting word egter oor die besonderhede van hul veranderinge bekend gemaak. Die veranderinge volg egter eenvoudige algemene beginsels van oppervlakchemie, soos suur-basis chemie. Twee metodes word gebruik vir veranderings: (1) variasie van die aktiveringproses, en (2) die gebruik van doteermiddels. Die verwydering van HCl en HF van gasse en vloeistowwe is ŉ bewese toepassing van doelgemaakte-alumina (Yang, 2003).

2.4.2.9 Hars (Resin)

Rampersadh, (2005) het verskillende harse ondersoek. Sy ondersoek van Nafion®, het aan die lig gebring dat hierdie materiaal ŉ lae kapasiteit vir HF toon en slegs in staat is om die HF-konsentrasie te verminder tot 25% van sy oorspronklike waarde. ŉ Verdere probleem is finansiële oorweging — Nafion® is baie duur.

Natriumpoliakrielaat het ŉ hoë kapasiteit, ongeveer 80 massa%, vir HF maar los op in HF en dus is dit nie maklik om korrels of siwwe te vorm nie.

Die hars wat die meeste belofte getoon het in terme van kapasiteit en stabiliteit in ŉ HF-omgewing was Amberlite IRA 67. Hierdie hars adsorbeer HF selektief van getoetste organiese omgewings. Met 114 massa% het dit ŉ baie hoë kapasiteit en ŉ hoogstoeganklike oppervlakte. Die uitruilkapasiteit is 5,6 mEkw/g en Amberlite IRA 67 verwyder HF van organiese dampstrome tot onder opsporinggrense. Die opnameproses het vinnige kinetika en dit neem tot 100% van sy eie massa in 20 minute van ŉ 10% HF/N_2 stroom, wat vloei teen 28,8 ml/min (STD), op. Die hars is in die vorm van ŉ kraal wat maklik hanteer kan word, hoewel swelling verwag kan word met HF opname. In terme van die regenerering kan hierdie hars tot 50% kapasiteit hergeneer word met behulp van ŉ stikstofstroom met ŉ ligte verwarming of deur dit met ŉ ligte basiese oplossing te was (Rampersadh, 2005).

2.4.2.10 Bentoniet

Bentoniet is ŉ rou kleimateriaal met ŉ hoë katioonuitruilkapasiteit weens die tipiese gelaagde silikaatstruktuur. Bentoniet, word gebruik as ŉ adsorbent en het ŉ eenheidselformule van $(Na, Ca)_{0.33}(Al, Mg)_2(Si_4O_{10})(OH)_2nH_2O$. Dit het ŉ onreëlmatige, heterogene, poreuse oppervlak, wat hoë oppervlakarea toon. Bentoniet het verskeie adsorpsietoepassings as gevolg van sy kanaalstruktuur. Dit word verhit voor gebruik vir oppervlakaktivering. Die teenwoordigheid en konsentrasie van funksionele oppervlakgroepe speel ŉ belangrike rol in die absorpsiekapasiteit en die verwyderingmeganisme van die adsorbent (Ghanbarnezhad *et al.*, 2014).

In ŉ studie deur Vega *et al.* (2005) is bentoniet as adsorbent van swaarmetaalione uit mynafval gebruik. Vega *et al.* (2005) het bevind dat die bentoniet ŉ hoë kapasiteit het vir swaar metale en as chemiese versperring kan dien.

In studies gedoen deur Ovejero *et al*. (2010) om ŉ alternatief te vind vir ŉ aluminabed, wat duur en moeilik om te bedryf is, in die suiwering van stireenmonomere, is bentoniet as kostedoeltreffende alternatief ondersoek. Die bevinding deur Ovejero *et al*. (2010) was dat bentoniet maklik verkrygbaar, goedkoop en ŉ goeie kapasiteit het.

2.4.2.11 Geaktiveerde koolstof

Termodinamiese berekeninge en eksperimente gedoen deur Bahrami *et al.* (2012) het getoon dat die hidrogenefluoriedsorpsieproses deur geaktiveerde koolstof spontaan en eksotermies van aard is. Hulle bevind dat die kapasiteit vir HF-verwydering afneem met toename in temperatuur. Die bevinding deur die studie van Bahrami *et al.* (2012) het getoon dat geaktiveerde koolstof ŉ effektiewe adsorbent vir HF onder vakuumtoestande is.

Millward *et al*. (2012) beskryf ŉ metode om vog te verminder in fluoorbevattendegas met materiaal wat koolstof as basis het.

2.4.3 Kriogeniese distillasie vir gassuiwering by lae temperature

Met hierdie metode is dit nodig om eksperimenteel die spesifieke koëffisiënte vir die hitte- en massa-oordrag te bepaal. ŉ Wiskundige model wat die hitte- en massa-oordrag in die hergenereerder as ŉ funksie van hitte- en massa-ruilkoëffisiënte beskryf, tesame met hidrodinamiese parameters, word gebruik.

2.4.4 Kriogeniese gaschromatografie

Dit is moontlik om waterstof- en deuterium-isotope op ŉ gekombineerde kolom bestaande uit ŉ 5 Å molekulêre sif en Al_2O_3 deur kriogene gaschromatografie te skei en suiwerheid van deuterium bo 99,9% te bereik. Die 5 Å molekulêre sif en Al_2O_3 vervang die edelmetaal palladium sodat die koste verminder en die skeiding maklik

voltooi kan word. Dit is belowend vir ingenieurstoepassings en kan moontlik gebruik word vir skeiding van helium en MoF_6 (Junboa *et al.*, 2006).

2.4.5 Gasskeiding deur poreuse, anorganiese membrane

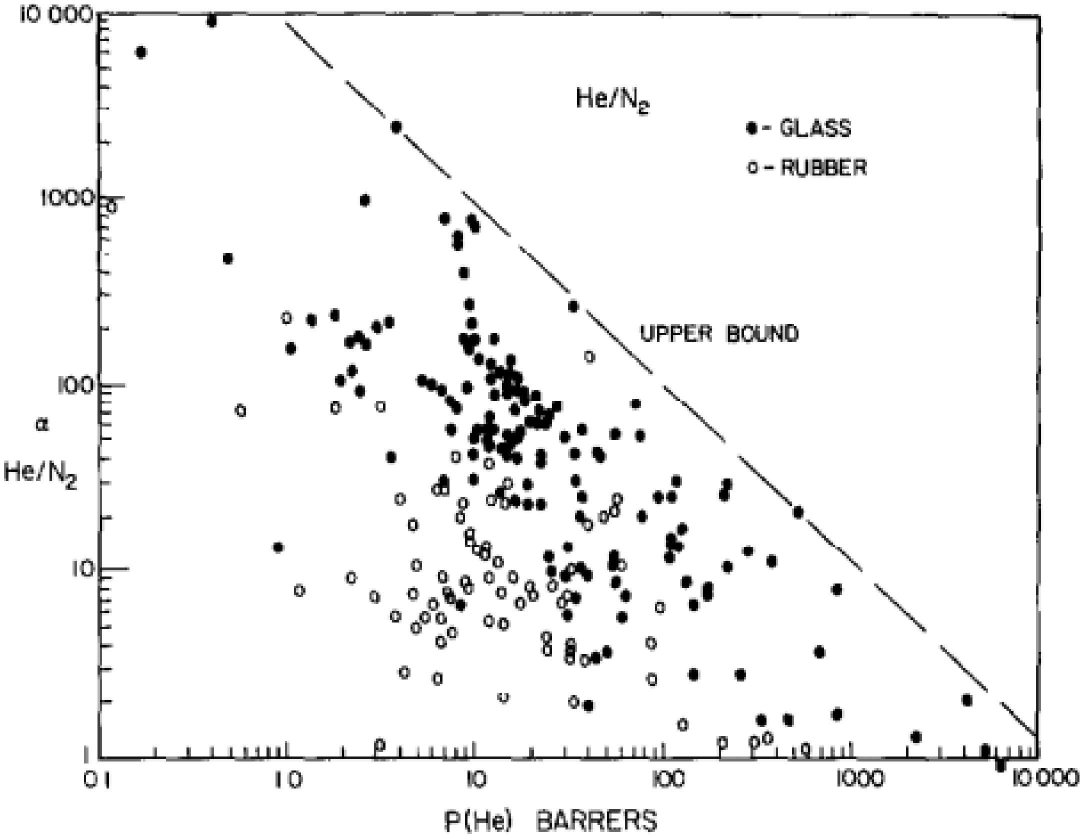
Shahid *et al.* (2015) beweer dat membraantegnologie energie-doeltreffende en omgewingsvriendelike skeidingsprosesse bied en dat dit belangrik geword het in baie volhoubare prosestoepassings soos bv. energie-opwekking, energie-storing, watersuiwering en gasskeiding. Die proses word teen kamertemperatuur bedryf en het nie konstante aandag nodig nie met die bykomende voordeel van lae bedryfskoste.

In 1979, het Monsanto (nou Permea, wat besit word deur Air Products en Chemicals, Inc.) die eerste kommersiële, asimmetriese, hol veselmembraanmodule vir gasskeiding ontwikkel. Die vesel was gebaseer op polisulfone, en die eerste toepassing was vir waterstofherwinning (H_2/N_2) in die ammoniaksinteseproses. Polimeermembrane is sedertdien gekommersialiseer vir die skeiding van algemene gaspare soos O_2/N_2, CO_2/CH_4, H_2/CH_4, He/lug en vir die ontwatering van die lug en aardgas (Robeson *et al.*, 2013). Gedurende die afgelope twee dekades, het polimeriese membrane baie uitbreiding ondergaan in gasskeidingtoepassing en wesenlike navorsingpogings is toegespits op die ontwikkeling van nuwe polimeriese membrane om membraanskeiding te verbeter. Ten spyte van al hierdie pogings, word polimeriese membrane beperk deur ŉ deurlaatbaarheid-selektiwiteitkompromisgedrag soos aangedui deur ŉ empiriese bogrens soos getoon in die beroemde Robeson grafiek, Figuur 2.9 wat hier weergegee word. Die log-log verhouding vir α_{ij} en P_i, vir die gaspaar He/N_2 word in Figuur 2.9 gebruik omdat N_2 ook ŉ nie-polêre gas is, soos MoF_6.

Die skeidingsfaktor tussen die paar *i* en *j* word gegee deur;

$$\alpha_{ij} = \frac{P_i}{P_j} = \left(\frac{D_i}{D_j}\right)\left(\frac{S_i}{S_j}\right) \qquad (2.19)$$

met *i* = vinnige gas, *S* = oplosbaarheid skeiding en *D* = diffusie skeiding (Robeson, 1991).



Figuur 2.10: He/N_2-skeidingsfaktor vs He-deurdringbaarheid (Robeson, 1991)

Robeson (1991) noem dat die resultate 'n duidelike bogrensverhouding toon waarbo feitlik geen data bestaan nie en onder die bogrens is die data byna aaneenlopend.

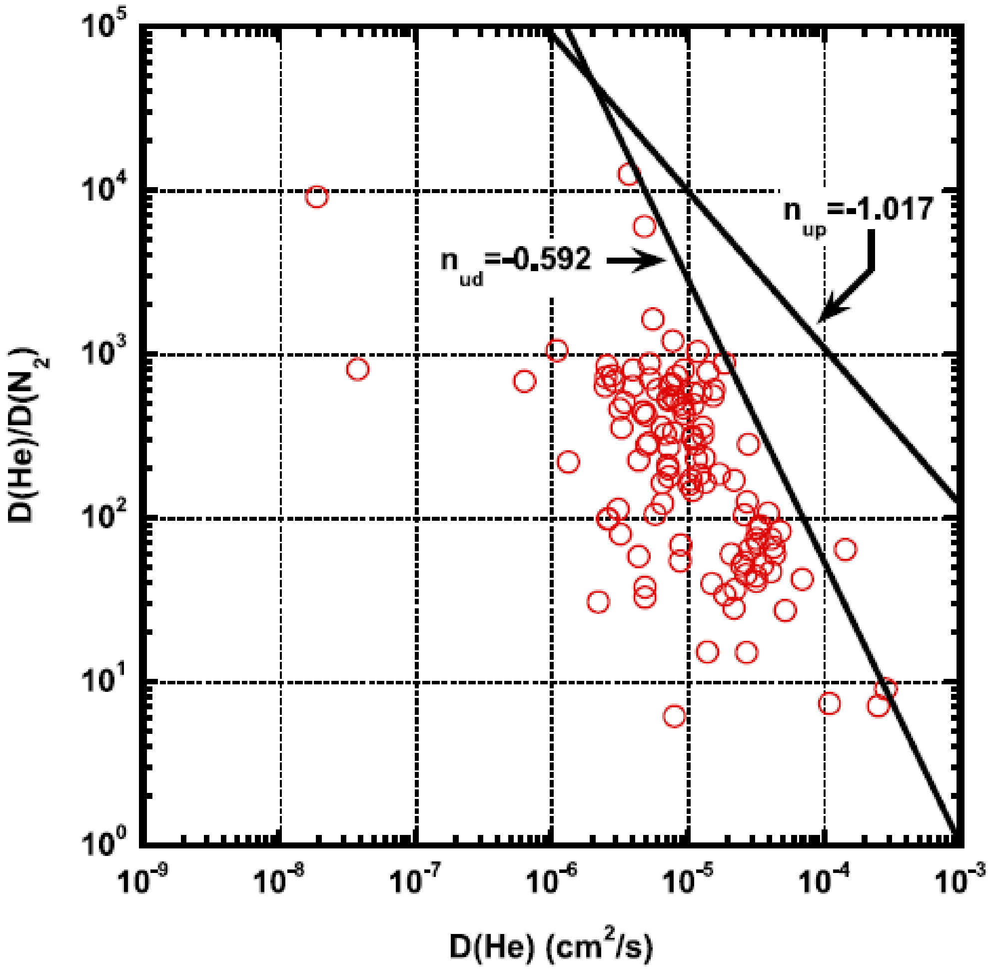
Die bo-grens van die He-deurdringbaarheid kan deur die volgende vergelyking bepaal word (Robeson, 1991):

$$P_i = k_{up} \alpha_{ij(u)}^{n_{up}} \tag{2.20}$$

Nuwe navorsing deur Robeson *et al.* (2013) toon dat die aangepaste vergelyking:

$$D_i = k_{ud} \alpha_{ij(u)}^{n_{ud}} \tag{2.21}$$

die bo-grens beter definieer soos gesien kan word in Figuur 2.11.



Figuur 2.11: Korrelasie vir diffusie bo-grens vir He/N_2 (Robeson *et al.*, 2013)

Die helling van die bogrens word gedefinieer deur óf n_{up} of n_{ud}. Die term n_{up} definieer die helling van die boonste grens wanneer die grafiek die log van die permeaselektiwiteit teenoor die log van die permeabiliteit toon, en die term n_{ud} definieer die helling van die boonste grens wanneer grafiek as die log van die diffusieselektiwiteit teenoor die log van die diffusie-koëffisiënt gestip is. Daarom, as oplosbaarheid onafhanklik is van deurlaatbaarheid, moet n_{up} en n_{ud}. identies wees, maar vir sommige gaspare, soos in Figuur 2.11 gesien, kan daar ŉ aansienlike verskil tussen hierdie terme wees.

In teenstelling met polimeriese membrane bied anorganiese membraanmateriaal uitstekende skeiding, gekombineer met ŉ hoë chemiese en termiese stabiliteit. Die grootste struikelblok in grootskaalse produksie van anorganiese membrane lê in hul hoë

koste en ŉ gebrek aan bewerkbaarheid. Gemengde matriksmembrane (MMM's) bied die geleentheid om die voordele van lae koste en maklike bewerking van polimeriesemateriaal te kombineer met die uitstekende vervoerprestasie van anorganiese vullers. Suksesvolle implementering van hierdie benadering kan robuuste membrane met verbeterde deurlaatbaarheid en selektiwiteit produseer wat die boonste limiet van Robeson grafiek sal oorskry. Maar MMM's werk dikwels nie soos wat voorspel word nie as gevolg van onvoldoende adhesie tussen die polimeermatriks en die vullers. Die polimeervullerkoppelvlakmorfologie is ŉ kritiese faktor om die algehele gasvervoereienskappe te bepaal omdat swak interaksie tussen die polimeer en vuller kan lei tot nie-selektiewe leë ruimtevorming, wat lei tot ŉ groot vloed maar lae selektiwiteit. Onlangs is metaal-organiese-raamwerke (MOF's) geïdentifiseer as aantreklike vullers. As gevolg van die hoë buigsaamheid van die MOF-ontwerp, kan die ontwerp so aangepas word om hoë selektiwiteit en deurlaatbaarheid vir spesifieke skeiding te verseker. Terselfdertyd laat die huidige MOF-chemie die inbedding van die MOF's in die polimeermatriks toe. Nietemin, word nie-selektieweruimtes nog dikwels op die MOF-polimeermatrikskoppelvlak gevorm (Lin *et al.*, 2018).

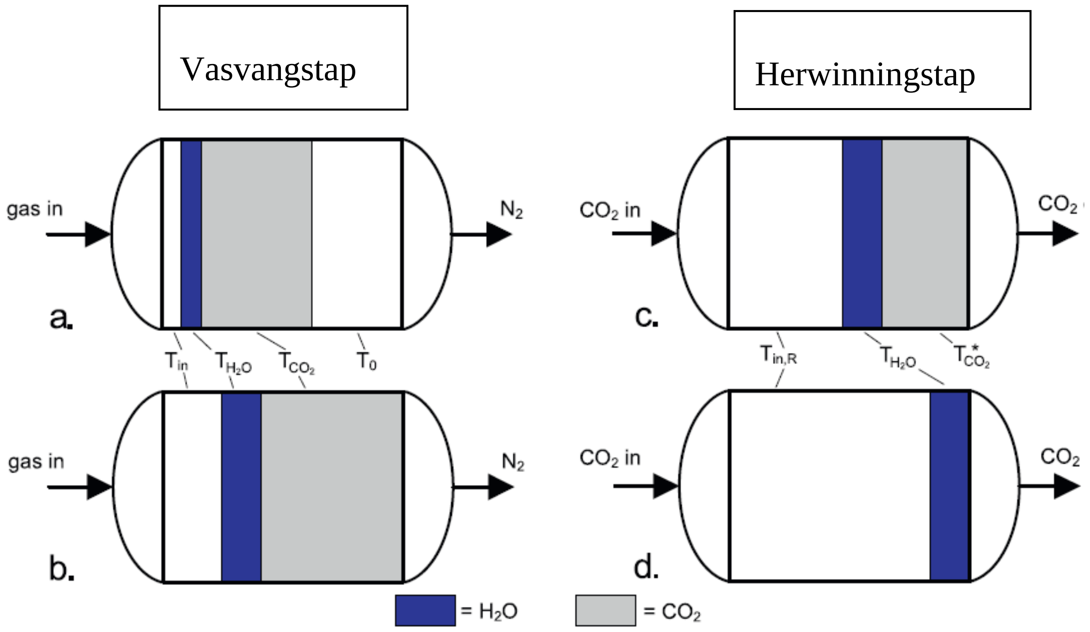
2.4.6 Pervaporasie

Pervaporasie is ŉ aantreklike alternatiewe skeidingsproses, aangesien die enigste energie wat nodig is om die skeiding uit te voer, die energie is wat nodig is vir die verdamping van die komponente wat deur die membraan moet beweeg. Die proses is nog aanlokliker vir die skeiding van aseotropiese mengsels, aangesien die skeiding nie op die relatiewe vlugtigheid van die komponente in die mengsel gebaseer is nie, maar net van die relatiewe affiniteit van een van die komponente vir die membraan afhanklik is. Dit word aanvaar dat die pervaporasieproses deur die oplossing-diffusie-meganisme gedryf word (Marx *et al.*, 2002).

2.4.7 Gasskeiding deur ŉ kriogene proses

Tuinier *et al.* (2011), beskryf die skeiding van ŉ $N_2/CO_2/H_2O$ gasmengsel en verduidelik dat die prosessiklus uit drie opeenvolgende stappe bestaan: ŉ

verkoelingsstap, ŉ vasvangstap en ŉ herwinningstap. Eerstens word die vastebed tot temperature onder -120 °C (T_0) afgekoel. ŉ Warm rookgas, met die veronderstelling dat dit ŉ mengsel van N_2, CO_2 en H_2O is, word ingevoer (by T_{in}) na die verkoelde, gepakte bed, soos geïllustreer in Figuur 2.12 a en b. As gevolg hiervan, word die rookgas afgekoel en die verpakkingsmateriaal verhit en die H_2O kondenseer op die verpakkingsoppervlak tot ŉ ewewigstemperatuur bereik word (T_{H_2O}). Wanneer al die H_2O gekondenseer het, word die gasmengsel verder afgekoel tot CO_2 begin desublimeer by die verpakkingsoppervlak, wat sodoende die koue van die verpakking verwyder tot ewewig weer bereik word (by T_{CO_2}). Hierdie twee fronte van gekondenseerde H_2O en gedesublimeerde CO_2 sal stadig deur die gepakte bed beweeg (soos geïllustreer in Figuur 2.11 a en b), terwyl N_2 geen faseverandering sal ondergaan nie as gevolg van sy baie laer doupunt en dus sal N_2 gesuiwer by die beduitlaat verkry word. Terselfdertyd sal die warm inkomende rookgas die verpakking verhit by die inlaat en die voorheen gekondenseerde water laat verdamp. Dit sal veroorsaak dat daar ook ŉ front van bewegende waterdamp (H_2O (g)) en ŉ front van gesublimeerde CO_2 deur die bed beweeg. Die bed moet omgeskakel word na die herstelstap sodra daar ŉ CO_2-deurbraak by die uitlaat waargeneem word. In die herstelstap, word suiwer CO_2-vloei herwin (by $T_{in,R}$) deur die bed soos in Figuur 2.12 c en d geïllustreer. Aanvanklik sal addisionele CO_2 desublimeer op die verpakkingsoppervlak, as gevolg van die relatief hoër CO_2-druk relatief tot die opnamestap. Die warm sone by die inlaat (wat by T_{in} is) sal deur die bed beweeg, wat veroorsaak dat die sones met gekondenseerde H_2O en gedesublimeerde CO_2 deur die bed sal bly voortbeweeg en suiwer CO_2 dus by die uitlaat verkry sal word. ŉ Deel van die uitlaat word afgeblaas en kan vir verdere vervoer en stoor saamgepers word. Gedurende die daaropvolgende verkoelingstap, word die oorblywende H_2O in die aanvanklike stadium verwyder. Om kontinue werking van die proses te verseker, is dit nodig om al drie stappe in parallel in (ten minste) drie beddens te laat funksioneer.



Figuur 2.12*:* Skematiese voorstelling van die proseskonsep (Tuinier *et al*., 2011)

2.5 Langmuir Isoterm

Die Langmuir-adsorpsiemodel is in 1932 deur Irving Langmuir voorgestel en die hoofaannames van hierdie isotermiese model is die volgende:

- Adsorbsie vind op spesifieke bindingsplekke op die oppervlak van die adsorbent plaas.
- Al die adsorpsieplekke op die oppervlak van die adsorbent is identies.
- Die oppervlak van die adsorbent is met 'n enkellaag geabsorbeerde molekules bedek.
- Daar is geen interaksie tussen die geadsorbeerde molekules op die adsorbent se oppervlakte nie. (Hussain, 2018)

Die Langmuir adsorpsiemodel word deur die volgende vergelyking gedemonstreer:

$$\theta = \frac{K_a P}{1 + K_a P} \tag{2.22}$$

Met $\theta = \frac{N}{N_0}$, waar θ breukdeel geokkupeerde plekke is,

N die aantal gevulde plekke en No is die totale aantal plekke beskikbaar is.

K_a = adsorpsiereaksiekonstante en P is druk.

2.6 Keuses

Die volgende faktore soos aangepas uit Rampersadh (2005), is oorweeg in die keuse van die skeidingproses:

- Selektiwiteit – het die proses die geskikte selektiwiteit?
- Word geen onsuiwerhede vrygestel nie?
- Doeltreffendheid – kan MoF_6 en/of HF effektief verwyder word?
- Kinetiese en termodinamiese oorwegings – is die proses vinnig genoeg en $|\Delta H_{rxn}|$ nie te groot nie?
- Fisiese eienskappe – is die absorbeerder in ŉ vorm wat effektiewe adsorpsie moontlik maak, bv. korrels, siwwe ens.? Word fisiese integriteit behou?
- Kan die adsorbent fisies geregenereer word deur verhoogde temperatuur of druk?
- Finansiële oorwegings - is die totale finansiële uitleg regverdigbaar?
- Is skeidingsmetode geredelik beskikbaar?
- Omgewingsoorwegings – is dit omgewingsvriendelik en herbruikbaar?
- Veiligheidsoorwegings – is die adsorbent giftig?

In lig van bogenoemde vereistes is elke moontlikheid oorweeg en die rede om dit te gebruik of nie word opsommend in Tabel 2.12 gegee. Na aanleiding daarvan is besluit om harse, alumina, adsorbente, geaktiveerde koolstof en bentoniet verder te ondersoek. Beskikbaarheid, selektiwiteit en finansiële oorwegings was bepalend in die keuse.

Sewe harse nl. A110, A111, A870, S984 A850FL, MN102 A100MO, twee adsorbente nl. CCP510 en CCP310,, alumina, geaktiveerde koolstof en bentoniet is vir gebruik geïdentifiseer. Die eienskappe van die harse, adsorbente en bentoniet word opsommend in Tabel 3.1 gegee.

Tabel 2.12: Keuse van skeidingproses

Gasskeiding	**Voordele**	**Nadele**
PSA	Selektiwiteit behoort goed te wees	Groot finansiële uitleg
TSA	Selektiwiteit behoort goed te wees	Groot finansiële uitleg
Kriogeniese distillasie		Beskikbaarheid Finansies
Kriogeniese gaschromatografie	Suiwerheid uitstekend	Beskikbaarheid en finansiële uitleg
Poreuse anorganiese membrane	Energie-doeltreffend en omgewingsvriendelik	Geskikte membrane feitlik onverkrygbaar
Pervaporasie	Energie-doeltreffend	Geskikte membrane
Kriogeniese proses		Groot finansiële uitleg Onsekerheid oor effektiwiteit
NaF kolomme	Geredelik beskikbaar Bekostigbaar	Poli-suur vorming lei tot disintegrering van korrels
Metaalfluoriede		Beskikbaarheid
CaF_2	Toon nodige selektiwiteit en stel nie onsuiwerhede vry nie	Kapasiteit slegs ʼn paar persent
Seoliete	Selektiewe adsorpsie	Koste en beskikbaarheid
Geaktiveerde alumina	Geredelik beskikbaar Bekostigbaar Korrels	Onseker oor effektiwiteit en selektiwiteit
Hars	Geredelik beskikbaar Bekostigbaar	Onseker oor effektiwiteit en selektiwiteit
Bentoniet	Geredelik beskikbaar Bekostigbaar	Onseker oor effektiwiteit en selektiwiteit
Geaktiveerde koolstof	Geredelik beskikbaar Bekostigbaar	Onseker oor effektiwiteit en selektiwiteit

HOOFSTUK III: METODOLOGIE

3 Metodologie

3.1 Opsomming van eksperimentele benadering

Na keuse van harse en adsorbente is op die volgende werkswyse besluit:

- Ontwerp ʼn toetslus, sien Figuur 3.1, om die verskillende adsorbente te toets deur middel van die volumetriese metode.
- Bou die ontwerpte toetslus in ʼn elektriese oond sodat droging deur hittebehandeling kan plaasvind.
- Doen toetse met MoF_6-gas om adsorbsievermoë van adsorbente en harse t.o.v. MoF_6 te bepaal. Hierdeur kan bepaal word of adsorbent as finale poleerder om MoF_6 uit helium te adsorbeer gebruik kan word.
- Herhaal toetse met enkele adsorbente met HF gas.

Die metode wat gebruik word, is die volumetriese metode. Volumetrie of verkieslik "manometrie", is die oudste metode om die adsorpsie van gasse in vaste stowwe te ondersoek. Die beginsel van volumetriese gasadsorpsie is eenvoudig: ʼn gegewe hoeveelheid gas word vrygestel na die reaktor wat aanvanklik geëvakueer is en wat ʼn monster van die adsorbent insluit. Die gas word op die (eksterne en interne) oppervlak van die adsorbentmateriaal geadsorbeer. Massabalans en die ideale gasvergelyking word gebruik om die hoeveelheid gas wat geadsorbeer word te bereken (Keller & Staudt, 2005).

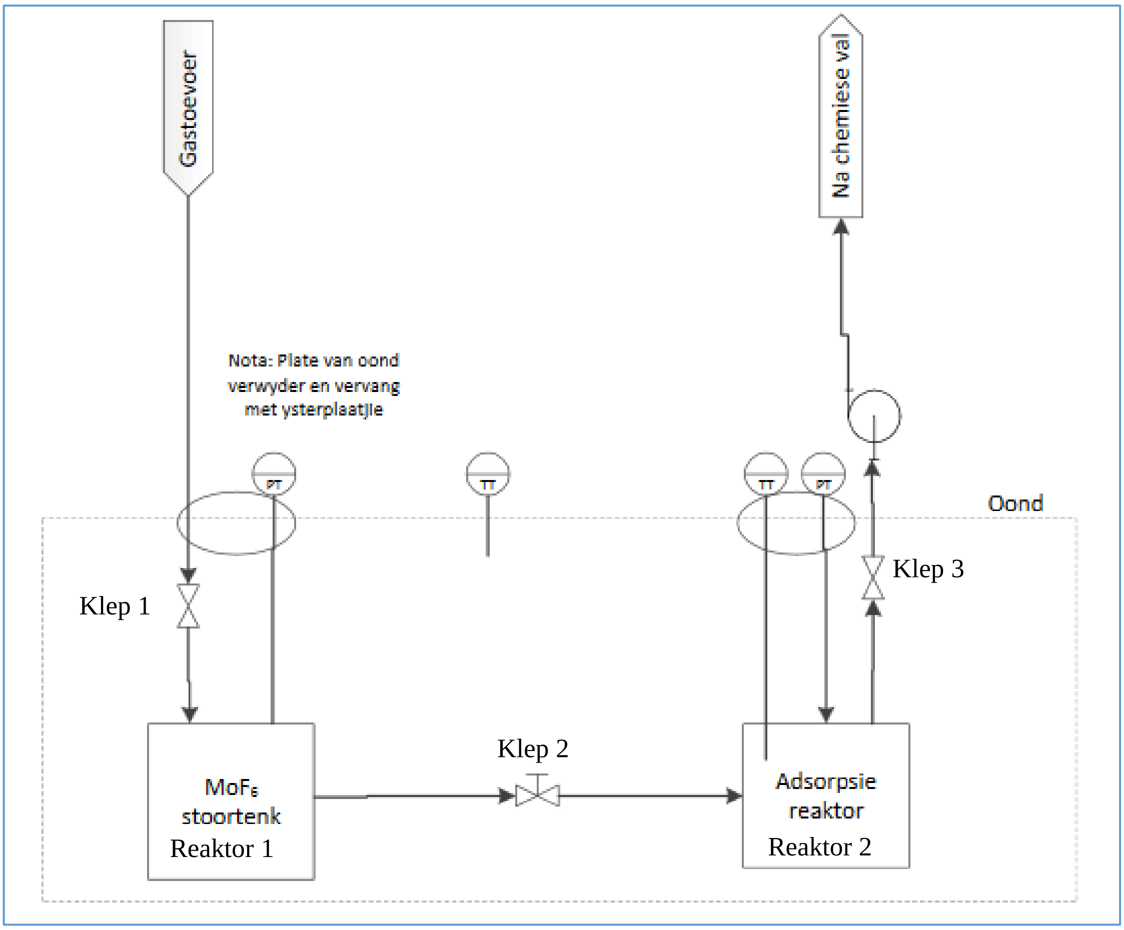
Twee reaktore, reaktor 1 en reaktor 2, van roesvrye staal, met flense sodat dit lugdig kan sluit, is met drukmeters en temperatuurkoppels toegerus. Klep 1 is na die eerste reaktor en klep 2 tussen die twee reaktore geïnstalleer. Klep 3 is tussen die toetsbank en die spruitstuk geïnstalleer. Die spruitstuk voorsien helium en MoF_6-gas en die afvoer na ʼn kalsiumkarbonaatchemieseval. Reaktor 1 word gelaai met die gas terwyl klep 2 na reaktor 2 waarin die adsorbent is, gesluit is. Aangesien die volume van reaktor 1 bekend is, kan die mol gas met die ideale gasvergelyking bereken word. Na lading van die gas

en bepaling van druk en temperatuur word klep 2 tussen reaktor 1 en reaktor 2 oopgemaak. In reaktor 2 is die adsorbent, wat vooraf gedroog en geweeg is, geplaas. Die volume van die reaktor 2 is ook bekend. Die verandering in druk en temperatuur word bepaal om te bepaal hoeveel gas word deur adsorbent geadsorbeer. Sodoende kan die adsorbsievermoë van 'n spesifieke adsorbent bepaal word.

Die volgende vergelyking is gebruik om die aantal mol aanvanklik teenwoordig te bereken deur die druk op die oomblik wat klep 2 oopgedraai is te gebruik:

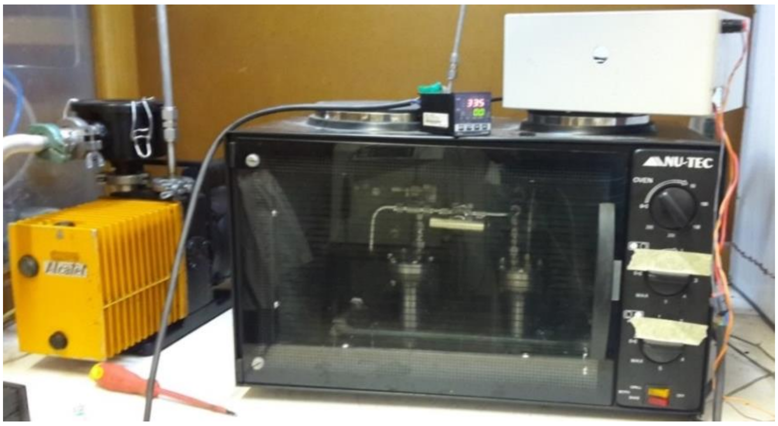
$$n = \frac{pV}{RT} \tag{3.23}$$

Met druk in kPa, volume in dm^3, temperatuur in Kelvin en R = 8,314 J/(mol·K).



Figuur 3.1: Vloeidiagram wat ontwerp van adsorbenttoetslus illustreer

In Figuur 3.2 kan die oond en adsorbenttoetslus gesien word. Binne-in die oond is die twee reaktore en twee kleppe. In die twee reaktore is druksensors en temperatuursensors. ʼn Temperatuursensor is ook binne-in die die oond geïnstalleer.



Figuur 3.2: Reaktore en kleppe van adsorbenttoetslus wat in oond geïnstalleer is

Figuur 3.3 toon die spruitstuk waarvandaan MoF_6 en helium voorsien word. Deur die spruitstuk kan die afgas ook deur die kalsiumkarbonaatskrobber, wat agter die spruitstuk gesien kan word, gestuur word. Die spruitsstuk is gekoppel aan die vakuumpomp sodat vakuum getrek kan word.

Figuur 3.3: Spruitstuk met kleppe om gastoevoer na reaktore in oond te voorsien

In Figuur 3.4 kan die koppeling tussen die oond en die spruitstuk waargeneem word. Beide die oond en die spruitstuk is in ʼn dampkas vir veiligheidsredes.

Figuur 3.4: Koppeling van spruitstuk aan reaktore in oond

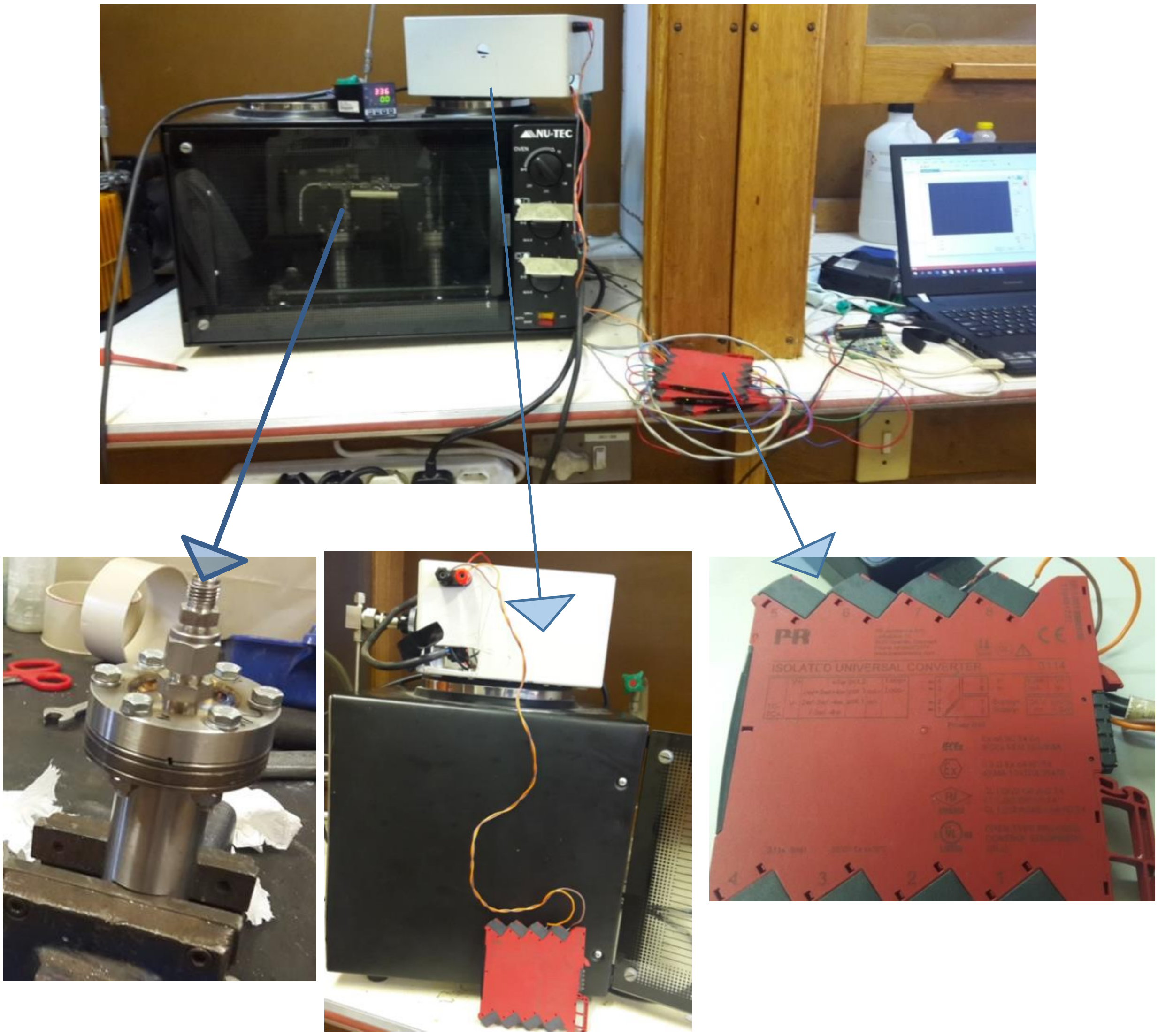
Figuur 3.5 toon die sensors wat deur die agterkant van die oond geïnstalleer is.

Figuur 3.5: Agterkant van oond met sensors

Figuur 3.6: Klein koperhouers met verskillende adsorbente

Weens die elektrostatiese kragte tussen die adsorbente en die glashouers is oorgeskakel van glashouers na klein koperhouers soos in Figuur 3.6 waargeneem kan word.

Figuur 3.7 toon die kragbron, die koppeling tussen die druk- en temperatuursensors, I/O kaart en die rekenaar.



Figuur 3.7: Adsorbenttoetslus gekoppel aan rekenaar

Die verskillende adsorbente is oornag gedroog by geskikte temperatuur vir dié spesifieke adsorbent in die droogoond. Die massa van die adsorbent is na droging bepaal. Na droging en massabepaling is die adsorbent onmiddellik in reaktor 2 geplaas en die reaktor is lugdig gesluit met behulp van aluminiumseël en flens wat met boute en moere vasgedraai is.

3.2 Keuse van harse en adsorbente

Soos in hoofstuk 2, paragraaf 2.5 beskryf en verder in Tabel 2.12 uitgebrei is, is daar besluit om harse, koolstof, alumina en bentoniet te gebruik. Na deeglike bestudering van adsorbente en hulle eienskappe soos in Tabel 3.1 opgesom is die volgende adsorbente gekies:

- A110
- A111
- A100Mo
- MN102
- S984
- A870
- A850FL
- Bentoniet
- Alumina
- Geaktiveerde koolstof
- CCP510
- CCP310

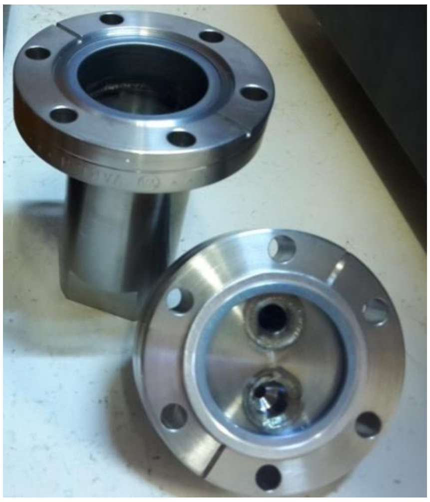
Tabel 3.1: Opsommende inligting van adsorbente

Naam	Polimeerstruktuur	Funksionele groep	Ioniese vorm	Totale kapasiteit	Partikelgrootte	SG	Temperatuurlimiet	Toepassing
A110	Makroporeuse polistireen kruisverbind met divinielbenseen	Primêre amiene	Vry basis (VB)	2 ek/l	300 - 1200 µm	1,07	60 °C	Suur en kleur verwyder. CO_2 en aldehied adsorpsie.
A111	Makroporeuse polistireen kruisverbind met divinielbenseen	Tersiêre amiene	Vry basis (VB)	1,7 ek/l	300 - 1200 µm	1,02	100 °C Cl^- vorm 60 °C VB vorm	Demineralisering.
A870	Gel poliakriel kruisverbind met divinielbenseen	Kwaternêre en tersiêre amiene	VB of Cl^- vorm	1,25 ek/l	300 - 1200 µm	1,08	35 °C (OH^- vorm)	Organiese materiaal, sterk suur en swak suur verwydering.
S984	Makroporeuse poli-akriel kruisverbind met divinielbenseen	Poli-amiene	VB	2,7 ek/l		1,1		Verwydering van swaar metale en anione.
A850FL	Gel poliakriel kruisverbind met divinielbenseen	Kwaternêre ammonium	Cl^- vorm	1,25 ek/l	500 - 1000 µm	1,09	35 °C (OH^- vorm)	Demineralisering.
MN102	Makroporeuse polistireen kruisverbind met divinielbenseen	Tersiêre amiene	Vry basis (VB)	0,15 ek/l	535 ± 85 µm	1,07	60 °C VB vorm	Sorpsie, hidrofobiese organiese spesie skeiding
A100 Mo	Makroporeuse polistireen kruisverbind met divinielbenseen	Tersiêre amiene	Vry basis (VB)	1,3 ek/l	0,6 - 0,85 mm	1,04	60 °C VB vorm	Demineralisering.
Geaktiveerde Alumina	Baie poreuse keramiekagtige verbinding.				5 mm - 8 mm	0,75		Verwydering van waterdamp uit lug, industriële gasse, CO_2, natuurlike en gekraakte gasstrome.
Koolstof Carbosorb	Groot oppervlakarea. Groot aantal mikroporië				1,5 mm - 4 mm			Gas suiwering en skeiding
Bentoniet	Lamellêre, drie-laag mineraal met twee tetrahedriese lae wat 'n sentrale oktahedriese laag omring				Lae 1 nm in dikte en 2 mikron in deursnee			

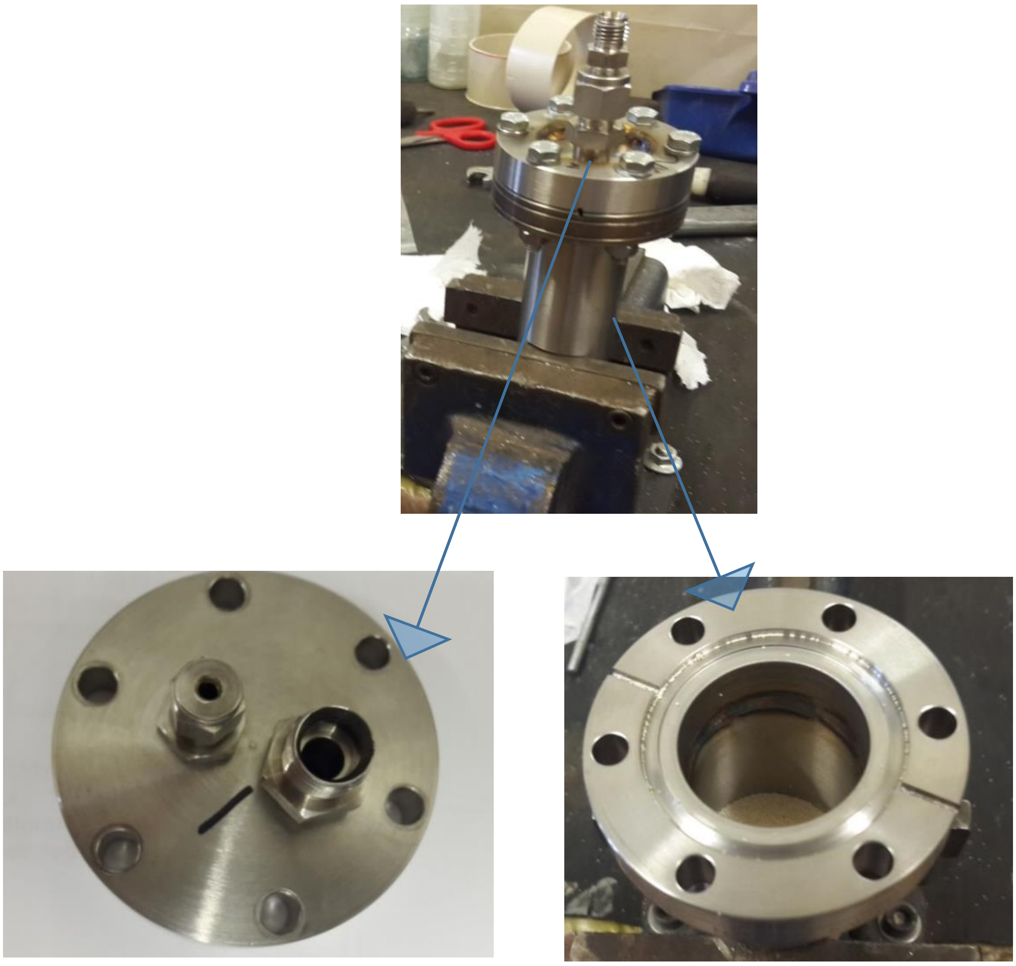
3.3 Stap-vir-stap-metode

Aanvanklik is glasbekers gebruik om ongeveer 5 g hars te droog in die oond. Probleme is egter ondervind met elektrostatiese kragte tussen die hars en die glasbeker. Die gekose massa van 5 g was ook te veel. Die massa van die harse en adsorbente is verminder na ongeveer 0,05 g en klein koperhouers is gebruik.

1. Die reaktore is met water gevul en die massa water is geweeg om sodoende die volume van die reaktore te bepaal soos gesien kan word in **Error! Reference source not found.**.
2. Die reaktore is oornag in die droogoond by 150 °C gedroog.
3. Die harse en adsorbente is by korrekte temperatuur in die droogoond gedroog.
4. Die massa van die adsorbente is bepaal met elke eksperiment.
5. Die geweegde adsorbent is versigtig in die reaktor 2 geplaas en die aluminiumseël, soos gesien kan word in Figuur 3.8, is op die reaktor geplaas waarna die flens met moere en boute vasgedraai is soos getoon in Figuur 3.9.



Figuur 3.8: Reaktore met aluminiumseël sigbaar



Figuur 3.9: Reaktor in bankskroef

6. Om deeglike sluiting tussen die flens en die reaktor te verseker moet die aluminiumseël elke keer nadat reaktor oopgemaak is, vervang word.
7. Die toetsbank is oornag by die maksimum temperatuur wat die spesifieke adsorbent kan hanteer gedroog.
8. Spoel die bank 3 – 4 keer met helium.
9. Trek vakuum.
10. Laai MoF_6 uit die gassilinder deur Pelchem voorsien tot ongeveer 40 kPa in reaktor 1 soos getoon in Figuur 3.10.
11. Draai klep 2 na reaktor 2 oop en noteer drukverloop .
12. Die druk en temperatuur is met programmatuur in ŉ Excel lêer opgeneem maar is terselfdertyd neergeskryf.

Klep word oopgedraai om MoF_6 te laai en klep regs beheer vloei van MoF_6

Figuur 3.10: Laai van MoF_6

13. Wanneer die druk stabiliseer, is dit 'n aanduiding dat geen verdere MoF_6 geadsorbeer word nie en is die lopie gestaak.
14. Helium is ingelaai om die MoF_6 te verdun en die gasmengsel is dan stadig deur die chemiese skropper vrygestel. Die toetsbank is deeglik gespoel, geëvakueer en die adsorbent is verwyder.
15. Die massatoename in die adsorbent is bepaal as kontrole met volumetriese berekeninge om hoeveelheid gas wat geadsorbeer is te bepaal.
16. Die proses is herhaal vir al die harse, adsorbente, bentoniet, alumina en koolstof.

HOOFSTUK IV:
RESULTATE EN BESPREKING

4 Resultate en bespreking

4.1 Resultate

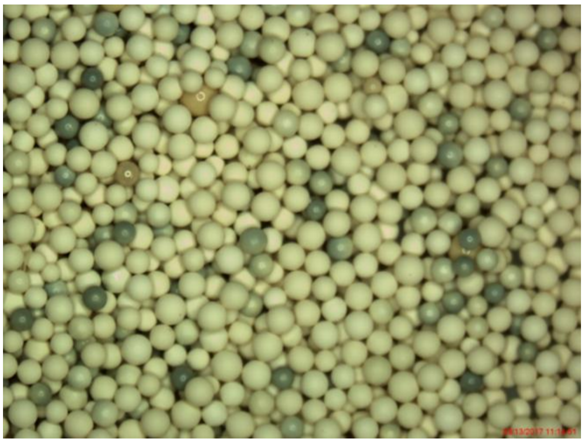
In al die grafieke wat volg dui P_1 die druk in reaktor 1 aan en P_2 die druk in reaktor 2.

4.1.1 A110

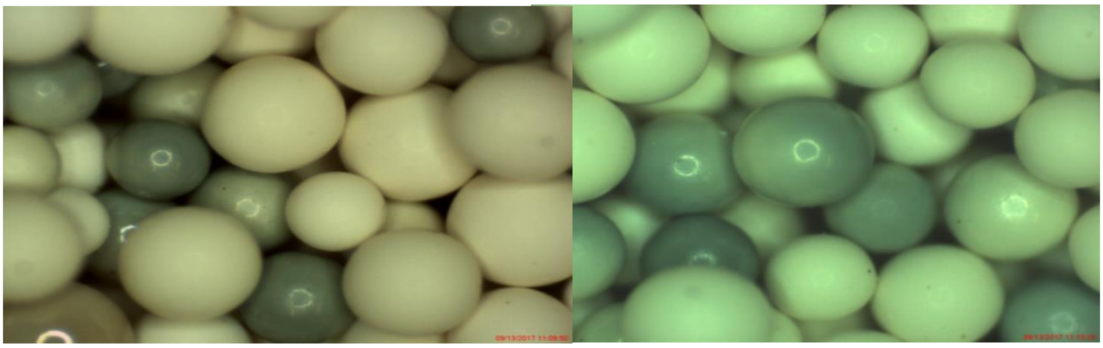
A110 is gekies omdat ŉ makroporeuse polistireen kruisverbind met divinielbenseen is wat suur en kleur kan verwyder. Die ioniese vorm is ŉ vry basis met primêre amien as funksionele groep. Die temperatuurlimiet van 60 °C vergemaklik droging van die adsorbentkorrels. Die grootte, vorm en voorkoms soos gesien kan word in Figuur 4.1 maak dit baie maklik hanteerbaar.

Figuur 4.1: A110 voor adsorpsie

Die eksperiment is aanvanklik gedoen met ŉ oormaat adsorbent en later herhaal met ŉ oormaat gas. In beide gevalle het die adsorbentkorrels hulle vorm behou, nie gesinteer nie en slegs kleurverandering na groenblou getoon weens adsorpsie van MoF_6 soos gesien kan word in Figuur 4.2 en die vergrote beeld in Figuur 4.3.

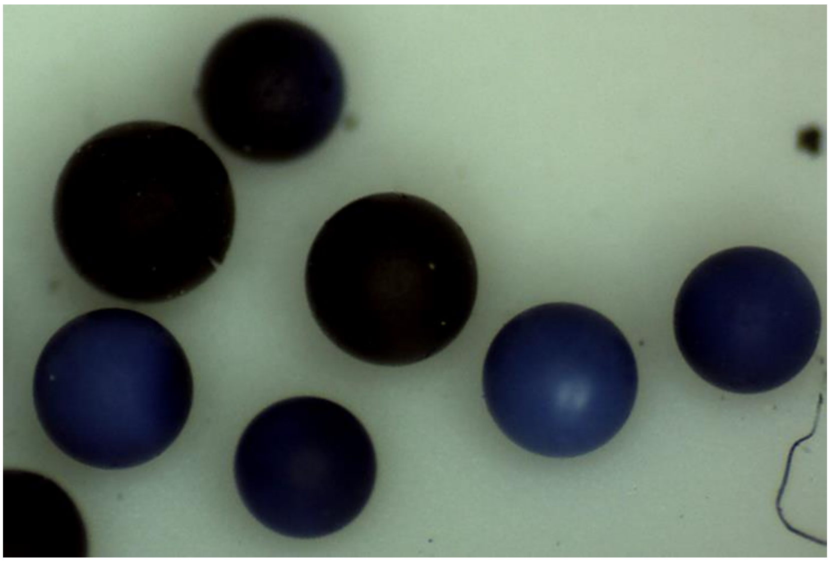


Figuur 4.2: A110 na adsorbsie



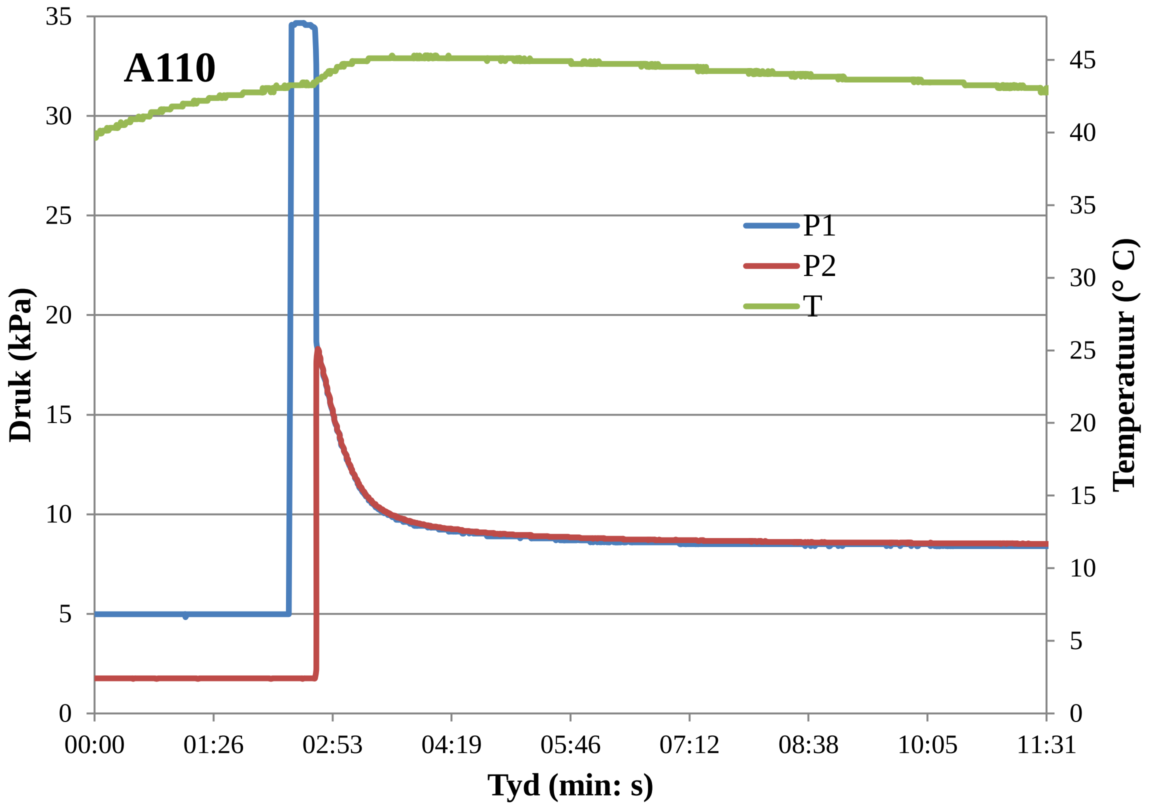
Figuur 4.3: Korrels van A110 na adsorbsie (vergroot)

In die Bylaag is tabel A met die opsommende data soos verwerk vanaf Excel. Aanvanklik is 3,6027 g, 0,5016 g, 2,4233 g en 0,5365 g adsorbent gebruik. Al die MoF_6 is deur die oormaat adsorbent geadsorbeer. Aangesien die adsorbent in oormaat was kon nie werklik bepaal word wat die adsorbeervermoë van A110 was nie. Nadat slegs 0,0847 g adsorbent en ŉ oormaat MoF_6 gebruik is, is al die MoF_6 nie geadsorbeer nie. Sodoende kon die adsorbeervermoë van A110 bepaal word. Die adsorbeervermoë van A110 is bereken as 0,842 g MoF_6 per gram adsorbent. In Figuur 4.4 kan die donkerblou verkleuring van die adsorbent na adsorpsie van MoF_6 gesien word en opgemerk word dat die korrels steeds hul vorm behou nie en sinter nie.



Figuur 4.4: A110 na adsorbsie met oormaat MoF_6

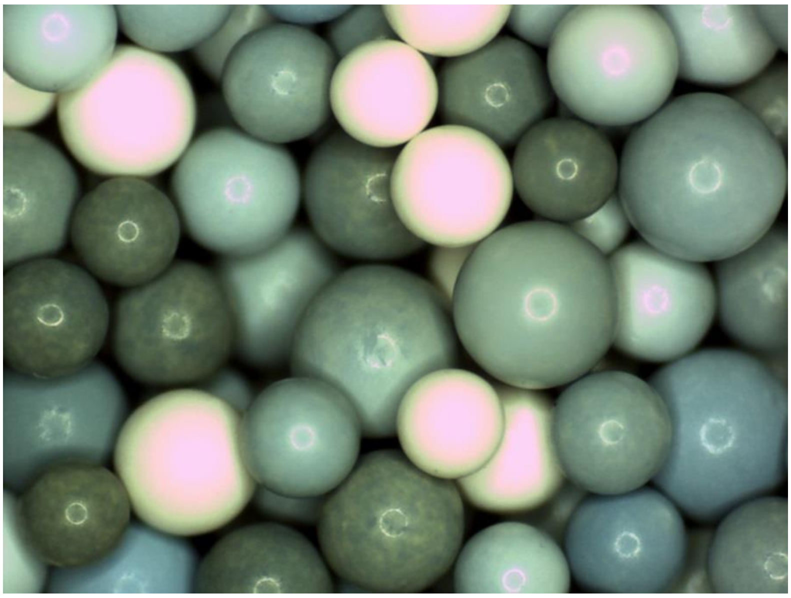
Die verloop van drukverandering en temperatuurverandering teenoor tyd vir die eksperiment gedoen op 4 Oktober 2017, word grafies in Figuur 4.5 uitgebeeld. Tydens die ekperiment is slegs 0,0847 g A110 adsorbent gebruik en die druk is aanvanklik tot 34,67 kPa gelaai. Die druk was na 11 minute konstant en geen verder adsorbsie het plaasgevind nie weens oormaat MoF_6 en die klein massa van A110 in reaktor 2.



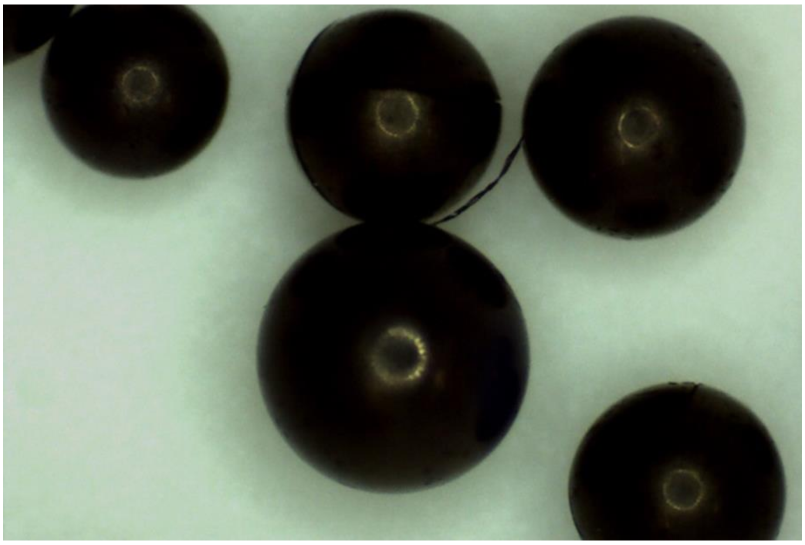
Figuur 4.5: Verloop van P_1, P_2 en temperatuur vir A110

4.1.2 A111

A111 is gekies omdat dit ŉ makroporeuse polistireen kruisverbind met divinielbenseen is wat vir demineralisering gebruik word. Die ioniese vorm is ŉ vry basis met tersiêre amien as funksionele groep. Droging word vergemaklik met die temperatuurlimiet van 60 °C. Die grootte (1,2 mm), vorm en voorkoms soos gesien kan word in Figuur 4.6 maak dit baie maklik hanteerbaar.



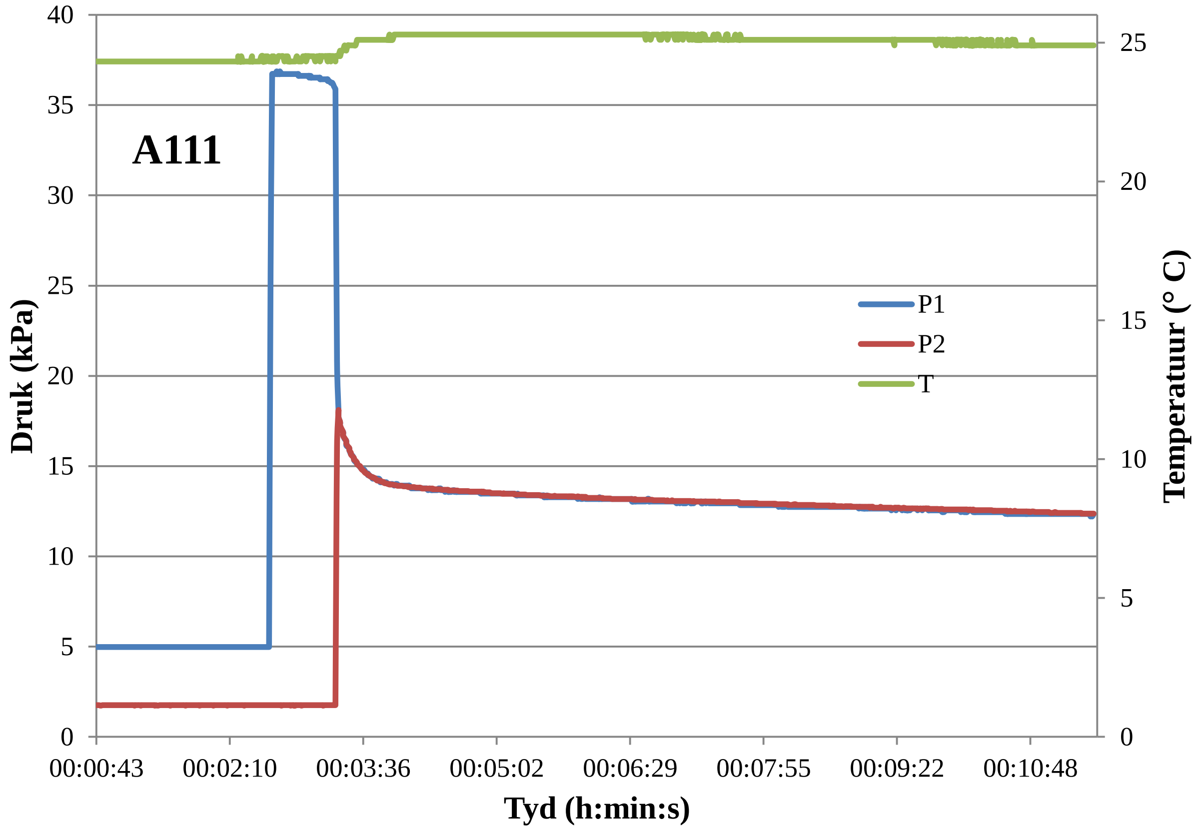
Figuur 4.6: A111 na adsorpsie op 21 September 2017



Figuur 4.7: A111 na adsorpsie 4 Oktober 2017

Aanvanklik is 6,0527 g, 0,3081 g en 0,5621 g adsorbent gebruik. Al die MoF_6 is deur die oormaat adsorbent geadsorbeer. Nadat slegs 0,0424 g adsorbent en 'n oormaat MoF_6 gebruik is, is al die MoF_6 nie geadsorbeer nie. Sodoende kon die adsorbeervermoë van A111 bepaal word. Soos in Figuur 4.7 gesien kan word het die adsorbent swart verkleur a.g.v. adsorpsie van oormaat MoF_6 maar korrels het steeds hul vorm behou en nie gesinter nie. Die fisiese eienskappe van korrels A111 was dus steeds bevredigend na adsorpsie.

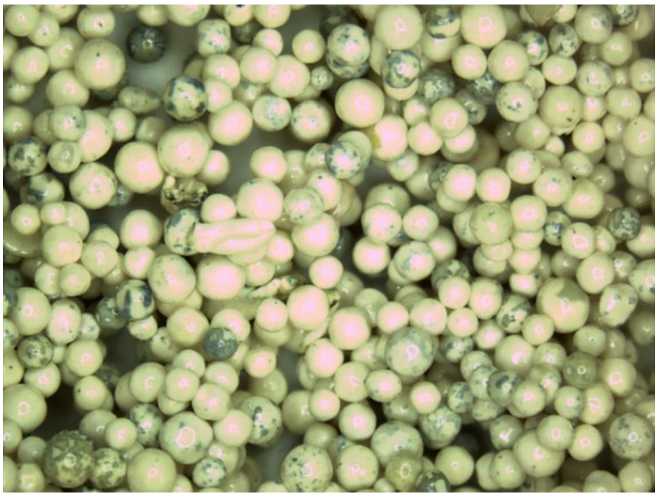
Die eksperiment is op 4 Oktober 2017 herhaal waartydens slegs 0,0424 g adsorbent gebruik is. Die MoF_6 is tydens die ekperiment gelaai tot 'n aanvanklike druk van 35,89 kPa. Die grafiese voorstelling van druk- en temperatuurverandering teenoor tyd word geïllustreer in Figuur 4.8. In die Bylaag in Tabel B: Opsommende inligting A111 is die adsorbeervermoë van A111 as 1,30 g MoF_6 per gram adsorbent bereken.



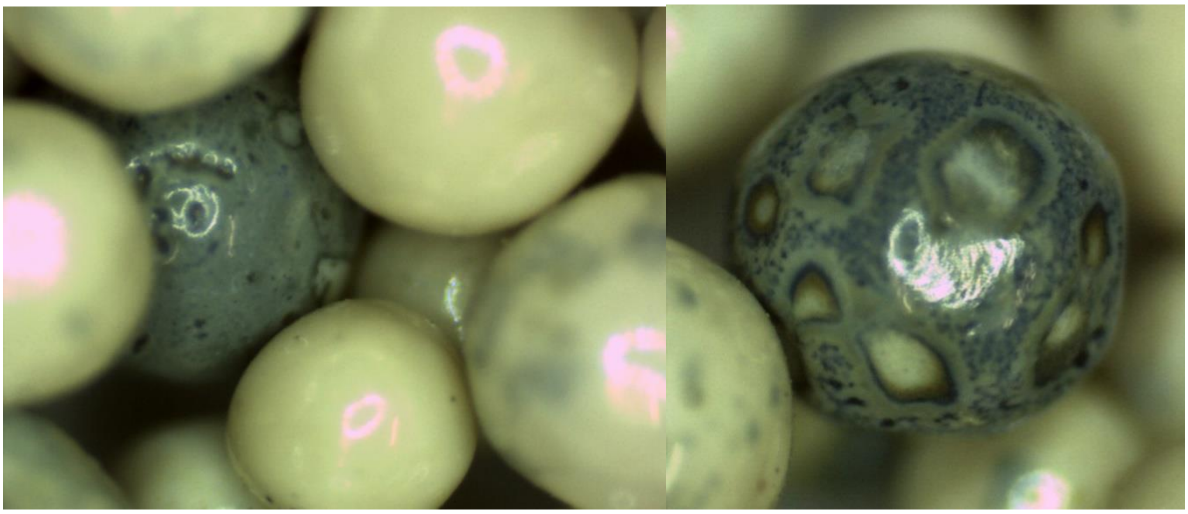
Figuur 4.8: Verloop van P_1, P_2 en temperatuur vir A111

4.1.3 A100Mo

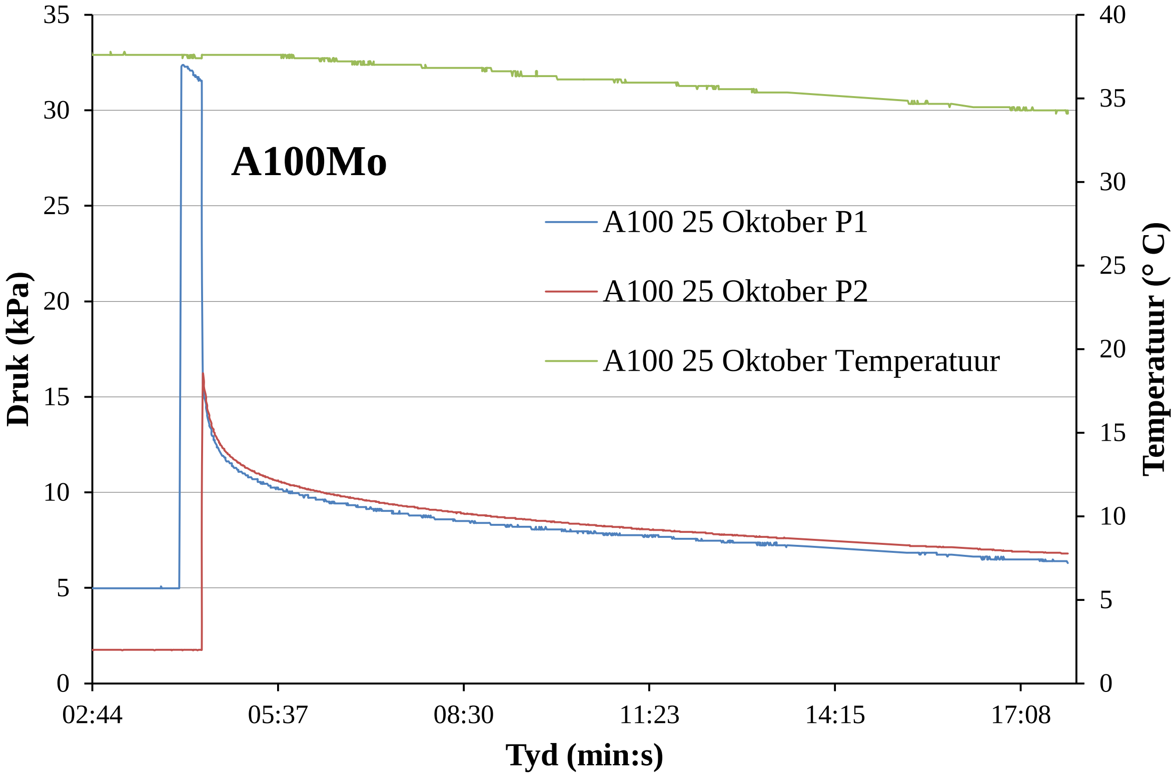
Net soos A111 is A100Mo ŉ makroporeuse polistireen kruisverbind met divinielbenseen wat vir demineralisering gebruik word. Die ioniese vorm is ook ŉ vry basis met tersiêre amien as funksionele groep. Droging word vergemaklik met die temperatuurlimiet van 60 °C. In Figuur 4.9 kan die opname van MoF_6 waargeneem word deur die blou dele in die korrels. In Figuur 4.10 kan die kleurverandering van nader beskou word.



Figuur 4.9: A100Mo na adsorbsie



Figuur 4.10: Korrels van A100Mo na adsorbsie (vergroot)



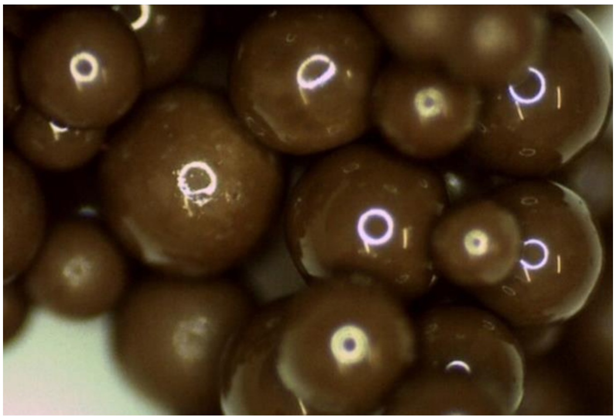
Figuur 4.11: Verloop van P_1, P_2 en temperatuur vir A100Mo

Die grafiese voorstelling van druk- en temperatuurverandering teenoor tyd vir die lopie waar slegs 0,0339 g A100Mo gebruik is word getoon in Figuur 4.11.

Aanvanklik is 2,0315 g, 1,5795 g en 1,0224 g adsorbent gebruik. Al die MoF_6 is deur die oormaat adsorbent geadsorbeer. Om die adsorbsievermoë van A100Mo te bepaal is slegs 0,0339 g adsorbent en 0,0006 mol MoF_6 gebruik sodat MoF_6 in oormaat is. Die adsorbsievermoë van A100Mo was dan 2,17 g gas/gram adsorbent soos bepaal in Tabel C in Bylaag.

4.1.4 MN 102

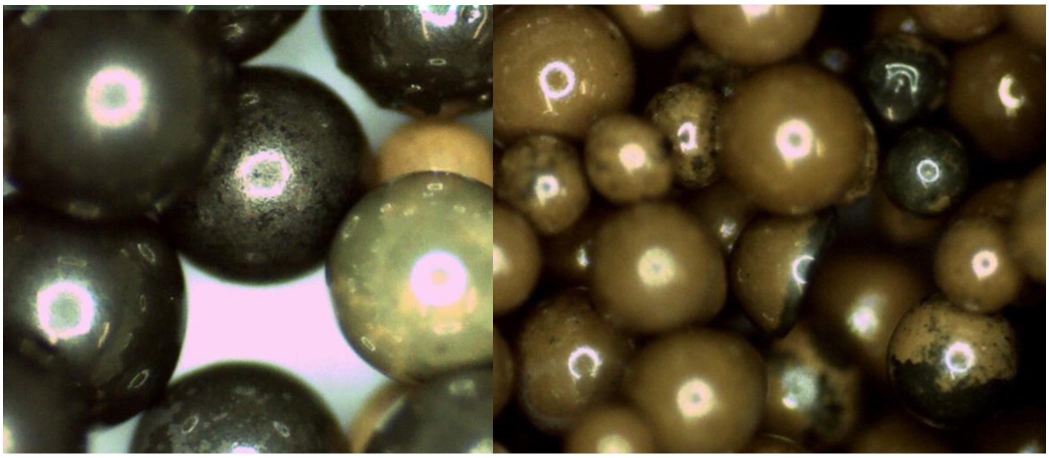
MN102 is ook ʼn makroporeuse polistireen kruisverbind met divinielbenseen met die ioniese vorm is ʼn vry basis met tersiêre amien as funksionele groep. Die korrels is donkerbruin soos gesien kan word in Figuur 4.12 en word vir deminalisering gebruik. Droging word vergemaklik met die temperatuurlimiet van 60 °C.



Figuur 4.12: MN102 voor adsorpsie

Aanvanklik is 3,1832 g, 0,3517 g en 1,7234 g adsorbent gebruik. Daar was slegs 0,0003 mol MoF_6 in die reaktor en dus is al die MoF_6 deur die oormaat adsorbent geadsorbeer. Om die adsorbsievermoë van MN102 te bereken moet MoF_6 in oormaat teenwoordig wees. Nadat slegs 0,01 g adsorbent en 0,00071 mol MoF_6 gebruik is, is adsorbsievermoë van MN102 as 3,30 g gas/gram adsorbent bereken. In tabel D in Bylaag is volledige inligting. In Figuur 4.13 kan kleurverandering van die korrels na adsorbsie waargeneem word.

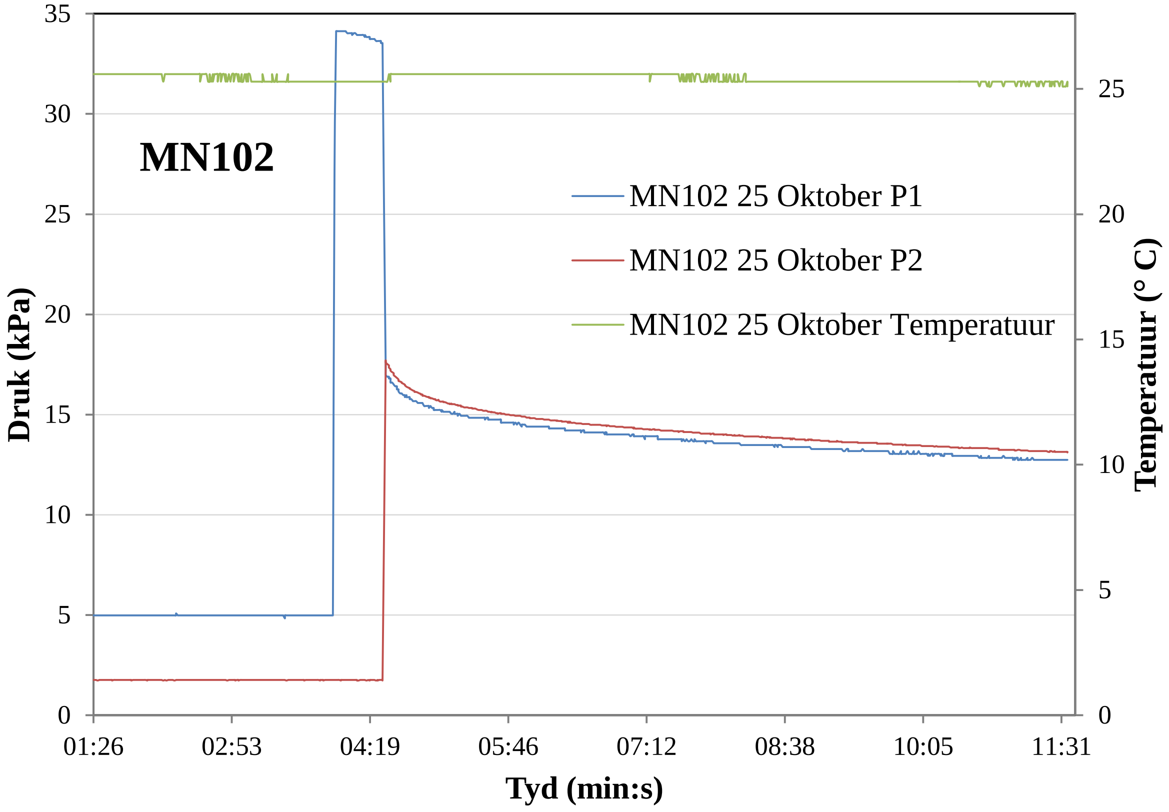
Figuur 4.13: MN102 na adsorbsie



Figuur 4.14: MN102 na adsorpsie

In Figuur 4.14 kan kleurverandering van opname van blou MoF_6 waargeneem word.

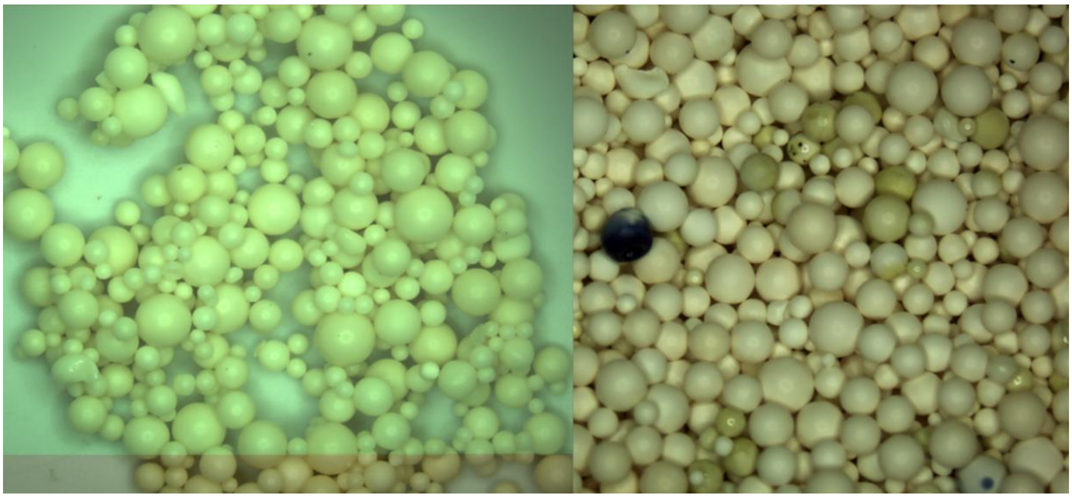
Die grafiese voorstelling van druk en temperatuur teenoor tyd word geïllustreer in Figuur 4.15.



Figuur 4.15: Verloop van P_1, P_2 en temperatuur vir MN102

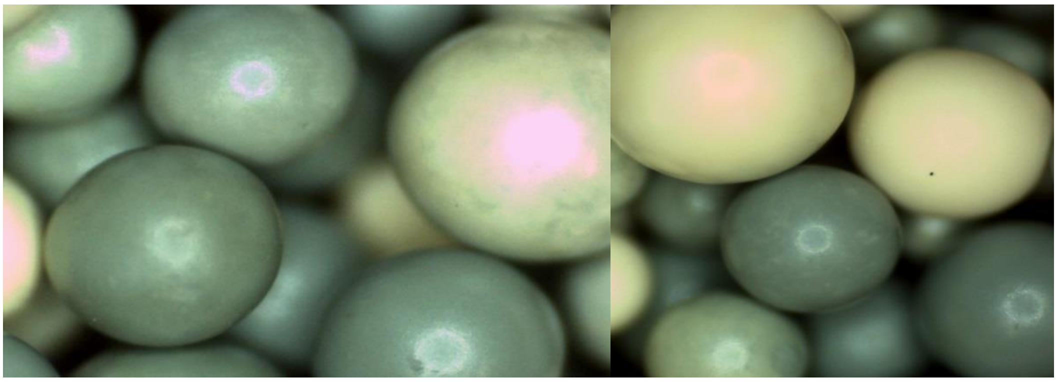
4.1.5 S984

S984 is gekies omdat ŉ makroporeuse poli-akriel kruisverbind met divinielbenseen is wat vir die verwydering van swaar metale en anione gebruik word. Die ioniese vorm is ŉ vry basis met poli-amiene as funksionele groep. Sommige van die wit korrels het verkleur na donkerblou na adsorbsie soos waargeneem kan word in Figuur 4.16.



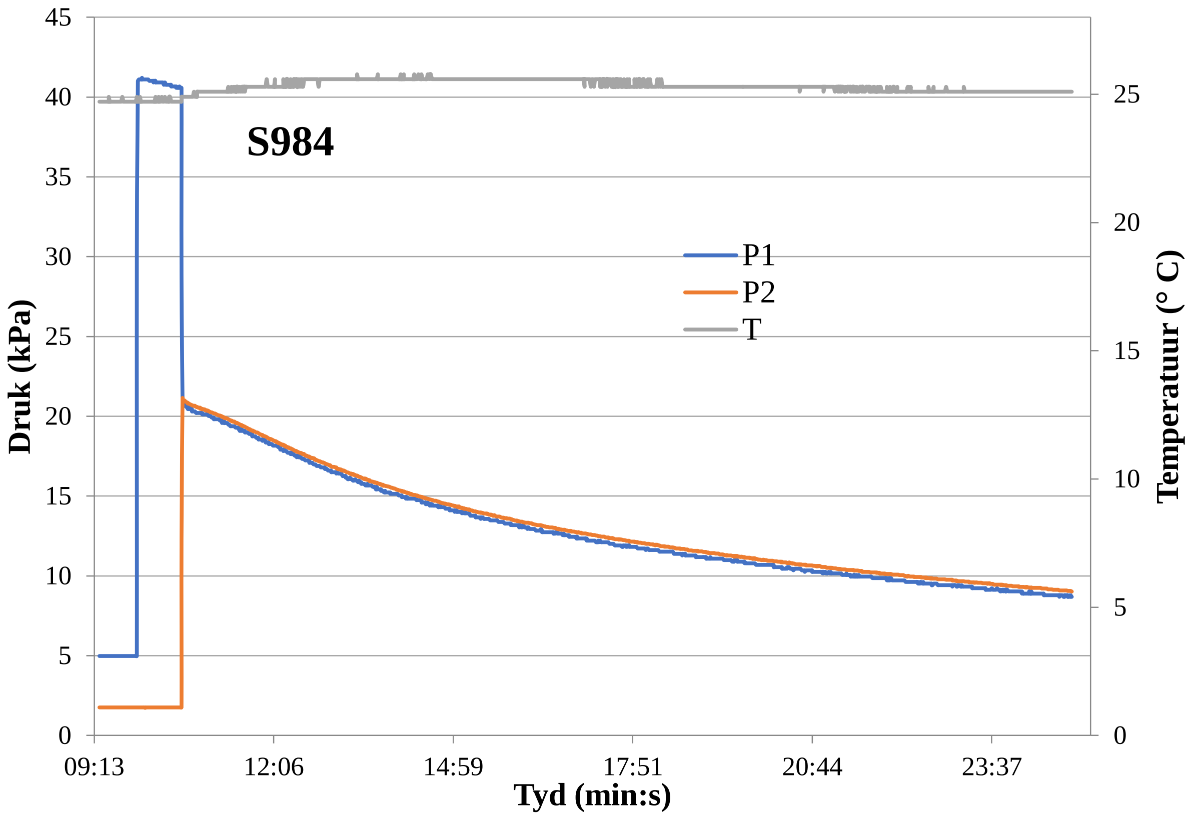
Figuur 4.16: S984 voor en na adsorpsie

Aanvanklik is 5,6024 g, 3,2279 g en 2,974 g adsorbent gebruik. Al die MoF_6 is deur die oormaat adsorbent geadsorbeer. Nadat slegs 0,0577 g adsorbent gebruik is, sodat die adsorbent in oormaat teenwoordig is, en al die MoF_6 nie geadsorbeer is nie, is die adsorbeervermoë van S984 as 2,34 g MoF_6 per gram adsorbent bereken. Volledige berekeninge is in bylaag in Tabel E.



Figuur 4.17: S984 na adsorbsie

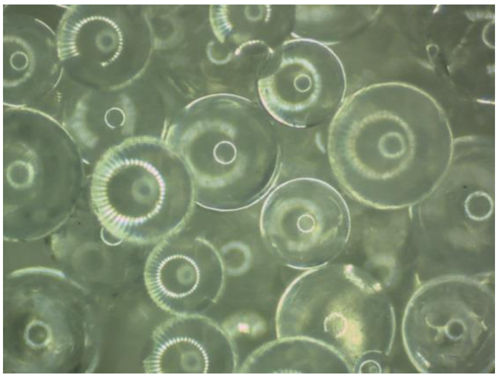
Soos waargeneem kan word in Figuur 4.17 het die korrels hulle fisiese eienskappe behou na adsorpsie en slegs kleurverandering en massatoename het plaasgevind.



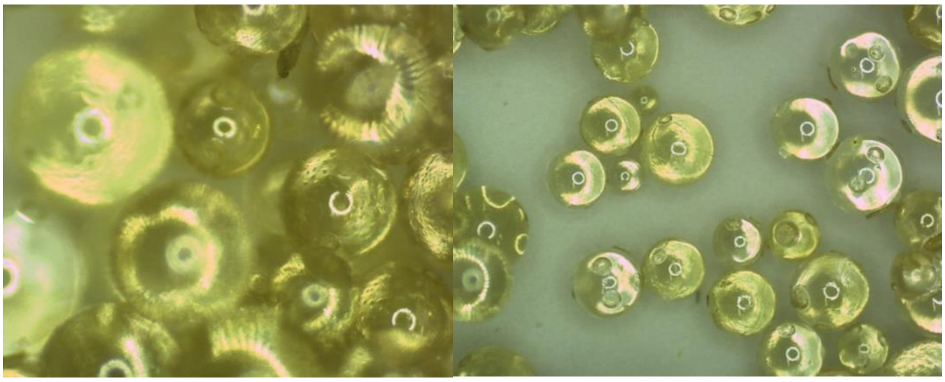
Figuur 4.18: Verloop vir P_1, P_2 en temperatuur vir S984

4.1.6 A870

A870 is ʼn gel poliakriel, kruisverbind met divinielbenseen. Kwartenêre en tersiêre amiene tree op as funksionele groep. Die temperatuurlimiet van die gel poli-akriel is 35 °C en as sulks kan dit nie in die oond gedroog word nie en vertoon klam soos gesien kan word in Figuur 4.19 en Figuur 4.20. Dit word gebruik om organiese materiaal, sterk suur en swak suur te verwyder.



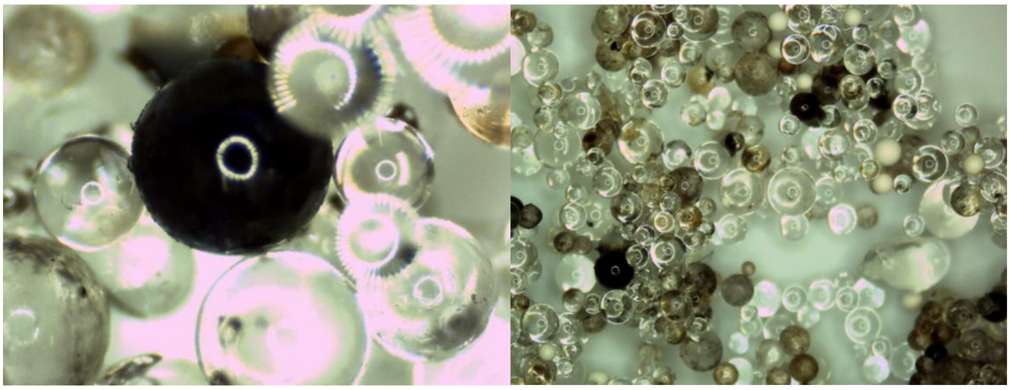
Figuur 4.19: A870 voor adsorpsie



Figuur 4.20: A870 voor adsorbsie

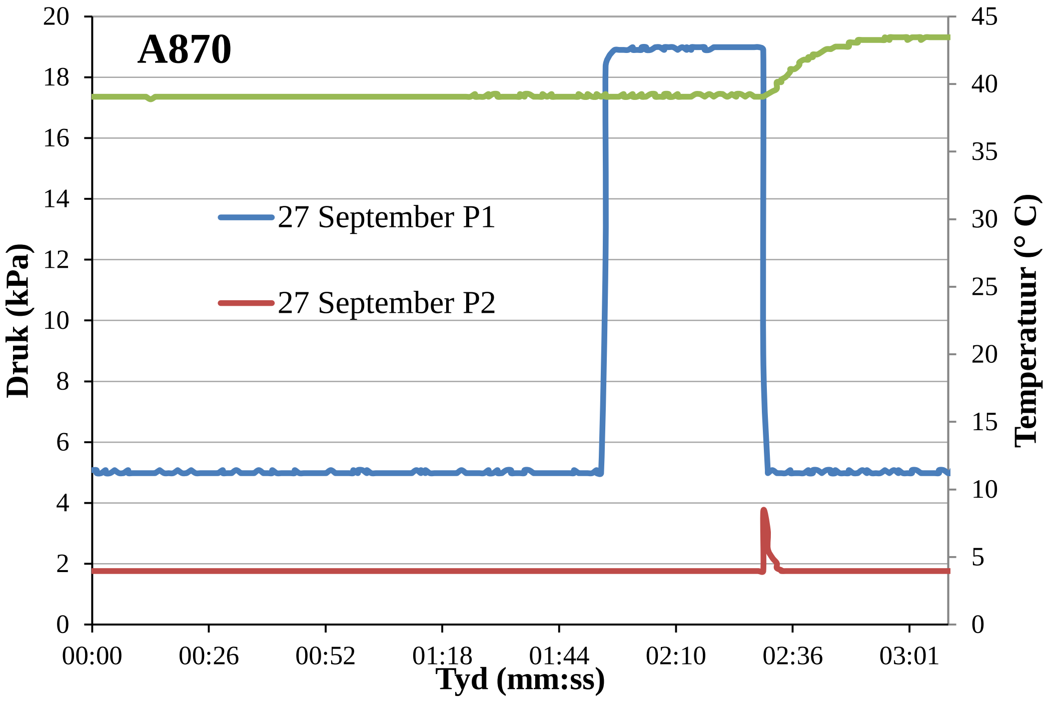
Aanvanklik is 4,9783 g adsorbent gebruik en MoF_6 gelaai tot druk van 18,55 kPa. Die eksperiment is herhaal maar slegs 1,5329 g adsorbent is gebruik. MoF_6 is gelaai tot druk van 17,33 kPa. Tydens dié eksperimente was die meeste MoF_6 in verhouding met adsorbent teenwoordig maar MoF_6 was nog steeds nie in oormaat teenwoordig nie. Die gemiddelde adsorbsievermoë van A870 vir die twee eksperimente was slegs

0,0465 g MoF_6/gram adsorbent. Die eksperiment is weer herhaal maar slegs 1,1275 g adsorbent is gebruik. MoF_6 is gelaai tot met druk van 18,99 kPa. Die eksperiment is weer herhaal met 3,9394 g adsorbent en MoF_6 is gelaai tot druk van 16,26 kPa in reaktor 1 m.a.w. P_1. Die adsorbeervermoë was onder die omstandighede maar slegs 0,0114 g MoF_6/gram adsorbent. In bylaag is die volledige berekeninge.



Figuur 4.21: A870 na adsorpsie

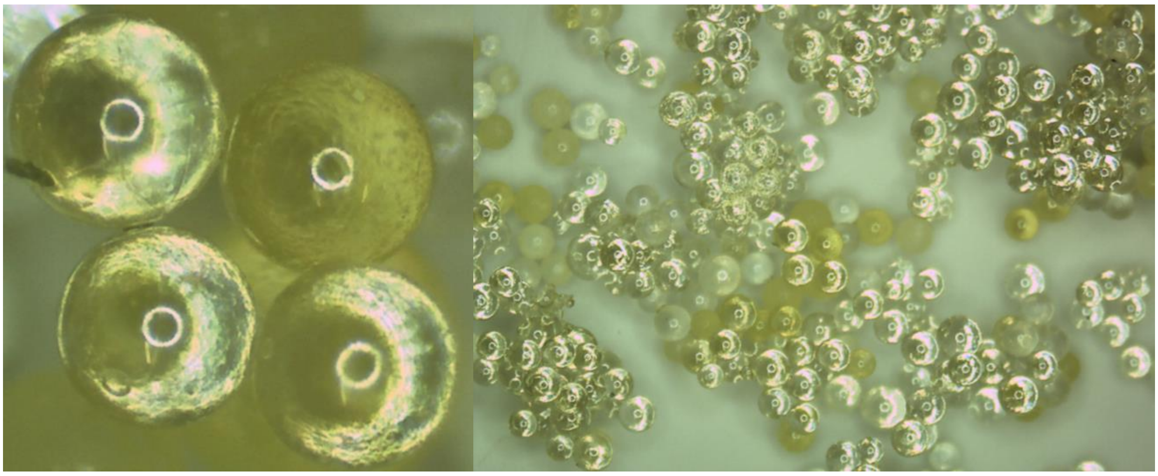
Soos in Figuur 4.21 waargeneem kan word het die gelagtige korrels klam gebly en verkleur. Soos geïllustreer in Figuur 4.22 was die reaksie eksotermies en het baie vinnig geskied wat die vermoede laat ontstaan dat die vogtigheid met MoF_6 reageer het om sodoende HF te vorm.



Figuur 4.22: Verloop van P_1, P_2 en temperatuur vir A870

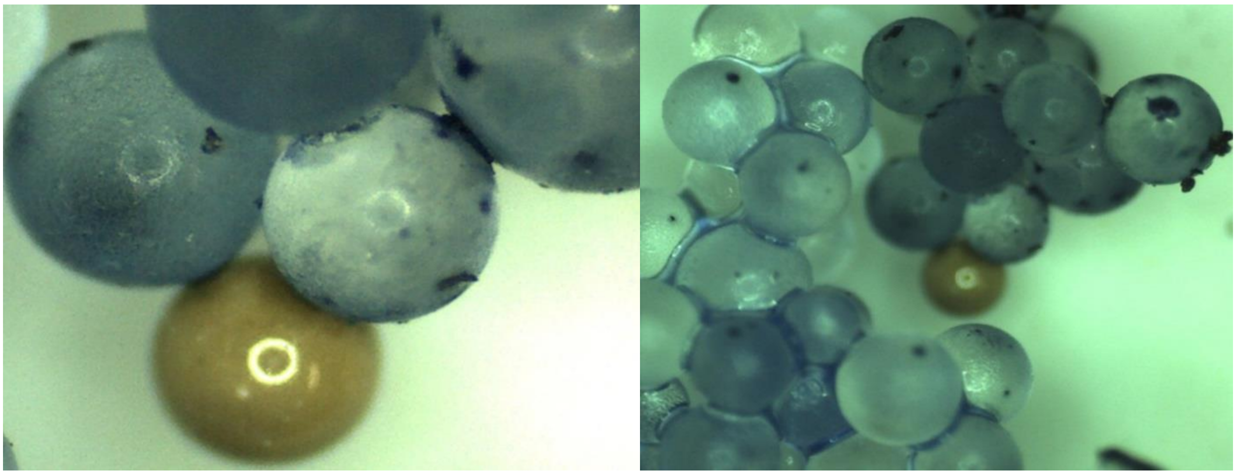
4.1.7 A850FL

A850FL is ook ŉ gel poliakriel, kruisverbind met divinielbenseen. Kwartenêre ammonium tree op as funksionele groep. Die temperatuurlimiet van die gel poli-akriel is 35 °C en as sulks kan dit nie in die oond gedroog word nie en bly die korrels klam soos geïllustreer in Figuur 4.23. Dit word gebruik vir demineralisering.

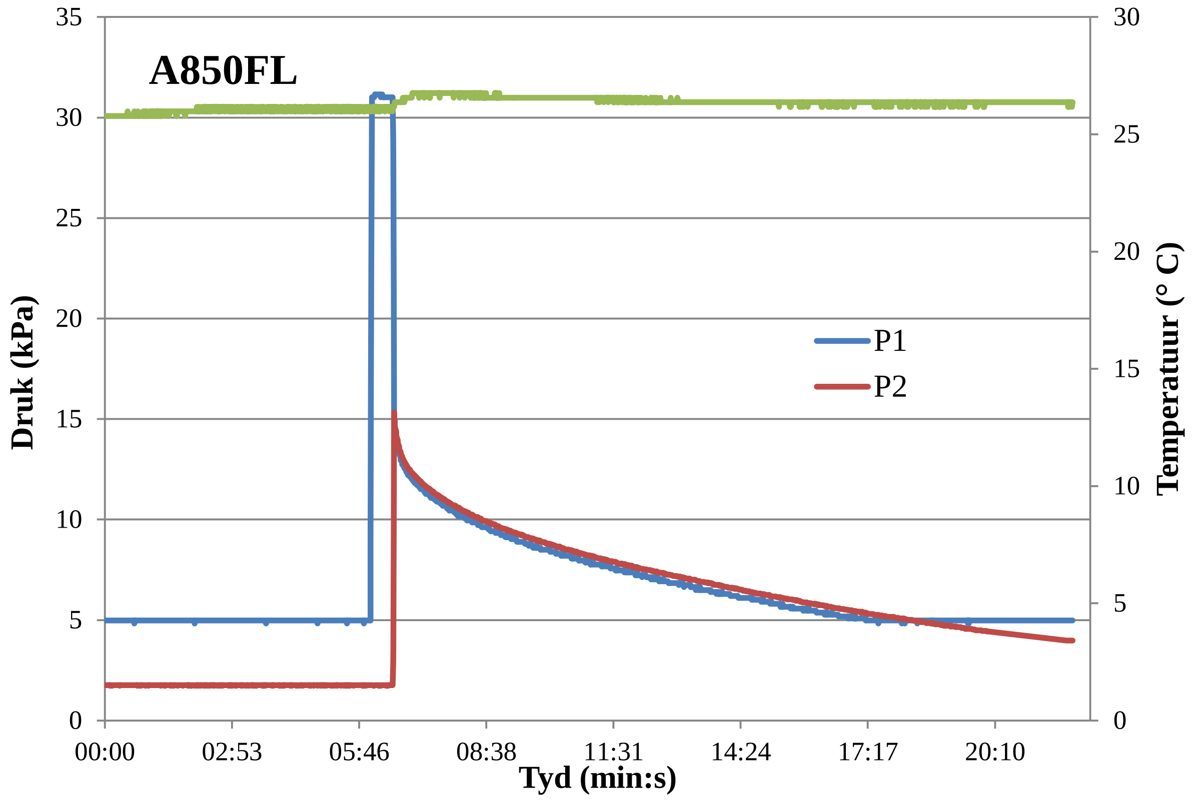


Figuur 4.23: A850FL voor adsorpsie

Die korrels het klam vertoon na adsorpsie met vastestof stukkies op die buitekant soos waargeneem kan word in Figuur 4.24.



Figuur 4.24**:** A850FL na adsorbsie

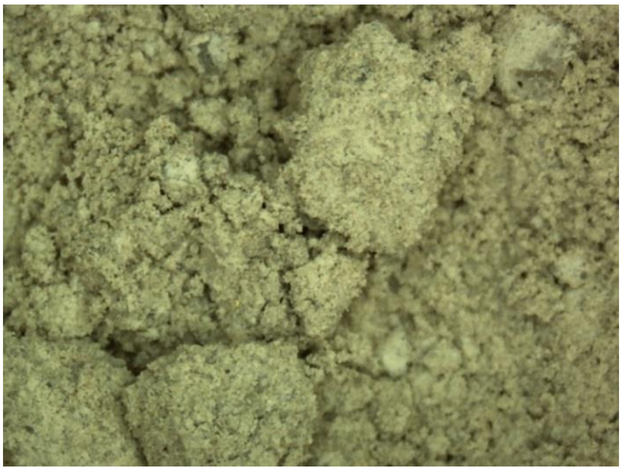


Figuur 4.25: Verloop van P_1, P_2 en temperatuur vir A850FL

Soos geïllustreer in Figuur 4.25 het die temperatuur redelik konstant gebly. Aanvanklik is 3,3814 g adsorbent gebruik. MoF_6 is gelaai tot ʼn druk van 14,4 kPa. Die eksperiment is herhaal maar nou is slegs 1,4954 g adsorbent gebruik. MoF_6 is gelaai tot ʼn druk van 16,6 kPa. Die eksperiment is weer herhaal maar slegs 0,1354 g adsorbent is gebruik. MoF_6 is gelaai tot ʼn druk van 31,01 kPa. Die adsorbsievermoë van A850FL was 0,7356 g MoF_6 per gram adsorbent. Verwys na Tabel G in bylaag.

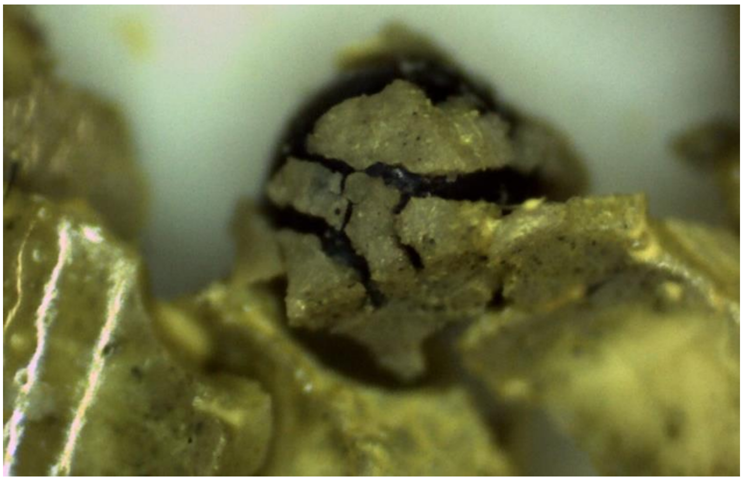
4.1.8 Bentoniet

Omdat bentoniet verskeie adsorpsie toepassings het as gevolg van sy kanaal struktuur, maklik verkrygbaar is, goedkoop en ŉ goeie kapasiteit het, is besluit om dit te gebruik. Die bentoniet was maklik verkrygbaar maar ongelukkig net in poeiervorm. Die vorming van korrels wat klein genoeg met dieselfde vorm en grootte, was problematies soos gesien kan word in Figuur 4.26.

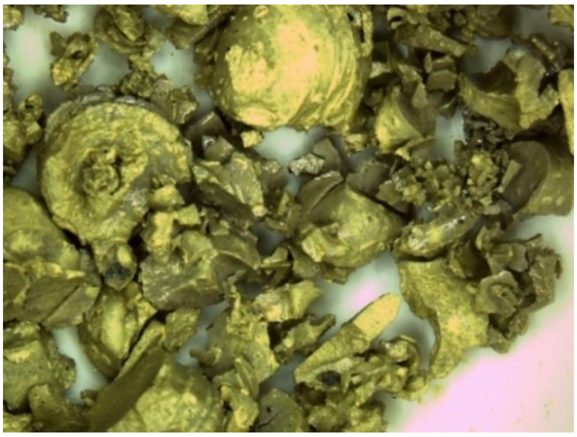


Figuur 4.26*:* Bentoniet voor adsorpsie

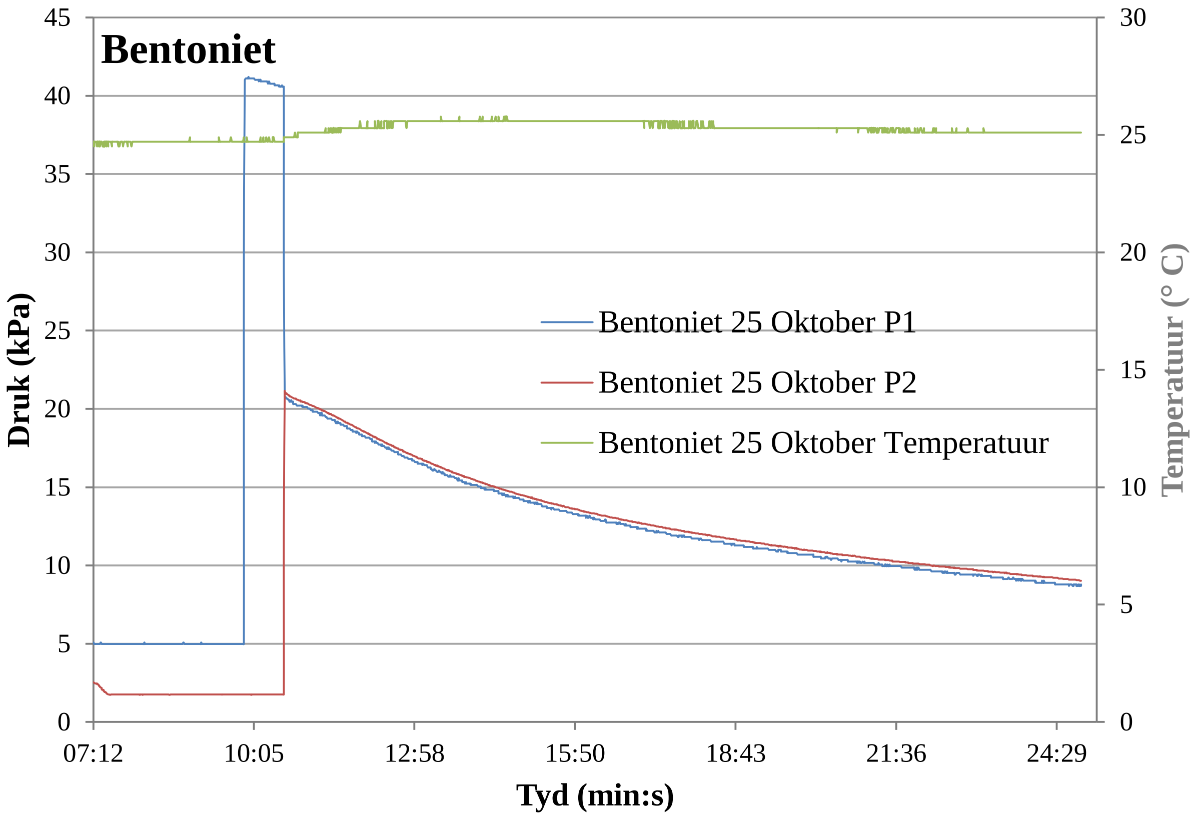
Interessante kleurverandering het plaasgevind tydens adsorbsie soos waargeneem kan word in Figuur 4.27 en in Figuur 4.28.



Figuur 4.27: Bentoniet na adsorpsie



Figuur 4.28: Bentoniet na adsorpsie

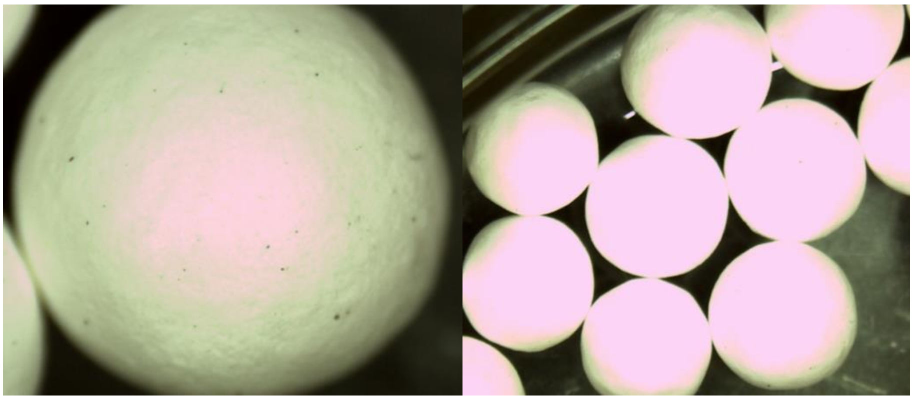


Figuur 4.29: Verloop van P_1, P_2 en temperatuur vir bentoniet

In Figuur 4.29 word verandering in druk en temperatuur geïllustreer. Op 25 Oktober is slegs 0,2938 g bentoniet gebruik sodat daar ʼn oormaat adsorbent teenwoordig is en al die MoF_6 nie geadsorbeer kon word nie. Die adsorbeervermoë van die bentoniet was dan 0,340 g MoF_6 per gram adsorbent soos in Tabel H bereken.

4.1.9 Geaktiveerde alumina ZT-200

Geaktiveerde alumina is ŉ hoogs poreuse produk wat beide gasse en vloeistowwe kan absorbeer sonder om van vorm te verander of te disintegreer en die korrels is wit soos gesien kan word in Figuur 4.30. Nog ŉ algemene gebruik is vir die verwydering van fluoriede uit water. ZT-200 word gebruik vir die verwydering van waterdamp uit lug, industriële gasse, CO_2, natuurlike en gekraakte gasstrome.



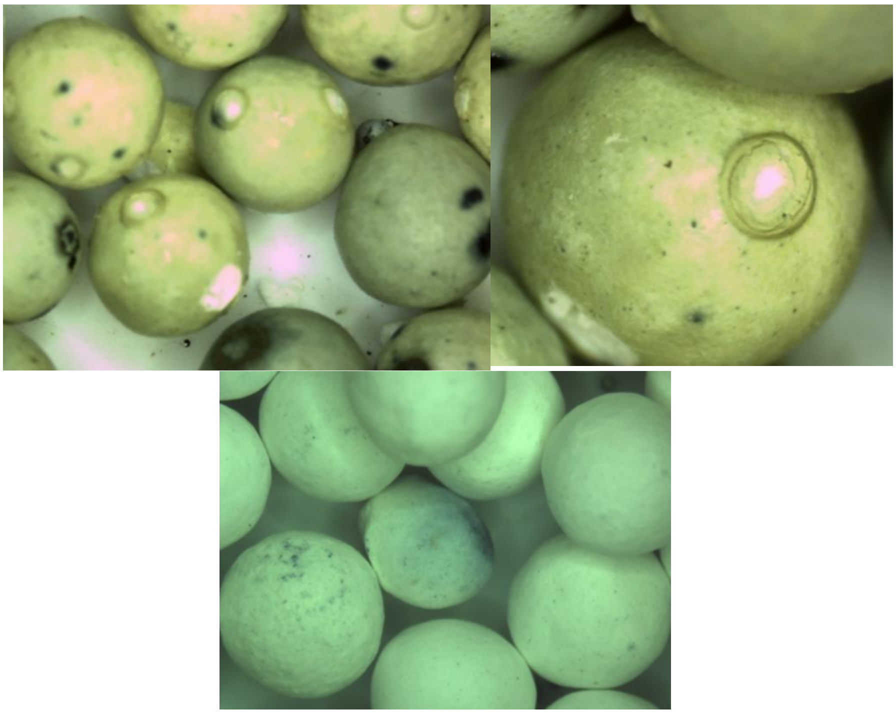
Figuur 4.30: Alumina voor adsorpsie

Aanvanklik is 10,9575 g, 11,4436 g en 4,0533 g adsorbent gebruik. Al die MoF_6 is deur die oormaat adsorbent geadsorbeer. Nadat slegs 0,1640 g adsorbent gebruik is, sodat daar ŉ oormaat adsorbent teenwoordig is, is al die MoF_6 nie geadsorbeer nie. Die adsorbeervermoë van alumina was dan 0,24 g MoF_6 per gram adsorbent. Sien Tabel I in bylaag asook Figuur 4.32.

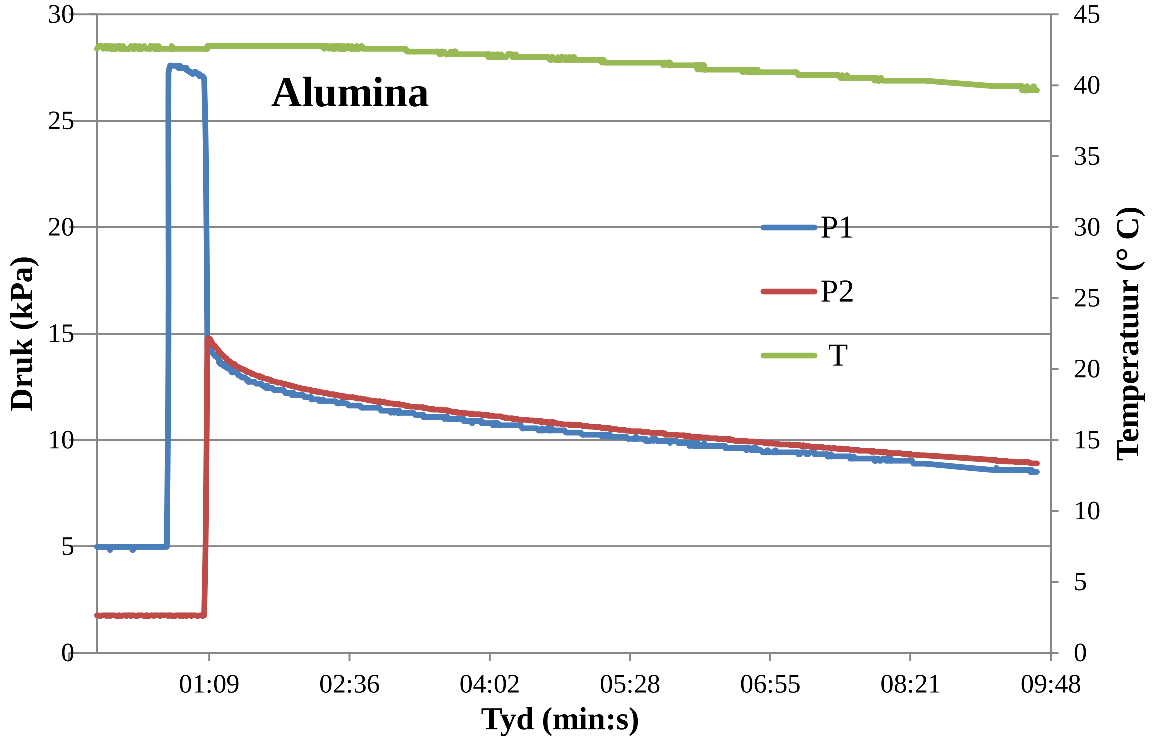
Die korrels het blou dele gehad na adsorbsie maar geelgroen verkleur na blootstelling aan lug soos gesien kan word in Figuur 4.31. Die reduksie van MoF_6 lei tot produsering van MoF_4, ŉ ligte groen stof wat moontlik die verkleuring kan verklaar.

Weens sy positiewe eienskappe, verander nie van vorm nie of disintegreer nie, is besluit om ŉ verdere toets met alumina te doen en die adsorbsievermoë van alumina teenoor HF gas te ondersoek.Die eksperiment is herhaal met 0,6062 g HF wat vrygestel is uit KF·HF. Slegs 0,27269 g alumina is gebruik. 2,208 g HF is dus geadsorbeer per gram adsorbent. Vergelykenderwys was die adsorbeervermoë van alumina teenoor MoF_6

0,2405 g gas/gram adsorbent. Dit blyk dus 'n belangrike adsorbent om verder te ondersoek vir selektiewe adsorpsie van HF.



Figuur 4.31: Alumina na adsorpsie



Figuur 4.32 Verloop van P_1, P_2 en temperatuur vir alumina

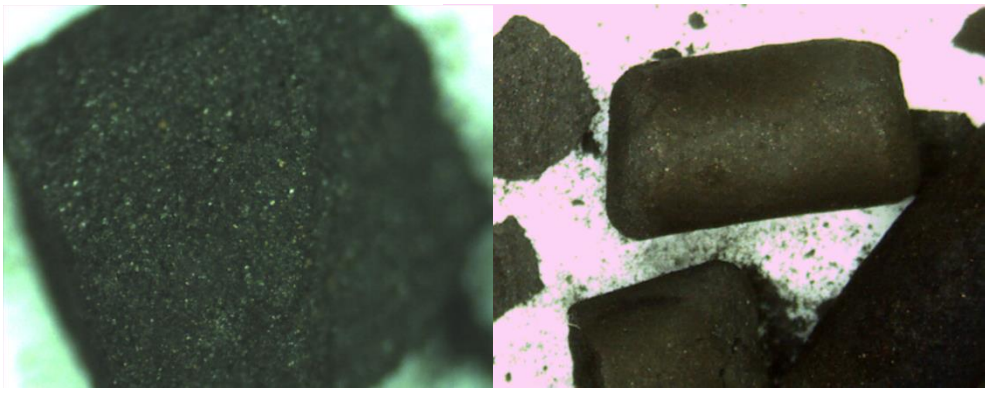
4.1.10 Koolstof

Die buitengewone hardheid, lae vloeiweerstand, lae digtheid en hoë werkvermoë het koolstof ŉ koste-effektiewe keuse gemaak. Geaktiveerde koolstof is uiters poreus met ŉ baie groot spesifieke oppervlakarea. Geaktiveerde koolstof kan ŉ oppervlak van meer as 1000 m^2/g hê. Dit beteken 5 g van geaktiveerde koolstof kan die oppervlak van ŉ rugbyveld hê (Cheremisinoff, 2001).

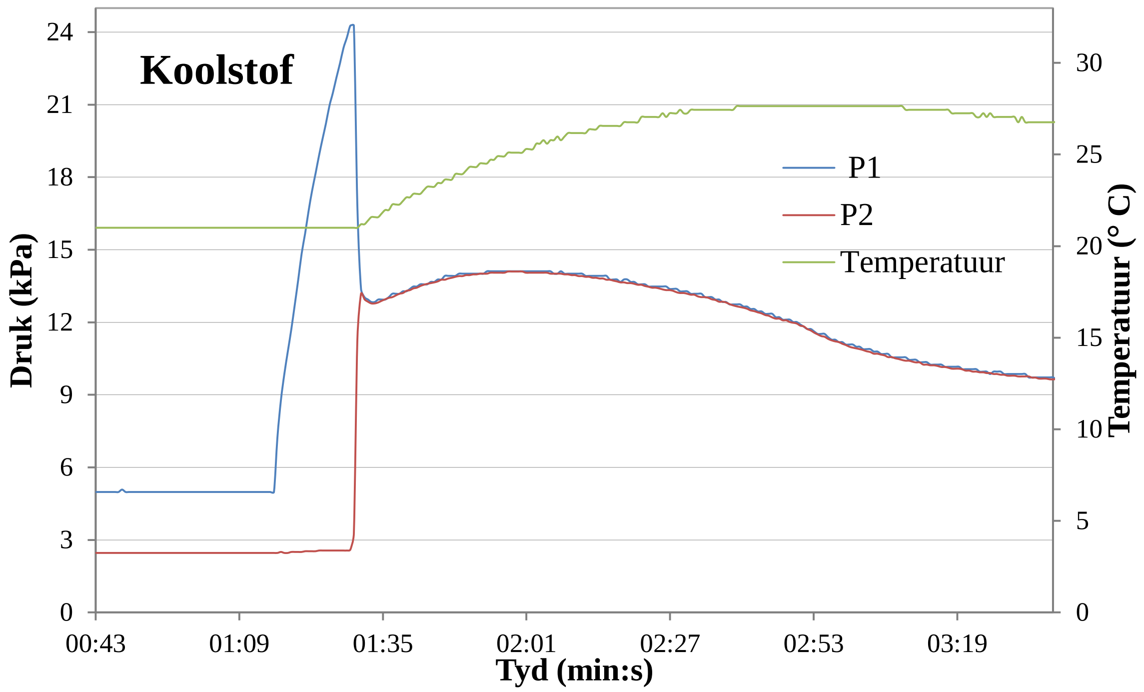
Aanvanklik is 2,8027 g adsorbent gebruik. Soos gesien kan word in Figuur 4.34 is al die MoF_6 nie geadsorbeer nie en die temperatuur het toegeneem van 21 °C tot 28 °C. Die druk in reaktor 2 het gestabiliseer op 7,55 kPa wat aandui dat daar steeds MoF_6 teenwoordig was. Die adsorbsievermoë van koolstof was 0,018 g MoF_6/gram adsorbent. Die koolstof was intakt na adsorbsie soos gesien kan word in Figuur 4.33.

In verdere eksperimente is 5,1146 g koolstof en 5,8148 g koolstof as adsorbent gebruik. Al die MoF_6 is deur die oormaat adsorbent geadsorbeer soos waargeneem kan word in Figuur 4.35.

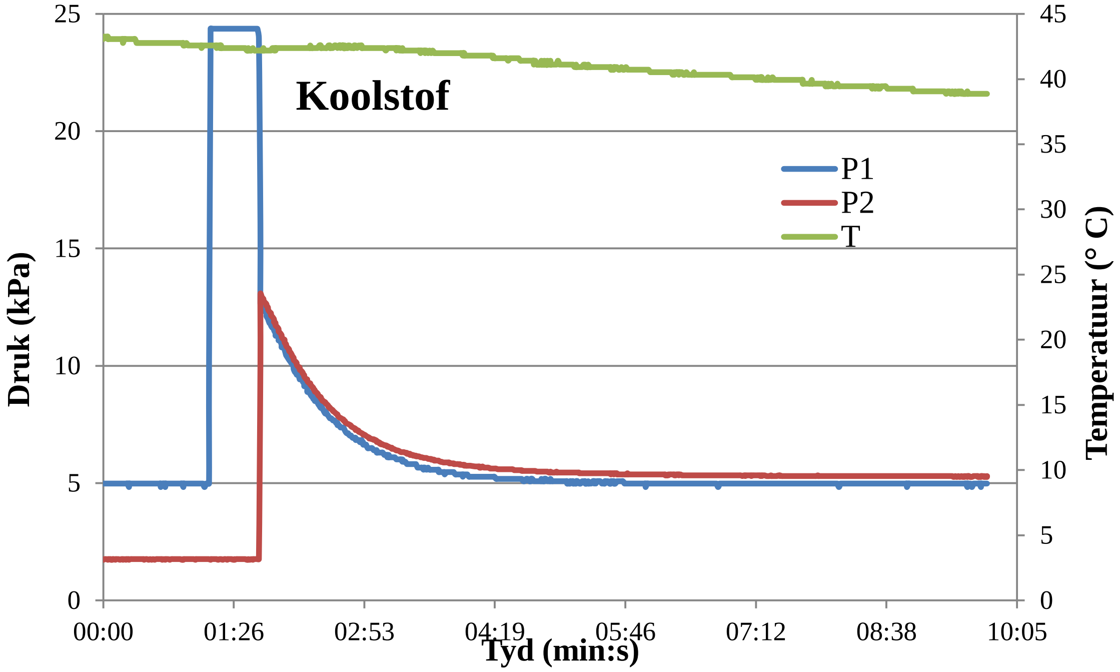
Nadat slegs 0,1225 g adsorbent gebruik is, was daar ŉ oormaat MoF_6 teenwoordig en al die MoF_6 is nie geadsorbeer nie. Die adsorbeervermoë van koolstof was 0,457 g MoF_6 per gram adsorbent.



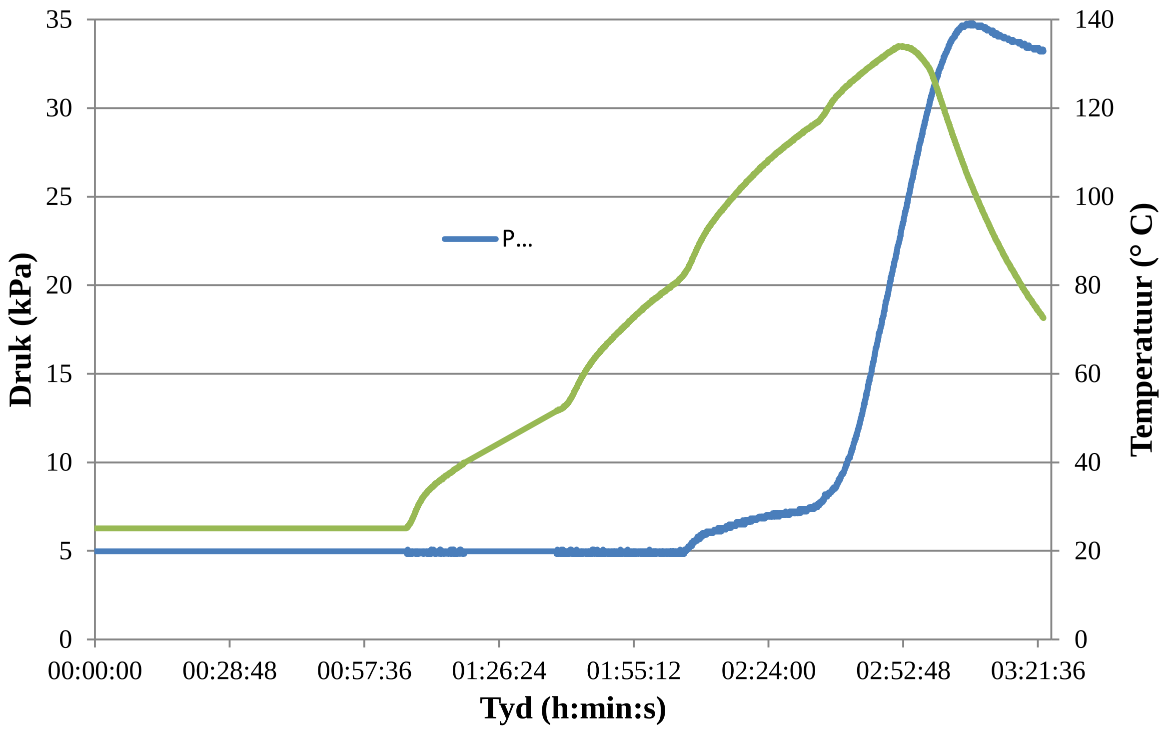
Figuur 4.33: Koolstof na adsorpsie



Figuur 4.34: Verloop van P_1, P_2 en temperatuur vir koolstof (20 September 2017)



Figuur 4.35 Verloop van P_1, P_2 en temperatuur vir koolstof (23 November 2017)



Figuur 4.36: KF·HF en koolstofadsorbent

Die rede waarom geaktiveerde koolstof so ŉ effektiewe adsorpsiemateriaal is, te wyte aan die groot aantal porieë. Dit bied ŉ groot oppervlakarea in verhouding tot die grootte van die werklike koolstofpartikel en sy sigbare buiteoppervlak. Om die redes is besluit om geaktiveerde koolstof ook te gebruik om die adsorbsievermoë van die koolstof teenoor HF te ondersoek. KF·HF is gebruik om HF mee te genereer. In reaktor 1 is 4,5227 g KF·HF geplaas en terselfdertyd is 0,4587 g koolstof as adsorbent in reaktor 2 geplaas. Die klep tussen reaktor 1 en reaktor 2 is gesluit en die oond aangeskakel op 50 °C. Na ŉ halfuur is die temperatuur verhoog na 100 °C, halfuur later na 150 °C en ŉ halfuur later na 175 °C. ŉ Halfuur nadat oondtemperatuur op 175 °C gestel is klep 2 tussen reaktor 1 en 2 oopgemaak en die oond afgeskakel. ŉ Druktoename van 4,98 kPa na 22,61 kPa, dus 17,63 kPa, is waargeneem soos geïllustreer in Figuur 4.36. Die volume van die houer is 0,0515 dm^3. Die koolstof is geweeg na voltooiing van eksperiment en daar is vasgestel dat 0,0049 g gas geadsorbeer is.

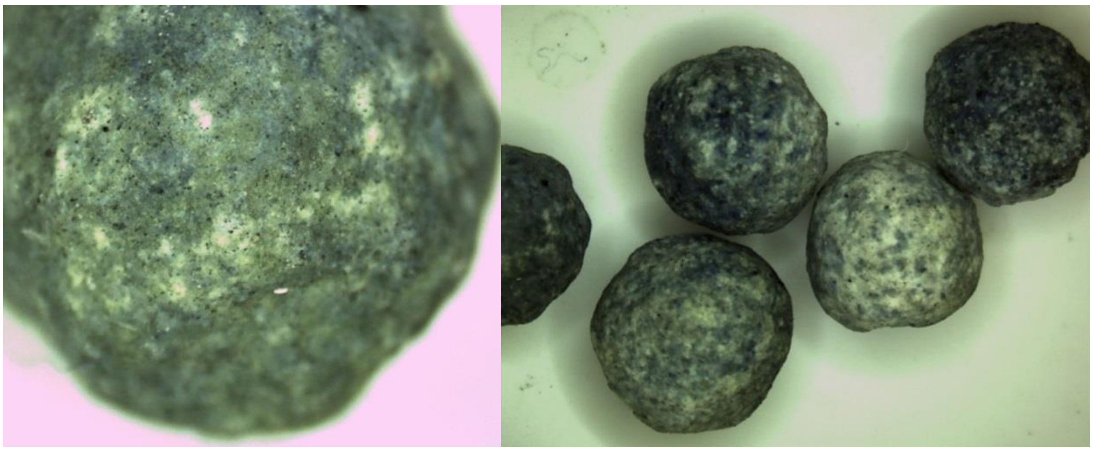
Adsorbeervermoë van koolstof teenoor HF is dus 1,22 g HF/gram koolstof. Vergelykenderwys is adsorbeervermoë van koolstof teenoor MoF_6 0,457 g MoF_6 per

gram adsorbent. Koolstof kan dus verder ondersoek word as ʼn moontlike adsorbent om HF selektief te verwyder uit MoF_6-heliumgasmengsel. Vir verdere inligting verwys na Tabel J in bylaag.

4.1.11 CCP 510 (Alphasorb 5)

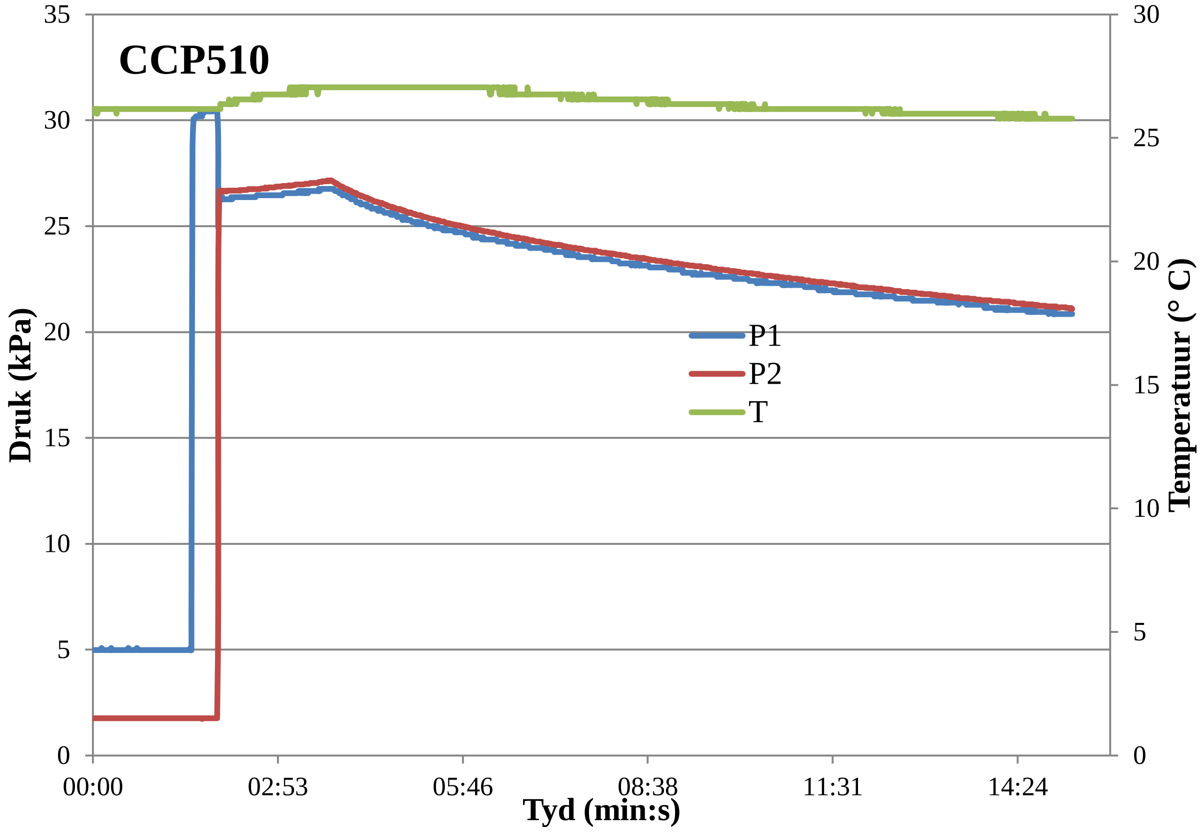
CCP 510 korrels is wit soos gesien kan word in Figuur 4.37 en word spesifiek gebruik vir verwydering van gashalogene uit lug deur middel van adsorpsie en absorpsie binne die poreuse struktuur wat gemaak is van geaktiveerde alumina met aktiewe bestanddele.

Figuur 4.37: CCP 510



Figuur 4.38: CCP 510 na adsorbsie

Die kleurverandering wat plaasgevind het na adsorbsie is te sien in Figuur 4.38.



Figuur 4.39: Verloop van P_1, P_2 en temperatuur vir CCP510

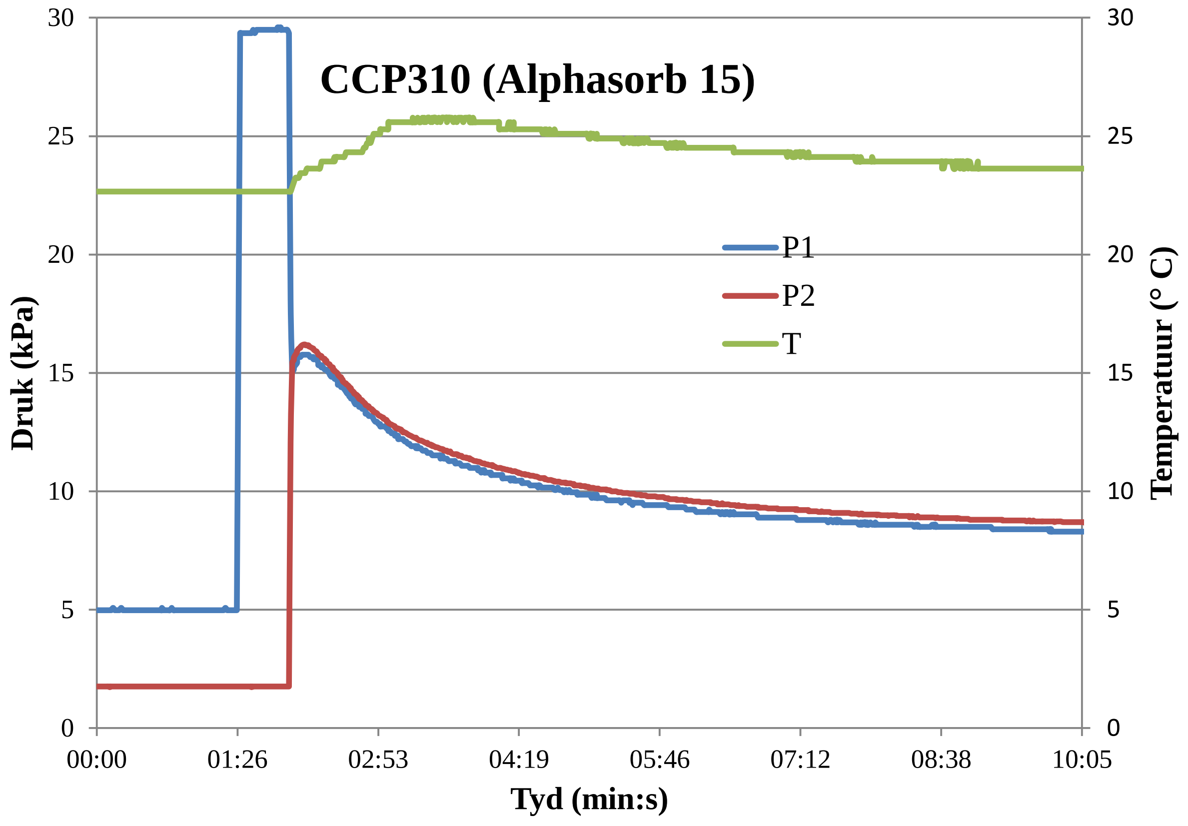
Soos gesien kan word uit Figuur 4.39 en uit data het die aantal mol gas aanvanklik toegeneem wat moontlik mag beteken dat CCP510 gas afgeskei het. Wat wel duidelik waargeneem kan word is dat dit MoF_6 glad nie suksesvol geadsorbeer het nie. Daarom is geen verdere toetse met CCP510 uitgevoer nie.

4.1.12 CCP 310 (Alphasorb 15)

Figuur 4.40:CCP310 (Alphasorb15)

CCP 310 korrels word gebruik vir die filtrasie van suurgasse in korrosiewe omgewings. Die poreuse struktuur van CCP 310 korrels kan in Figuur 4.40 waargeneem word. Dit is geaktiveerde alumina geïmpregneer met geaktiveerde koolstof wat eweredig deur die korrel versprei is vir hoë doeltreffendheid vir lang leeftye volgens die vervaardiger. Die voorkoms van die korrel na adsorbsie is geïllustreer in Figuur 4.41.

Figuur 4.41: CCP310 na adsorbsie



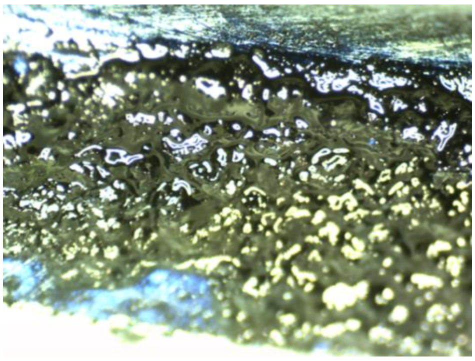
Figuur 4.42: Verloop van P_1, P_2 en temperatuur vir CCP 310

Uit verwerkte data soos gesien kan word in Tabel L is bereken dat slegs 0,144 g gas/gram adsorbent geadsorbeer word. Verder is waargeneem soos gesien in Figuur 4.42 dat dit 'n eksotermiese reaksie is en weens die twee redes is besluit om nie verder met CCP 310 te eksperimenteer nie.

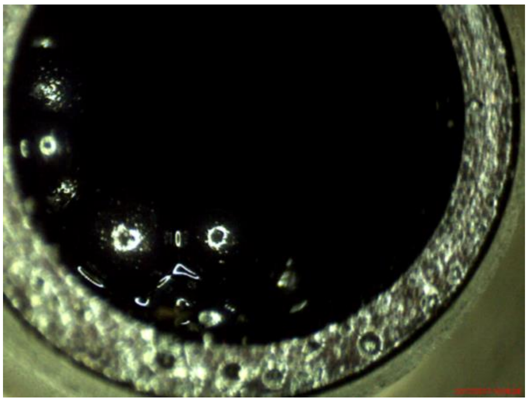
4.1.13 Gedrag van hardeware

Die gebruik van MoF_6 het verskeie probleme veroorsaak. Die kleppe se werking is bemoeilik, die reaktore moes gereeld in ultrasoniese bad gereinig word weens vorming van oksifluoriedes en die drukmeter in reaktor 2 het gefaal.

Figuur 4.43: Reaktore met oksifluoried neerslag



Figuur 4.44: Neerslag se tekstuur onder mikroskoop beskou



Figuur 4.45: Drukmeter wat gefaal het

4.1.14 Opsomming

Tabel 4.1: Opsommende resultate

Adsorbent	Polimeerstruktuur	Funksionele groep	Eienskappe	Adsorbeervermoë, kleurverandering	Aanbeveling
A110	Makroporeuse polistireen kruisverbind met divinielbenseen	Primêre amiene	Temperatuurlimiet 60 °C. Eienskappe bly intakt na adsorpsie. Geen sintering nie.	0,85 g MoF_6 per gram adsorbent. Groenblou en donkerblou	Eienskappe maak dit ŉ goeie keuse.
A111	Makroporeuse polistireen kruisverbind met divinielbenseen	Tersiêre amiene	Temperatuurlimiet 60 °C. Eienskappe bly intakt na adsorpsie. Geen sintering nie.	1,875 g MoF_6 per gram adsorbent. Groenblou en donkerblou-swart	Eienskappe en goeie adsorbeervermoë maak dit ŉ uitstekende keuse.
A100Mo	Makroporeuse polistireen kruisverbind met divinielbenseen	Tersiêre amiene	Temperatuurlimiet 60 °C. Eienskappe bly intakt na adsorpsie. Geen sintering nie.	2,276 g MoF_6 per gram adsorbent. Groenblou	Eienskappe en uitstekende adsorbeervermoë maak dit ŉ uitstekende keuse.

Adsorbent	**Polimeerstruktuur**	**Funksionele groep**	**Eienskappe**	**Adsorbeervermoë, kleurverandering**	**Aanbeveling**
MN 102	Makroporeuse polistireen kruisverbind met divinielbenseen	Tersiêre amiene	Temperatuurlimiet 60 °C. Eienskappe bly intakt na adsorpsie. Geen sintering nie.	3,293 g MoF_6 per gram adsorbent. Donkerblou-swart	Eienskappe en uitstekende adsorbeervermoë maak dit ŉ uitstekende keuse.
S984	Makroporeuse poli-akriel kruisverbind met divinielbenseen	Poli-amiene	Swak adsorbeer vermoë	0,41 g MoF_6 per gram adsorbent. Donkerblou.	Swak adsorbeer vermoë maak dit nie ŉ goeie keuse nie
A870	Gel poliakriel kruisverbind met divinielbenseen	Kwarternêre en tersiêre amiene	Gel reageer nie goed met gas nie.	0,0465 g gas per gram adsorbent. Donkerblou swart	Gel en vog maak dit ŉ swak keuse
A850FL	Gel poliakriel kruisverbind met divinielbenseen	Kwarternêre ammonium	Gel reageer nie goed met gas nie.	0,73596 g MoF_6 per gram adsorbent. Blou neerslag op korrels	Gel en vog maak dit ŉ swak keuse

Adsorbent	**Polimeerstruktuur**	**Funksionele groep**	**Eienskappe**	**Adsorbeervermoë, kleurverandering**	**Aanbeveling**
Bentoniet	Klei mineraal bestaande uit montmorilloniet.		Hoë temperatuur limiet maar klei eienskappe na adsorpsie onder verdenking	0,6189 g MoF_6 per gram adsorbent. Geelgroen.	Onsekerheid oor klei-eienskappe maak dit ŉ riskante keuse
Alumina	Baie poreuse keramiekagtige verbinding.		Hoë temperatuur limiet maar swak adsorbsievermoë	0,2405 g gas / gram adsorbent. Blou en geelgroen.	Belangrike adsorbent om verder te ondersoek vir selektiewe adsorpsie van HF.
Koolstof	Geaktiveerde koolstof met mikro porieë struktuur.		Hoë temperatuur limiet maar swak adsorbsievermoë	0,457 g MoF_6 per gram adsorbent.	Belangrike adsorbent om verder te ondersoek vir selektiewe adsorpsie van HF.

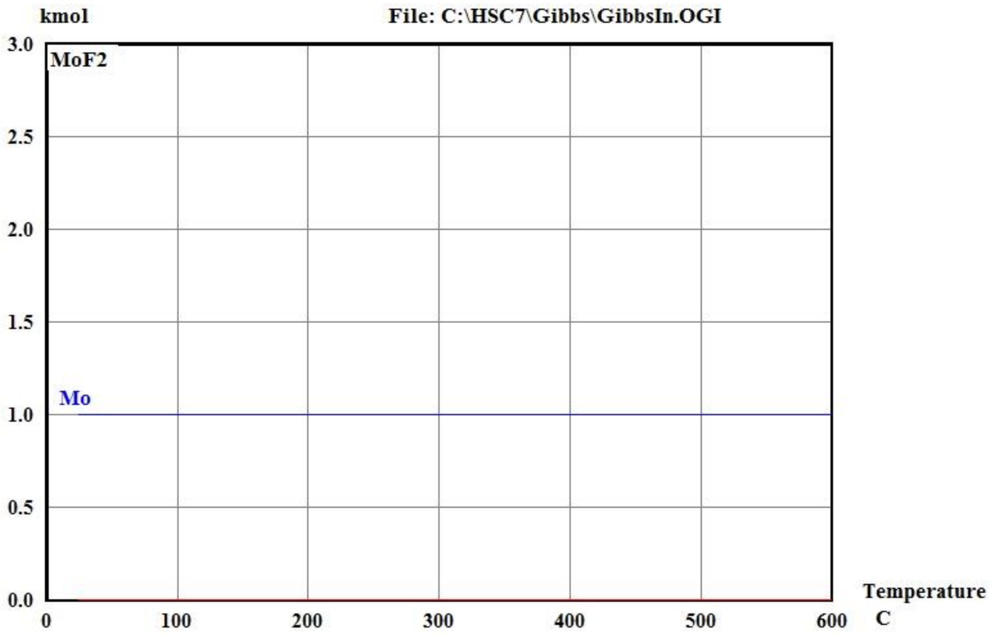
Adsorbent	**Polimeerstruktuur**	**Funksionele groep**	**Eienskappe**	**Adsorbeervermoë, kleurverandering**	**Aanbeveling**
CCP 510 (Alphasorb 5)	Poreuse struktuur wat gemaak is van geaktiveerde alumina met aktiewe bestanddele.		Swak adsorbeer vermoë	-0,127 g gas/gram adsorbent. Donkerblou, geelgroen en swart.	Swak adsorbeervermoë maak adsorbent ʼn swak keuse
CCP 310 (Alphasorb 15)	Die poreuse struktuur van CCP 310 korrels is geaktiveerde alumina geïmpregneer met geaktiveerde koolstof.		Swak adsorbeer vermoë	0,144 g gas/gram adsorbent. Swart.	Swak adsorbeervermoë maak adsorbent ʼn swak keuse

4.2 Bespreking

Soos in vorige werk, bv. deur Oh (2008) bevind, is die relatiewe orde van oksidasievermoë van UF_6 , MoF_6 en WF_6 soos volg:

$UF_6 > MoF_6 > WF_6$ (al drie in die gasfase).

Al drie is strek fluoreermiddels. Ter illustrasie van die reaktiwiteit van MoF_6 word die reaksie van MoF_6 met Mo-metaal in Figuur 4.46 getoon.



Figuur 4.46: Voorspelde termodinamiese chemiese ewewig wanneer drie mol molibdeen en een mol molibdeenheksafluoried gekombineer word (Roine, A (2006) HSC Chemistry v7.1, Outotec Research Centre, Pori, Finland).

Die beginsamestelling hier is 1 mol MoF_6 en 3 mol Mo-metaal. Die termodinamika voorspel dus dat die heksafluoried Mo-metaal vanaf baie lae temperature fluoreer.

MoF_6 is ŉ uiters sterk fluoreermiddel en dit het die keuse van materiaal problematies gemaak. ŉ Verdere uitdaging wat dit veroorsaak het, is die faling van toerusting weens oksifluoriedneerslag wat gevorm het in die drukmeters en kleppe. Die reaktors moes ook na elke paar eksperimentele lopies in ŉ ultrasoniese bad gereinig word om die

neerslag wat gevorm het te verwyder. Die neerslag het ook die massatoename van die adsorbente beïnvloed. Daar was dus ŉ massaverlies a.g.v. neerslagvorming aanwesig. ŉ Bykomende uitdaging was dat die toerusting nie ontwerp is om die massatoename en kleurverandering te kon waarneem voor blootstelling aan die atmosfeer nie. Dit het die bepaling van massatoename van die adsorbente beïnvloed want weens hidrolisering en oksidering van die adsorbente die oomblik as die reaktor oopgemaak is, was die bepaling van die massa-toename nie 100% korrek nie. Die fout is egter ŉ konstante fout vir al die adsorbente en as sulks het dit nie die keuse van die mees geskikte adsorbent beïnvloed nie. Die kleurverandering van die adsorbente het ook verander met blootstelling aan die atmosfeer.

Die harse, adsorbente, koolstof, alumina en bentoniet het hulle morfologie uitstekend tydens die eksperimente behou. Die drukverlaging wat tydens die eksperimente waargeneem is, toon dat daar ŉ interaksie tussen die MoF_6-gas en die adsorbent is. Dit is óf as gevolg van adsorbsie óf ŉ chemiese reaksie tussen MoF_6 en die vaste stof. Die enigste materiaal waar die druk werklik afplat na konstante druk is by koolstof. Die druk by die ander adsorbente het nie gestadigde toestande bereik nie. 'n Moontlike gevolgtrekking is dat koolstof die enigste adsorbent is, en by die ander materiale chemiese reaksies plaasgevind het, en nie adsorbsie nie. Die mees waarskynlike meganisme is massa-oordragbeheer deur die produklaag. Verdere ondersoeke spesifiek vir koolstof om met die Langmuir-adsorbsievergelyking krommepassing te doen, word aanbeveel om sodoende K, die ewewigskonstante te bereken deur gebruik te maak van die Langmuirvergelyking vir lae drukke.

$$\theta = KP \tag{4.1}$$

waar θ die aantal plekke van die oppervlak wat met gasvormige molekule bedek is, P die druk en K die ewewigskonstante vir die verspreiding van adsorbaat tussen die oppervlak en die gasfase is.

Die kleurverandering en moontlike produkte wat die kleurverandering in die ander materiale veroorsaak het word, in Tabel 4.2 bespreek.

Tabel 4.2: Kleurverandering van adsorbente en moontlike verklaring

Adsorbent	**Kleurverandering**	**Moontlike produk gevorm**
A110	Groenblou maar donkerblou indien oormaat MoF_6 teenwoordig is.	MoF_4 is liggroen wat groenblou mag verklaar. $Mo_2O_5 \cdot xH_20$ is donkerblou wat donkerblou kleur by oormaat mag verklaar.
A111	Groenblou maar swart indien oormaat MoF_6 teenwoordig is.	MoF_4 is liggroen wat groenblou mag verklaar. Mo_2O_3 is swart wat swart kleur by oormaat mag verklaar.
A100Mo	Groenblou.	MoF_4 is liggroen wat groenblou mag verklaar.
MN102	Donkerblou na swart.	$Mo_2O_5 \cdot xH_20$ is donkerblou wat donkerblou kleur mag verklaar. Mo_2O_3 is swart wat swart kleur mag verklaar.
S984	Groenblou en donkerblou.	MoF_4 is liggroen wat groenblou mag verklaar. $Mo_2O_5 \cdot xH_20$ is donkerblou wat donkerblou kleur by oormaat mag verklaar.

A870	Donkerblou en swart.	$Mo_2O_5 \cdot xH_20$ is donkerblou wat donkerblou kleur mag verklaar. Mo_2O_3 is swart wat swart kleur mag verklaar.
A850FL	Kobaltblou neerslag op die korrels.	$Mo_2O_5 \cdot xH_20$ is donkerblou wat die neerslag mag verklaar.
Bentoniet	Geel kleur.	MoO_5 asook $MoO_2 \cdot 2H_20$ is geel.
Alumina	Blou na geelgroen.	MoO_5 asook $MoO_2 \cdot 2H_20$ is geel. MoF_4 is liggroen wat groenblou mag verklaar.
Geaktiveerde koolstof	Geen waarneming moontlik met swart koolstof nie.	
CCP510	Donkerblou, geelgroen en swart spikkels is op korrels waarneembaar.	$Mo_2O_5 \cdot xH_20$ is donkerblou wat donkerblou kleur mag verklaar. Mo_2O_3 is swart wat swart kleur mag verklaar. MoO_5 asook $MoO_2 \cdot 2H_20$ is geel.
CCP310	Swart.	

Die adsorbeervermoë van A100Mo is 2,276 g MoF_6 per gram adsorbent en die van MN102 is 3,293 g MoF_6 per gram adsorbent. Na aanleiding van eksperimentele resultate word die aanbeveling gemaak dat MN102 en A100Mo verder ondersoek moet word om as adsorbent in finale poleringsstap om MoF_6 uit helium te verwyder, te gebruik.

Die adsorbeervermoë van alumina teenoor HF is bereken as 2,208 g HF per gram alumina. As dit vergelyk word met adsorbeervermoë van alumina teenoor MoF_6 wat 0,2405 g gas per gram adsorbent is, is dit ʼn belangrike adsorbent om te ondersoek om selektiewe adsorpsie van HF uit helium te verkry.

Adsorbeervermoë van koolstof teenoor HF is 1,22 g HF per gram koolstof. Vergelykenderwys is adsorbeervermoë van koolstof teenoor MoF_6 0,457 g MoF_6 per gram adsorbent wat dit ook ʼn moontlikheid maak om te ondersoek om HF selektief te verwyder uit MoF_6-heliumgasmengsel. Verdere toetse met alumina en koolstof as selektiewe adsorbent om HF uit heliumstroom te verwyder word aanbeveel.

HoofstukV: Gevolgtrekkings

5 Gevolgtrekkings

Twaalf verskillende adsorbente is geëvalueer vir hul MoF_6-adsorpsievermoë. Na ’n uitgebreide literatuurstudie en die bestudering van die eienskappe van die verskillende beskikbare harse is die volgende kommersiële produkte gekies: A110 (′n makroporeuse polistireen kruisverbind met divinielbenseen, met primêre amiene as funksionele groepe); A111 (ook ′n makroporeuse polistireen kruisverbind met divinielbenseen, met tersiêre amiene as funksionele groepe); A100Mo (′n makroporeuse polistireen kruisverbind met divinielbenseen, met tersiêre amiene as funksionele groepe); MN102 (ook ’n makroporeuse polistireen kruisverbind met divinielbenseen, met tersiêre amiene as funksionele groepe); S984 (’n makroporeuse poliakriel, met poli-amiene as funksionele groepe); A870 (’n gel-poliakriel kruisverbind met divinielbenseen, met kwaternêre en tersiêre amiene as adsorpsiegroep); A850FL (’n gel-poliakriel kruisverbind met divinielbenseen, met kwaternêre ammonium as funksionele groep); bentoniet (’n laminêre klei); ZT-200 (’n geaktiveerde alumina); Carbosorb (geaktiveerde koolstof); CCP510 (’n geaktiveerde alumina); en CCP310 (’n geaktiveerde alumina). Die adsorpbente is gekies met die oorwig van keuse wat op ioonuitruilharse geval het. Die rede vir die keuse was dat harse maklik bekombare sintetiese materiale is, wat in staat is om spesifieke ione uit te ruil of vas te lê. Sommige het selfs die baie belangrike vermoë om hierdie funksionaliteit om te keer. Eksperimente is gedoen met die verskillende adsorbente om die adsorbsievermoë van die adsorbente ten opsigte van MoF_6 te bepaal. Data van druk en temperatuur teenoor tydsverloop is versamel.

Na afloop van die eksperimente en dataverwerking is bevind dat die adsorbeervermoë van A100Mo en MN102 die beste van die getoetsde adsorbente was. Die resultate was egter nie goed genoeg vir die ASP proses nie en verdere ondersoeke word aanbeveel. Die resultate was nie verrassend nie want A100Mo is ’n makroporeuse, gemengde basis anioon hars, wat juis gebruik word om molibdeen uit suuroplossings te verwyder. MN102 is ’n makroporeuse hidrofobiese, swak basisanioon hars. A100Mo adsorbeer 2,276 g MoF_6 per gram adsorbent en MN102 3,293 g MoF_6 per gram adsorbent. Die

gevolgtrekking is gemaak dat A100Mo en MN102 duidelike potensiaal toon vir gebruik in die finale poleringstap om MoF_6 uit helium te verwyder. Dit word aanbeveel dat MN102 en A100Mo verder ondersoek moet word om as adsorbente MoF_6 uit helium te verwyder in die finale poleringsstap.

Uit die adsorbente is alumina en koolstof gekies vir verdere eksperimente met HF. Die adsorbeervermoë van alumina teenoor HF is bereken as 2,208 g HF per gram alumina. As dit vergelyk word met adsorbeervermoë van alumina teenoor MoF_6 wat 0,2405 g gas per gram adsorbent is, is dit ŉ belangrike adsorbent om verder te ondersoek om selektiewe adsorpsie van HF uit helium te verkry.

Adsorbeervermoë van koolstof teenoor HF is 1,22 g HF per gram koolstof. Vergelykenderwys is die adsorbeervermoë van koolstof teenoor MoF_6 0,457 g MoF_6 per gram adsorbent. Die moontlikheid om koolstof te gebruik om HF selektief te verwyder uit MoF_6-heliumgasmengsel behoort verder ondersoek te word.

Die aanvanklike eksperimente het getoon dat alumina en koolstof moontlik die potensiaal het om HF selektief uit ŉ heliumstroom te verwyder. Verdere studie en eksperimentering met ‘n mengsel van HF en MoF_6 om die selektiewe adsorbering van HF te ondersoek word dus sterk aanbeveel

BRONNELYS

6 Bronnelys:

Adil, K., Leblanc, M., Maisonneuve, V. & Lightfoot, P. 2010. Structural chemistry of organically-templated metal fluorides. *Dalton Transactions*, 39(26). https://www.ncbi.nlm.nih.gov/pubmed/20393669 [Datum van gebruik: 25 Oktober 2016].

Afzal, S., Rahimi, A., Ehsani, M.R. & Tavakoli, H. 2010. Experimental study of hydrogen fluoride adsorption on sodium fluoride. *Journal of Industrial and Engineering Chemistry*, 16:147–151.

Aldous, D.W. & Lightfoot. P. 2012. New structural units in molybdenum oxyfluoride chemistry. *Journal of Fluorine Chemistry*, 144:108–113.

Álvarez, C., Lozano, A.E. & De la Campa, J.G. 2016. High-productivity gas separation membranes derived from pyromellitic dianhydride and nonlinear diamines. *Journal of Membrane Science*, 501:191–198

Antonovskaya, E.I. & Vil'k, Y.N. 1961. Corrosion of copper and its alloys in hydrofluoric acid. *Khimiheskaya Promyshlennost*, 6(1061):61–62.

ASM International. 2012. Dictionary of Metals. http://app.knovel.com/hotlink/toc/id:kpDM00000A/dictionary-of-metals/dictionary-of-metals [Datum van gebruik: 8 Augustus 2016].

Aßmann, H., Merz, E., Naoumidis, A., Nickel, H., Stehle, H. & Walton, G.N. 1982. *Gmelin Handbook of Inorganic Chemistry*. Uranium. Supplement Volume A4, American Chemical Society.

Asunmaa, S.K., Cannon, W.A., English, W.D., Tiner, N.A. & Toy S. M. 1967. *Halogen Passivation Procedural Guide.* Newport Beach, CA: Defense Technical Information Center.

Australian Government. 1989. *National Occupational Health and Safety Commission report on HF*. http://www.safeworkaustralia.gov.au/sites/SWA/about/Publications/Documents/155/HydrogenFluoride_1989pdf.pdf [Datum van gebruik: 25 Augustus 2016].

Bahrami, H., Safdari, J., Moosavian, M. Ali. & Torab-Mostaedi M. 2012. Adsorption of hydrogen fluoride onto activated carbon under vacuum conditions: Equilibrium, kinetic and thermodynamic investigations. *Chemical Industry & Chemical Engineering Quarterly*, 18 (4):497−508.

Banerjee, S., Ambikalmajan Pillai, M.R. & Ramamoorthy, N. 2001. Evolution of Tc-99m in diagnostic radiopharmaceuticals. *Nuclear medicine*, 31(4):260–277. https://www.scopus.com/inward/record.uri?eid=2-s2.0-0034753128&partnerID=40&md5=cd41a65977f3be4ccc652cada7c21abb",Review,Scopus,2-s2.0-0034753128 [Datum van gebruik: 10 Augustus 2016].

Bogdanov, E.V., Mel'nikova, S.V., Pogoreltsev, E.I., Molokeev, M.S. & Flerov, I.N. 2016. The structure and phase transitions in oxyfluoride $(ND_4)_2MoO_2F_4$. *Solid State Sciences*. 61: 155–160.

Brooksbank, W.A., Carter, R.J. & Osborne, M.F. 1958. *Volatility Studies of Some Fission Product Fluorides.* Oak Ridge, TN: Oak Ridge National Laboratory.

Cady, G.H. & Hargreaves, G.H. 1961. The vapour pressure of some heavy transition-metal hexafluorides. *Journal of the Chemical Society (England)*, 0:1563–1568.

Capps, R. H. 1951. Reaction of gaseous UF_6 and HF with metallic fluorides. Carbide and Carbon Chemicals Company, Report K – 770, Oak Ridge, TN.

Carter, W.L. & Whatley, M.E. 1967. Fuel and blanket processing development for molten salt breeder reactors. Oak Ridge, TN: Oak Ridge National Laboratory.

Cheremisinoff, P.N. 2001. Handbook of Water and Wastewater-Treatment Technologies. Butterworth-Heinemann. Oxford. England.

Coleman, P., Mascarenhas, R. & Rumsby, P. 2005. A review of the toxicity and environmental behaviour of hydrogen fluoride in air. Environment Agency. Bristol.

Davidson, J., Sherman, R. & Paciei, R. 1991. *Stainless steel surface passivation treatment.* US5188714, toegeken aan Linde Inc.

Davidson, T A. 1993. A simple and accurate method for calculating viscosity of gaseous mixtures. United States Department of the Interior. Bureau of Mines. Amarillo, TX.

Eagleson, M. 1993. *Concise Encyclopedia Chemistry*. De Gruyter. http://app.knovel.com/hotlink/toc/id:kpCEC0000B/concise-encyclopedia/concise-encyclopedia [Datum van gebruik: 25 Augustus 2016].

Fine, S.M., Johnson, A.D. & Langan, J.G. *Generic moisture removal and passivation of surfaces.* 1994. US5479727, toegeken aan Air Products and Chemicals Inc.

Franco, C. R. S. 2014. Pressure swing adsorption for the purification of hydrogen. Dissertação De Mestrado Apresentada. À Faculdade De Engenharia da Universidade Do Porto Em Engenharia Química. Portugal: Universidade Do Porto.

Ghanbarnezhad, S., Sharifi, L., Mirhosseini, S.H., Khani, V. & Zare, S. H. 2014. The influence of bentonite on the removal of methyl violet dye. *International Journal of Advanced Science and Technology,* 70:47–54.

Grande, C.A. 2012. Advances in pressure swing adsorption for gas separation. ISRN Chemical Engineering. Volume 2012. Department of Process Chemistry, SINTEF Materials and Chemistry, Oslo.

Greenwood, N.N. & Earnshaw, A. 1997. *Chemistry of the Elements* (2nd ed.). Elsevier. http://app.knovel.com/hotlink/toc/id:kpCEE00006/chemistry-elements-2nd/chemistry-elements-2nd [Datum van gebruik: 10 Augustus 2016].

Hedge, W.D. 1968. The molybdenum hexafluoride-hydrogen fluoride triple point curve and its application to a method of analysis. Union Carbide Corporation Nuclear Division. Oak Ridge, TN: Oak Ridge National Laboratory.

Hedin, N., Andersson, L., Bergström, L. & Jinyue Yan, J. 2013. Adsorbents for the post-combustion capture of CO_2 using rapid temperature swing or vacuum swing adsorption. *Applied Energy*, 104:418–433.

Holleman, A.F., Wiberg, E. & Wiberg, N. 2007. *Lehrbuch der Anorganischen Chemie.* Berlin: Walter de Gruyter.

Howells, M., Jennings, H., Navar, G., Urban, E. & Wyatt, P. 2000. Materials of construction guideline for anhydrous hydrogen fluoride. Materials of Construction Task Group. Washington, DC: The Hydrogen Fluoride Industry Practices Institute (HFIPI).

Hussain, C.M., 2018. Nanomaterials in chromatography: Current trends in chromatographic research technology and techniques. Elsevier. Amsterdam. Nederland.

International Molybdenum Association. Molybdenum properties. http://www.imoa.info/molybdenum/molybdenum-properties.php [Datum van gebruik: 8 Augustus 2016].

Junboa, Z., Lipinga, G. & Kuishenga, W. 2006. Hydrogen isotope separation by cryogenic gas chromatography using the combined column of 5 Å molecular sieve and Al_2O_3. *International Journal of Hydrogen Energy,* 31:2131–2135

Kaye, G., W., C. & Laby, T., H. 1995. *Tables of Physical and Chemical Constants.* Essex: Longman Scientific & Technical.

Keller, J.U. en Staudt, R. 2005. *Gas Adsorbtion Equilibria. Experimental Methods and Adsorptive Isotherms.* VSA: Springer.

Kestin, J., Ro, S.T. & Wakeham, W.A. 1972. Viscosity of the noble gases in the temperature range 25-700°C. *J. Chem. Phys.,* 56:4119. http://dx.doi.org/10.1063/1.1677824 .

Khordad, R. 2012. Shear viscosity of binary mixtures: The Gay–Berne potential. *Iran Chemical Physics,* 400:51–58.

Kimura, M., Tsukamoto, T., Tarutani, K & Friedt J. 1997. *Process for distributing ultra high purity gases with minimized corrosion.* US5676762 toegeken aan Air Liquide SA.

Lennartson A. 2017. *The Chemical Works of Carl Wilhelm Scheele.* SpringerBriefs in Molecular Science. Cham: Springer.

Lin, H., Van Ness H. C., & Abbott M. M. "Reaction kinetics, reaction design and thermodynamics," Section 4 in Perry's Chemical Engineers' Handbook. 2008. Editor-in-Chief: Don W. Green. Late Editor: Robert H. Perry. 8^{th} ed. New York: McGraw-Hill.

Lin, R., Hernandez, B. V., H., Lei, G., & Zhu, Z. 2018. Metal organic framework based mixed matrix membranes: an overview on filler/polymer interfaces. *Journal of Materials Chemistry A,* 6:293–312.

Lokring Corporation. Corrosion. 1991. http://www.lokring.com/wp-content/uploads/2012/10/corrosionpaper.pdf [Datum van gebruik: 30 September 2016].

Marx, S., Van der Gryp, P., Neomagus, H., Everson, R. & Keizer, K. 2002. Pervaporation separation of methanol from methanol/tert-amyl methyl ether mixtures with a commercial membrane. *Journal of Membrane Science,* 209:353–362.

McNamara, B.K., Casella, A.M., Scheele, R.D. & Kozelisky, A.E. 2011. Nitrogen trifluoride-based fluoride-volatility separations process: Initial Studies. U.S. Department of Energy.

Merchant, D.R. & Hodges, J.R. 1976. *Removal of hydrogen fluoride from gaseous mixture by absorption on alkaline earth metal fluoride.* US3976447 toegeken aan Arkema Inc.

Miki, N., Maeno, M., Maruhashi, K., Nakagawa, Y. & Ohmi T. 1990. Fluorine passivation of stainless steel. *Corrosion Science*, 31:69–74.

Millward, A., Viniski, J.V., Torres, R., Wantanbe, T., Wyse, C.L., Raynor, T.,Davia, D. & Praveen J. 2012. *Purification of fluorine containing gases and systems and materials thereof.* US8142549B2 toegeken aan Matheson Tri-Gas Inc.

Morel, B. & Duperret, B. 2009. Uranium and fluorine cycles in the nuclear industry. *Journal of Fluorine Chemistry,* 130:7–10.

Morreale, A.C., Novog, D.R. & Luxat, J.C. 2011. A strategy for intensive production of molybdenum-99 isotopes for nuclear medicine using CANDU reactors. http://ac.els-cdn.com.uplib.idm.oclc.org/S0969804311003678/1-s2.0-S0969804311003678-main.pdf?_tid=fa81cadc-5d50-11e6-b1ed-00000aab0f02&acdnat=1470651486_083b38661ab83c7f74abe6966dffafb3 [Datum van gebruik: 8 Augustus 2016].

Morris, M. J. 1996. Molybdenum 1994. *Coordination Chemistry Reviews*, 152:309-358. [Datum van gebruik: 10 Augustus 2016].

Munsterman, T & Mayorga, A. 2004. Preferential corrosion of welds in HF service. *Hydrocarbon Processing,* 9:113–119.

National Center for Biotechnology Information. PubChem Compound Database. https://pubchem.ncbi.nlm.nih.gov/compound/24524 [Datum van gebruik: 8 Augustus 2016].

Nickel Institute. 1968. Corrosion resistance of Nickel-containing alloys in hydrofluoric acid, hydrogen fluoride and fluorine. 1968. The International Nickel Company Inc. Durham, NC.

Oh, S. 2008. Application of the group contribution concept to Kihara potential for estimating thermodynamic and transport properties Part VI. Heavy globular molecules (SF_6, MoF_6, WF_6, UF_6, $C(CH_3)_4$, $Si(CH_3)_4$). *Fluid Phase Equilibria* 271:53–68.

Opalovsky, A. A., Fedorov, V. E. & Fedotova, T. D. 1969. Kinetics of the thermal decomposition of alkaline earth metal hydrofluorides. *Journal of Thermal Analysis*. 1(3):301–310

Osborne, D. W.; Schreiner, F.; Malm, J. G.; Selig, H. & Rochester, L. 1966. Heat capacity and other thermodynamic properties of MoF_6 between 4 and 350 K. *J. Chem. Phys.,* 44:2802–2809.

Osborne, P. E., Icenhour, A. S. & Del Cul, G. D. 2002. *Hydrofluoric Acid Corrosion Study of High-Alloy Materials*. Oak Ridge, TN: Oak Ridge National Laboratory.

Ovejero, G., Dolores Romero, M., Díaz, I., Mestanza, M. & Díez, E. 2010. Bentonite as an alternative adsorbent for the purification of styrene monomer: adsorption kinetics,

equilibrium and process design. *Adsorption Science & Technology,* 28(2):101–123 [Datum van gebruik: 21 Maart 2018].

Peters, D. & Miethchen, R. 1996. Symptoms and treatment of hydrogen fluoride injuries. *Journal of Fluorine Chemistry,* (79):161–165.

Rampersadh, P. 2005. Removal of hydrogen fluoride from gas streams. PhD thesis. University of Witwatersrand.

Robeson L.M. 1991. Correlation of separation factor versus permeability for polymeric membranes. *Journal of Membrane Science*, 62:165–185.

Robeson L.M., Smith, Z.P., Freeman, B.D. & Paul, D.R. 2014. Contributions of diffusion and solubility selectivity to the upper bound analysis for glassy gas separation membranes. *Journal of Membrane Science*, 453:71–83.

Ronander, E., Strydom, H.J. & Viljoen, J. 2012. ASP separation technology for isotope and gas separation. 12th International Workshop on Separation Phenomena in Liquids and Gases, Paris, June 4–8, 2012.

Royal Society of Chemistry. Molybdenum – Element information, properties and uses. Periodic Table. http://www.rsc.org/periodic-table/element/42/molybdenum [Datum van gebruik: 8 Augustus 2016].

Segal, E.B. 2000. First aid for a unique acid, HF: A sequel. *Chemical Health & Safety*, 2000:18–23.

Shahid, S., Nijmeijer, K., Nehache, S., Vankelecom, I., Deratani, A. & Quemener, D. 2015. MOF-mixed matrix membranes: Precise dispersion of MOF particles with better compatibility via a particle fusion approach for enhanced gas separation properties. *Journal of Membrane Science,* 492: 21–31.

Simonton, J.L. & Barry, L.K. 2006. Evolution of a more reliable gasket for HF alkylation units. Sealing Technology. Pressure Vessels and Piping/ICPVT-11 Conference Volume 7: Operations, Applications, and Components. Vancouver, BC, July 23–27, 2006.

Sinnott, R.K. 2005. *Coulson and Richardson's Chemical Engineering* Volume 6 - Chemical Engineering Design (4th ed.). Elsevier.

Skarstrom, C. W., & Heilman, W. O. 1962. *Heatless Fractionator*. US3069830A toegeken aan ExxonMobil Research and Engineering Co.

Stöcker, J., Whysall, M. & Miller, G. Q. 1998. *30 Years of PSA Technology for Hydrogen Purification.* UOP LLC, Des Plaines, Ill, USA.

Thenard, L. J & Gay-Lussac, I. L., 1809. *Ann Chim*, 69:204.

Thuneberg, E. 2003. Research on helium in LTL/Helsinki University of Technology. http://ltl.tkk.fi/research/theory/helium.html [Datum van gebruik: 2 November 2016].

Todd, R. S. and Webley, P. A. 2006. Mass-transfer models for rapid pressure swing adsorption simulation. *AIChE J.*, 52:3126–3145.

Toon, R. Fluorine, an obsession with a tragic past. Royal Society of Chemistry. http://www.rsc.org/images/EiC_Sept2011_fluorine_tcm18-207109.pdf [Datum van gebruik: 8 Augustus 2016].

Tuinier, M.J., Hamers, H.P. & Van Sint Annaland, M. 2011. Techno-economic evaluation of cryogenic CO_2 capture—A comparison with absorption and membrane technology. *International Journal of Greenhouse Gas Control* 5: 1559–1565.

Vega, J.L., Ayala, J., Loredo, J. & Iglesias, J.G. 2005. Bentonites as adsorbents of heavy metals ions from mine waste leachates: Experimental data. 9th International Mine Water Congress 603– 609. Oviedo, 5–7 September 2005.

Whitaker, J., M. 2005. Uranium enrichment plant characteristics – A training manual for the IAEA. Oak Ridge, TN: Oak Ridge National Laboratory.

Wikdahl, N. A. L. 1978. *Apparatus for the separation of gas mixtures into component fractions according to their molecular or atomic weight*. US 4070171 toegeken aan Wikdahl Nils Anders Lennart.

Weaver, C. F. & Friedman, H. A. 1967. A literature survey of the fluorides and oxyfluorides of molybdenum. U.S. Atomic Energy Commission.

World of Chemicals. http://www.worldofchemicals.com/chemicals/chemical-properties/22-dimethoxypropane.html [Datum van gebruik: 10 Januarie 2018].

Yaws, C. L. 2015. (2nd electronic ed.) *Yaws' Handbook of Antoine Coefficients for Vapor Pressure*. Elsevier.

Yaws, C. L. 2010. *Yaws' Thermophysical Properties of Chemicals and Hydrocarbons* (Electronic Edition). Knovel. http://app.knovel.com/hotlink/toc/id:kpYTPCHE02/yaws-thermophysical-properties/yaws-thermophysical-properties [Datum van gebruik: 10 Augustus 2016].

Yaws C. L., Ph.D. 1999. *Chemical Properties Handbook. Viscosity of Gas.* McGraw-Hill Professional Access Engineering.

Yang, R.T. & Benton, D.F. 2003. *Adsorbents: Fundamentals and Applications.* Hoboken, NJ: John Wiley & sons.

Zarkova, L. & Hohm, U. 2002. pVT – Second virial coefficients B(T), viscosity η(T), and self-diffusion ρD(T) of the gases: BF_3, CF_4, SiF_4, CCl_4, $SiCl_4$, SF_6, MoF_6, WF_6, UF_6, $C(CH_3)_4$, and $Si(CH_3)_4$. Determined by means of an isotropic temperature-dependent Potential. *Journal of Physical and Chemical Reference Data*, 31(183).

BYLAAG

Tabel A: Opsommende inligting A110

	A110				
	13-Sep	**20-Sep**	**21-Sep**	**29-Sep**	**4-Okt**
Massa van adsorbent (g)	3,6207	0,5106	2,4233	0,5365	**0,0847**
Begintemperatuur (°C)	27,25	39,06	39,94	21,97	**43,26**
Temperatuur (K)	300,4	312,21	313,09	295,12	**316,41**
Eindtemperatuur (°C)	27,44	41,33	39,45	23,63	**41,99**
Temperatuur (K)	300,59	314,48	312,6	296,78	**315,14**
Reaktor 1					
Aanvanklike druk (kPa)	24,9	19,58	20,02	13,67	**34,67**
Finale druk (kPa)	3,85	12,35	5,08	5,08	**8,3**
Drukverskil (kPa)	21,05	7,23	14,94	8,59	**26,37**
Volume van reaktor 1 (ml)	51,4582				
Volume van reaktor 1 (dm^3)	0,0514582				
Reaktor 2					
Aanvanklike druk (kPa)	24,9	19,48	14,82	4,82	**17,55**
Finale druk (kPa)	3,81	9,27	1,76	1,76	**8,51**
Drukverskil (kPa)	21,09	10,21	13,06	3,06	**9,04**
Volume van reaktor 2 (ml)	52,7471				
Volume van reaktor 2 (dm^3)	0,0527471				
R(J·mol/K)	8,314				
Beginmol	$5,13x10^{-4}$	$3,88x10^{-4}$	$3,96x10^{-4}$	$2,87x10^{-4}$	**$6,78x10^{-4}$**
Eindmol	$1,61x10^{-4}$	$3,69x10^{-4}$	$7,06x10^{-5}$	$7,43x10^{-5}$	**$3,38x10^{-4}$**
Mol gas geabsorbeer	$3,52x10^{-4}$	$1,87x10^{-5}$	$3,25x10^{-4}$	$2,12x10^{-4}$	**$3,40x10^{-4}$**
Massa gas geadsorbeer	$7,40x10^{-2}$	$3,93x10^{-3}$	$6,83x10^{-2}$	$4,46x10^{-2}$	**$7,13x10^{-2}$**
Mol gas per gram adsorbent geabsorbeer	$9,74x10^{-5}$	$3,66x10^{-5}$	$1,34x10^{-4}$	$3,96x10^{-4}$	**$4,01x10^{-3}$**
Massa gas per gram adsorbent geabsorbeer	$2,04x10^{-2}$	$7,69x10^{-3}$	$2,82x10^{-2}$	$8,31x10^{-2}$	**$8,42x10^{-1}$**

0,842 g MoF_6/(gram A110) geadsorbeer

Tabel B: Opsommende inligting A111

	A111			
	14-Sep	**21-Sep**	**29-Sep**	**4-Okt**
Massa van adsorbent (g)	6,0527	0,3081	0,5621	**0,0424**
Begintemperatuur (°C)	29,3	38,84	29,1	**24,51**
Temperatuur (K)	302,45	311,99	302,25	**297,66**
Eindtemperatuur (°C)	24,9	37,6	30,96	**24,71**
Temperatuur (K)	298,05	310,75	304,11	**297,86**
Reaktor 1				
Aanvanklike druk (kPa)	19,29	19,19	16,41	**35,89**
Finale druk (kPa)	4,98	4,98	4,98	**4,98**
Drukverskil (kPa)	14,31	14,21	11,43	**30,91**
Volume van reaktor 1 (ml)	51,4582			
Volume van reaktor 1 (dm^3)	0,0514582			
Reaktor 2				
Aanvanklike druk (kPa)	4,14	14,82	5,26	**16,54**
Finale druk (kPa)	1,76	3,69	1,76	**11,6**
Drukverskil (kPa)	2,38	11,13	3,5	**4,94**
Volume van reaktor 2 (ml)	52,7471			
Volume van reaktor 2 (dm^3)	0,0527471			
R(J·mol/K)	8,314			
Beginmol	$3,95x10^{-4}$	$3,81x10^{-4}$	$3,36x10^{-4}$	**$7,61x10^{-4}$**
Eindmol	$7,40x10^{-5}$	$1,49x10^{-4}$	$7,25x10^{-5}$	**$4,97x10^{-4}$**
Mol gas geabsorbeer	$3,21x10^{-4}$	$2,32x10^{-4}$	$2,63x10^{-4}$	**$2,63x10^{-4}$**
Massa gas geadsorbeer	$6,73x10^{-2}$	$4,87x10^{-2}$	$5,53x10^{-2}$	**$5,53x10^{-2}$**
Mol gas per gram adsorbent geabsorbeer	$5,30x10^{-5}$	$7,53x10^{-4}$	$4,69x10^{-4}$	**$6,21x10^{-3}$**
Massa gas per gram adsorbent geabsorbeer	$1,11x10^{-2}$	$1,58x10^{-1}$	$9,84x10^{-2}$	**1,30**

1,30 g MoF_6/(gram A111) geadsorbeer

Tabel C: Opsommende inligting A100 Mo

	A100 Mo			
	18-Sep	**21-Sep**	**29-Sep**	**25-Okt**
Massa van adsorbent (g)	2,0315	1,5795	1,0224	**0,0339**
Begintemperatuur (°C)	30,37	40,33	46,97	**37,4**
Temperatuur (K)	303,52	313,48	320,12	**310,55**
Eindtemperatuur (°C)	30,08	41,6	44,04	**34,28**
Temperatuur (K)	303,23	314,75	317,19	**307,43**
Reaktor 1				
Aanvanklike druk (kPa)	10,69	17,92	13,48	**31,51**
Finale druk (kPa)	4,98	4,98	4,98	**6,4**
Drukverskil (kPa)	5,71	12,94	8,5	**25,11**
Volume van reaktor 1 (ml)	51,4582			
Volume van reaktor 1 (dm^3)	0,0514582			
Reaktor 2				
Aanvanklike druk (kPa)	10,69	8,61	6,68	**15,84**
Finale druk (kPa)	1,76	1,76	1,76	**6,8**
Drukverskil (kPa)	8,93	6,85	4,92	**9,04**
Volume van reaktor 2 (ml)	52,7471			
Volume van reaktor 2 (dm^3)	0,0527471			
R(J·mol/K)	8,314			
Beginmol	$2{,}18x10^{-4}$	$3{,}54x10^{-4}$	$2{,}61x10^{-4}$	**$6{,}28x10^{-4}$**
Eindmol	$7{,}27x10^{-5}$	$7{,}01x10^{-5}$	$6{,}95x10^{-5}$	**$2{,}77x10^{-4}$**
Mol gas geabsorbeer	$1{,}45x10^{-4}$	$2{,}84x10^{-4}$	$1{,}91x10^{-4}$	**$3{,}51x10^{-4}$**
Massa gas geadsorbeer	$3{,}05x10^{-2}$	$5{,}96x10^{-2}$	$4{,}01x10^{-2}$	**$7{,}36x10^{-2}$**
Mol gas per gram adsorbent geabsorbeer	$7{,}15x10^{-5}$	$1{,}80x10^{-4}$	$1{,}87x10^{-4}$	**$1{,}03x10^{-2}$**
Massa gas per gram adsorbent geabsorbeer	$1{,}50x10^{-2}$	$3{,}77x10^{-2}$	$3{,}92x10^{-2}$	**2,17**

2,17 g MoF_6/(gram A100 Mo) geadsorbeer

Tabel D: Opsommende inligting MN102

	MN102 **15-Sep**	**28-Sep**	**29-Sep**	**25-Okt**
Massa van adsorbent (g)	3,1832	0,3517	1,7234	**0,01**
Begintemperatuur (°C)	31,84	35,74	42,77	**25,29**
Temperatuur (K)	304,99	308,89	315,92	**298,44**
Eindtemperatuur (°C)	26,56	36,33	43,85	**25,29**
Temperatuur (K)	299,71	309,48	317	**298,44**
Reaktor 1				
Aanvanklike druk (kPa)	14,21	15,97	15,77	**34,13**
Finale druk (kPa)	7,96	4,98	4,98	**12,74**
Drukverskil (kPa)	6,25	10,99	10,79	**21,39**
Volume van reaktor 1 (ml)	51,4582	51,4582	51,4582	**51,4582**
Volume van reaktor 1 (dm^3)	0,0514582	0,0514582	0,0514582	**0,051458**
Reaktor 2				
Aanvanklike druk (kPa)	2,92	5,81	5,26	**17,71**
Finale druk (kPa)	7,67	1,76	1,76	**13,11**
Drukverskil (kPa)	-4,75	4,05	3,5	**4,6**
Volume van reaktor 2 (ml)	52,7471	52,7471	52,7471	**52,7471**
Volume van reaktor 2 (dm^3)	0,0527471	0,0527471	0,0527471	**0,052747**
R(J·mol/K)	8,314	8,314	8,314	**8,314**
Beginmol	$2{,}88 \times 10^{-4}$	$3{,}20 \times 10^{-4}$	$3{,}09 \times 10^{-4}$	**$7{,}08 \times 10^{-4}$**
Eindmol	$3{,}21 \times 10^{-4}$	$7{,}13 \times 10^{-5}$	$6{,}96 \times 10^{-5}$	**$5{,}51 \times 10^{-4}$**
Mol gas geabsorbeer	$-3{,}24 \times 10^{-5}$	$2{,}49 \times 10^{-4}$	$2{,}39 \times 10^{-4}$	**$1{,}57 \times 10^{-4}$**
Massa gas geadsorbeer	$-6{,}80 \times 10^{-3}$	$5{,}22 \times 10^{-2}$	$5{,}03 \times 10^{-2}$	**$3{,}30 \times 10^{-2}$**
Mol gas per gram adsorbent geabsorbeer	$-1{,}02 \times 10^{-5}$	$7{,}07 \times 10^{-4}$	$1{,}39 \times 10^{-4}$	**$1{,}57 \times 10^{-2}$**
Massa gas per gram adsorbent geabsorbeer	$-2{,}14 \times 10^{-3}$	1,48E-01	$2{,}92 \times 10^{-2}$	**3,30**

3,30 g MoF_6/(gram MN102) geadsorbeer

Tabel E: Opsommende inligting S984

	S984			
	15-Sep	**26-Sep**	**28-Sep**	**25-Okt**
Massa van adsorbent (g)	5,6024	3,2279	2,974	0,0577
Begintemperatuur (°C)	23,24	38,28	35,35	24,71
Temperatuur (K)	296,39	311,43	308,5	297,86
Eindtemperatuur (°C)	38,87	41,11	37,79	25,1
Temperatuur (K)	312,02	314,26	310,94	298,25
Reaktor 1				
Aanvanklike druk (kPa)	11,08	17,33	20,31	41,02
Finale druk (kPa)	4,98	4,98	4,98	4,98
Drukverskil (kPa)	6,1	12,35	15,33	36,04
Volume van reaktor 1 (ml)	51,4582	51,4582	51,4582	51,4582
Volume van reaktor 1 (dm^3)	0,0514582	0,0514582	0,0514582	0,051458
Reaktor 2				
Aanvanklike druk (kPa)	10,63	7,81	4,68	20,95
Finale druk (kPa)	4,36	2,05	1,76	4,98
Drukverskil (kPa)	6,27	5,76	2,92	15,97
Volume van reaktor 2 (ml)	52,7471	52,7471	52,7471	52,7471
Volume van reaktor 2 (dm^3)	0,0527471	0,0527471	0,0527471	0,052747
R(J·mol/K)	8,314	8,314	8,314	8,314
Beginmol	2,31x10^{-4}	3,44x10^{-4}	4,07x10^{-4}	8,52x10^{-4}
Eindmol	1,75x10^{-4}	8,18x10^{-5}	7,09x10^{-5}	2,09x10^{-4}
Mol gas geabsorbeer	5,62x10^{-5}	2,63x10^{-4}	3,37x10^{-4}	6,43x10^{-4}
Massa gas geadsorbeer	1,18x10^{-2}	5,51x10^{-2}	7,06x10^{-2}	1,35x10^{-1}
Mol gas per gram adsorbent geabsorbeer	1,00x10^{-5}	8,14x10^{-5}	1,13x10^{-4}	1,11x10^{-2}
Massa gas per gram adsorbent	2,11x10^{-3}	1,71x10^{-2}	2,38x10^{-2}	2,34

2,34 g MoF_6/(gram S984) geadsorbeer

Tabel F: Opsommende inligting A870

A870

	14-Sep	26-Sep	27-Sep	29-Sep
Massa van adsorbent (g)	4,9783	1,5329	1,1275	3,9394
Begintemperatuur (°C)	31,86	37,99	39,06	25,98
Temperatuur (K)	305,01	311,14	312,21	299,13
Eindtemperatuur (°C)	27,83	41,11	41,06	29,88
Temperatuur (K)	300,98	314,26	314,21	303,03
Reaktor 1				
Aanvanklike druk (kPa)	18,55	17,33	18,99	16,26
Finale druk (kPa)	4,98	4,98	4,98	4,98
Drukverskil (kPa)	13,57	12,35	14,01	11,28
Volume van reaktor 1 (ml)	51,4582			
Volume van reaktor 1 (dm^3)	0,0515			
Reaktor 2				
Aanvanklike druk (kPa)	13,76	7,81	3,73	4,14
Finale druk (kPa)	1,76	2,05	1,76	2,96
Drukverskil (kPa)	12	5,76	1,97	1,18
Volume van reaktor 2 (ml)	52,7471			
Volume van reaktor 2 (dm^3)	0,0527			
R(J·mol/K)	8,314			
Beginmol	$3{,}76 \times 10^{-4}$	$3{,}45 \times 10^{-4}$	$3{,}76 \times 10^{-4}$	$3{,}36 \times 10^{-4}$
Eindmol	$7{,}33 \times 10^{-5}$	$8{,}18 \times 10^{-5}$	$7{,}02 \times 10^{-5}$	$1{,}22 \times 10^{-4}$
Mol gas geabsorbeer	$3{,}03 \times 10^{-4}$	$2{,}63 \times 10^{-4}$	$3{,}06 \times 10^{-4}$	$2{,}14 \times 10^{-4}$
Massa gas geadsorbeer	$6{,}36 \times 10^{-2}$	$5{,}52 \times 10^{-2}$	$6{,}43 \times 10^{-2}$	$4{,}49 \times 10^{-2}$
Mol gas per gram adsorbent geabsorbeer	$6{,}09 \times 10^{-5}$	$1{,}72 \times 10^{-4}$	$2{,}72 \times 10^{-4}$	$5{,}43 \times 10^{-5}$
Massa gas per gram adsorbent	$1{,}28 \times 10^{-2}$	$3{,}60 \times 10^{-2}$	$5{,}70 \times 10^{-2}$	$1{,}14 \times 10^{-2}$

Gemiddeld van 26 en 27 September 2017:

$2{,}22 \times 10^{-4}$ mol gas/gram adsorbent

$4{,}65 \times 10^{-2}$ massa gas/gram adsorbent

Tabel G: Opsommende inligting A850FL

A850FL	15-Sep	29-Sep	22-Nov
Massa van adsorbent (g)	3,3814	1,4954	0,1354
Begintemperatuur (°C)	26,56	22,46	26,17
Temperatuur (K)	299,71	295,61	299,32
Eindtemperatuur (°C)	34,67	27,05	26,37
Temperatuur (K)	307,82	300,2	299,52
Reaktor 1			
Aanvanklike druk (kPa)	14,4	16,6	31,01
Finale druk (kPa)	7,37	4,98	4,98
Drukverskil (kPa)	7,03	11,62	26,03
Volume van reaktor 1 (ml)	51,4582		
Volume van reaktor 1 (dm^3)	0,0515		
Reaktor 2			
Aanvanklike druk (kPa)	5,16	2,38	15,33
Finale druk (kPa)	7,16	1,76	3,98
Drukverskil (kPa)	-2	0,62	11,35
Volume van reaktor 2 (ml)	52,7471		
Volume van reaktor 2 (dm^3)	0,0527		
R(J·mol/K)	8,314		
Beginmol	$2,97x10^{-4}$	$3,48x10^{-4}$	$6,41x10^{-4}$
Eindmol	$2,92x10^{-4}$	$7,35x10^{-5}$	$1,67x10^{-4}$
Mol gas geabsorbeer	$5,84x10^{-6}$	$2,74x10^{-4}$	$4,75x10^{-4}$
Massa gas per gram adsorbent geabsorbeer	$1,23x10^{-3}$	$5,75x10^{-2}$	$9,96x10^{-2}$
Mol gas per gram adsorbent geabsorbeer	$1,73x10^{-6}$	$1,83x10^{-4}$	$3,51 x10^{-3}$
Massa gas per gram adsorbent geabsorbeer	$3,62x10^{-4}$	$3,85x10^{-2}$	$7,36x10^{-1}$

Waarde

$3,51x10^{-3}$	mol gas/gram adsorbent
$7,36x10^{-1}$	massa gas/gram adsorbent

Tabel H: Opsommende inligting van bentoniet

	25-Okt
Massa van adsorbent (g)	0,2938
Begintemperatuur (°C)	24,71
Temperatuur (K)	297,86
Eindtemperatuur (°C)	24,51
Temperatuur (K)	297,66
Reaktor 1	
Aanvanklike druk (kPa)	41,21
Finale druk (kPa)	8,69
Drukverskil (kPa)	32,52
Volume van reaktor 1 (ml)	51,4582
Volume van reaktor 1 (dm^3)	0,0514582
Reaktor 2	
Aanvanklike druk (kPa)	21,14
Finale druk (kPa)	9,02
Drukverskil (kPa)	12,12
Volume van reaktor 2 (ml)	52,7471
Volume van reaktor 2 (dm^3)	0,0527471
R(J·mol/K)	8,314
Beginmol	$8{,}56 \times 10^{-4}$
Eindmol	$3{,}80 \times 10^{-4}$
Mol gas geabsorbeer	$4{,}77 \times 10^{-4}$
Massa gas geadsorbeer	$1{,}00 \times 10^{-1}$
Mol gas per gram adsorbent geabsorbeer	$1{,}62 \times 10^{-3}$
Massa gas per gram adsorbent geabsorbeer	$3{,}40 \times 10^{-1}$

Tabel I: Opsommende inligting van alumina

	Alumina			
	19-Sep	29-Sep	29-Sep	**22-Nov**
Massa van adsorbent (g)	10,9575	11,4436	4,0533	**0,164**
Begintemperatuur (°C)	45.51	40,33	24,32	**42,58**
Temperatuur (K)	318,66	313,48	297,47	**315,73**
Eindtemperatuur (°C)	46,19	41,6	25,29	**39,65**
Temperatuur (K)	319,34	314,75	298,44	**312,8**
Reaktor 1				
Aanvanklike druk (kPa)	13,91	17,92	23,44	**27,59**
Finale druk (kPa)	4,98	4,98	4,98	**8,5**
Drukverskil (kPa)	8,93	12,94	18,46	**19,09**
Volume van reaktor 1 (ml)	51,4582			
Volume van reaktor 1 (dm^3)	0,05146			
Reaktor 2				
Aanvanklike druk (kPa)	13,88	8,61	10,8	**14,78**
Finale druk (kPa)	1,76	1,76	1,76	**8,9**
Drukverskil (kPa)	12,12	6,85	9,04	**5,88**
Volume van reaktor 2 (ml)	52,7471			
Volume van reaktor 2 (dm^3)	0,05275			
R(J·mol/K)	8,314			
Beginmol	$5,47x10^{-4}$	$3,54x10^{-4}$	$4,88x10^{-4}$	**$5,51x10^{-4}$**
Eindmol	$6,91x10^{-5}$	$7,01x10^{-5}$	$7,39x10^{-4}$	**$3,57\ x10^{-4}$**
Mol gas geabsorbeer	$4,78x10^{-4}$	$2,84\ x10^{-4}$	$4,14\ x10^{-4}$	**$1,84\ x10^{-4}$**
Mol gas per gram adsorbent geadsorbeer	$4,36x10^{-5}$	$2,48\ x10^{-5}$	$1,02\ x10^{-4}$	**$1,12\ x10^{-3}$**
Massa gas per gram adsorbent geadsorbeer	$1,27x10^{-2}$	$7,21x10^{-3}$	$2,97x10^{-2}$	**$3,27x10^{-1}$**

Waardes:

0,0011	mol gas/gram adsorbent
0,3268	massa gas/gram adsorbent

Tabel J: Opsommende inligting van koolstof

Koolstof

	20-Sep	27-Sep	28-Sep	23-Nov
Massa van adsorbent (g)	2,8027	5,1146	5,8148	0,1225
Begintemperatuur (°C)	27,25	39,06	25,59	42,38
Temperatuur (K)	300,4	312,21	298,74	315,53
Eindtemperatuur (°C)	21,97	41,11	38,48	38,87
Temperatuur (K)	295,12	314,26	311,63	312,02
Reaktor 1				
Aanvanklike druk (kPa)	13,28	18,99	17,09	24,37
Finale druk (kPa)	7,67	4,98	4,98	4,98
Drukverskil (kPa)	5,61	14,01	12,11	19,39
Volume van reaktor 1 (ml)	51,4582			
Volume van reaktor 1 (dm^3)	0,0515			
Reaktor 2				
Aanvanklike druk (kPa)	13,21	3,11	4,02	13,07
Finale druk (kPa)	7,55	1,76	1,98	5,26
Drukverskil (kPa)	5,66	1,35	2,04	7,81
Volume van reaktor 2 (ml)	52,7471			
Volume van reaktor 2 (dm^3)	0,0527			
R(J·mol/K)	8,314			
Beginmol	$5,54x10^{-4}$	$3,76\ x10^{-4}$	$3,54x10^{-4}$	$4,78\ x10^{-4}$
Eindmol	$3,21\ x10^{-4}$	$7,02\ x10^{-5}$	$7,96x10^{-5}$	$2,11\ x10^{-4}$
Mol gas geabsorbeer	$2,33\ x10^{-4}$	$3,06\ x10^{-4}$	$2,74x10^{-4}$	$2,67\ x10^{-4}$
Massa gas geadsorbeer	$4,90\ x10^{-2}$	$6,43\ x10^{-2}$	$5,76\ x10^{-2}$	$5,60\ x10^{-4}$
Mol gas per gram adsorbent geabsorbeer	$8,33\ x10^{-5}$	$5,99x10^{-5}$	$4,72x10^{-5}$	$2,18\ x10^{-3}$
Massa gas per gram adsorbent	$1,75\ x10^{-2}$	$1,26\ x10^{-2}$	$9,91x10^{-3}$	$4,57\ x10^{-1}$

Waarde:

0,0022 mol gas/gram adsorbent
0,4571 massa gas/gram adsorbent

Tabel K: Opsommende inligting van CCP 510 (Alphasorb 5)

CCP 510 (Alphasorb 5)	31-Okt	
Massa van adsorbent (g)	0,4162	
Begintemperatuur (°C)	26,17	
Temperatuur (K)	299,32	
Eindtemperatuur (°C)	25,78	
Temperatuur (K)	298,93	
Reaktor 1		
Aanvanklike druk (kPa)	30,08	
Finale druk (kPa)	20,85	
Drukverskil (kPa)	9,23	
Volume van reaktor 1 (ml)	51,4582	
Volume van reaktor 1 (dm^3)	0,0515	
Reaktor 2		
Aanvanklike druk (kPa)	26,68	
Finale druk (kPa)	21,14	
Drukverskil (kPa)	5,54	
Volume van reaktor 2 (ml)	52,7471	
Volume van reaktor 2 (dm^3)	0,0527	
R(J·mol/K)	8,314	
Beginmol	$6{,}22x10^{-4}$	
Eindmol	$8{,}86x10^{-4}$	
Mol gas geabsorbeer	$-2{,}64x10^{-4}$	
Massa gas geadsorbeer	$-5{,}55x10^{-2}$	
Mol gas per gram adsorbent geabsorbeer	$- 6{,}35x10^{-4}$	mol gas/gram adsorbent
Massa gas per gram adsorbent geadsorbeer	-0,1334	massa gas/gram adsorbent

Tabel L: Opsommende inligting van CCP 310 (Alphasorb 15)

CCP 310 (Alphasorb 15)

	31-Okt	
Massa van adsorbent (g)	0,3617	
Begintemperatuur (°C)	22,66	
Temperatuur (K)	295,81	
Eindtemperatuur (°C)	23,63	
Temperatuur (K)	296,78	
Reaktor 1		
Aanvanklike druk (kPa)	29,35	
Finale druk (kPa)	8,3	
Drukverskil (kPa)	21,05	
Volume van reaktor 1 (ml)	51,4582	
Volume van reaktor 1 (dm^3)	0,0515	
Reaktor 2		
Aanvanklike druk (kPa)	15,33	
Finale druk (kPa)	8,66	
Drukverskil (kPa)	6,67	
Volume van reaktor 2 (ml)	52,7471	
Volume van reaktor 2 (dm^3)	0,0527	
R(J·mol/K)	8,314	
Beginmol	$6{,}14 \times 10^{-4}$	
Eindmol	$3{,}66 \times 10^{-4}$	
Mol gas geabsorbeer	$2{,}48 \times 10^{-4}$	
Massa gas geadsorbeer	$5{,}21 \times 10^{-2}$	
Mol gas per gram adsorbent geabsorbeer	$6{,}87 \times 10^{-4}$	mol gas/gram adsorbent
Massa gas per gram adsorbent geadsorbeer	0,1442	massa gas/gram adsorbent