

blen Wand, mit der sich die in der klassischen Thermodynamik so häufig benutzten Gedankenexperimente bei vielen Gasmischungen tatsächlich ausführen lassen.

Wir haben gefunden, daß beim Neon bestimmte D-haltige Methane für diesen Zweck noch geeigneter sind als die Ammoniak. Mit ihrer Hilfe ließ sich das seltene, in der Natur nur zu 0,26% vorkommende Neonisotop  $^{21}\text{Ne}$  gegenwärtig bis auf 53,7% anreichern, worüber später berichtet werden soll.

Anm. b. d. Korr.: 1. Inzwischen wurde mit einer  $\text{CD}_4\text{-CD}_3\text{H}$ -Mischung als Hilfsgas eine  $^{21}\text{Ne}$ -Konzentration von 98,9% erreicht, wobei die Konzentration der flankierenden Isotope auf 0,4%  $^{22}\text{Ne}$  und 0,7%  $^{20}\text{Ne}$  herabgedrückt werden konnte. Dies veranschaulicht die außerordentliche Selektion, derer das Trennrohr bei richtiger Anwendung fähig ist.

2. Herr P. Flubacher hat bei uns Versuche mit Gasen vom Molgewicht 30 bis 40 begonnen, wie  $\text{C}_2\text{H}_6$ ,  $\text{CH}_3\text{NH}_2$ ,  $\text{SiH}_4$ ,  $\text{PH}_3$ ,  $\text{H}_2\text{S}$ ,  $\text{CH}_3\text{F}$ ,  $\text{HCl}$ , A und entsprechenden isotopen Verbindungen. Dabei wurde im System  $\text{CH}_3\text{NH}_2/\text{A}$  der Umkehroeffekt für  $\alpha$  in Abhängigkeit vom Mischungsverhältnis gefunden. Er zeigt übrigens eine erhebliche Temperaturabhängigkeit, die noch näher untersucht werden muß.

## Die Trenndüse

### Ein neues Element zur Gas- und Isotopentrennung

Von E. W. BECKER, K. BIER und H. BURGHOFF

Aus dem Physikalischen Institut der Universität Marburg (Lahn)

(Z. Naturforschg. **10a**, 565—572 [1955]; eingegangen am 21. Juni 1955)

Bei der Ausströmung eines Gas- oder Isotopengemisches aus einer Düse tritt unter geeigneten Druckbedingungen eine teilweise räumliche Entmischung der Komponenten ein, die sich durch Anbringen einer Abschäblende für eine präparative Trennung ausnutzen läßt. Die Eigenschaften der als Trenndüse bezeichneten Kombination aus Düse und Abschäblende werden mit verschiedenen Gas- und Isotopengemischen ermittelt und im Hinblick auf die praktische Isotopentrennung diskutiert. Die zwischen den Gasströmen erreichbaren Trennfaktoren stimmen etwa mit denen einer Hertzschsen Trennwandeinheit überein. Der Ersatz der feinporeigenen Wände durch Trenndüsen führt jedoch zu einer erheblich größeren Betriebssicherheit und ermöglicht, bei gleichem Aufwand für die Trennelemente, einen wesentlich höheren Gasdurchsatz.

Bei Versuchen zur Erzeugung eines intensiven Wasserstoff-Molekularstrahls mit einer Laval-Düse<sup>1</sup> haben wir beobachtet, daß die mit Staurohr und Manometer gemessene scheinbare Molekularstrahlintensität außerordentlich ansteigt, wenn dem Wasserstoff eine geringe Menge eines schweren Gases zugesetzt wird. Aus Abb. 1 geht hervor, daß beispielsweise 4% Argon genügen, um die scheinbare Molekularstrahlintensität zu versechsfachen. Die Abhängigkeit des Effektes von der Masse und vom Wirkungsquerschnitt des Zusatzgases ließ vermuten, daß die Erscheinung auf einer weitgehenden Trennung der Komponenten im Strahl beruht, bei der die leichte bevorzugt aus dem Strahl ausscheidet, während die im Staurohr angereicherte schwere durch langsamere Effusion einen höheren Druck bewirkt.

Bei dem Versuch, diese Vorstellung experimentell zu bestätigen, stellte sich heraus, daß ein wesent-

licher Teil der angenommenen Trennung bereits im Raum zwischen der Düse und der ersten Abschäblende vor sich geht. Mit verschiedenen Testgemischen konnten zwischen dem die Blende passierenden Kern- und dem von ihr abgeschalteten Mantelstrahl Trennfaktoren erzielt werden, die denen einer Hertzschsen Trennwandeinheit<sup>2</sup> entsprachen. Da der Gasdurchsatz einer einzelnen, nur 0,5 mm weiten Düse in der Größenordnung von Normallitern pro Stunde lag, wurde klar, daß die Kombination aus Laval-Düse und Abschäblende ein praktisch brauchbares Trennelement darstellt, das auch für die Isotopentrennung geeignet ist.

In der vorliegenden Arbeit werden die charakteristischen Eigenschaften des als Trenndüse bezeichneten Elementes in einer Reihe orientierender Versuche mit Gas- und Isotopengemischen ermittelt und im Hinblick auf die praktische Isotopentrennung diskutiert.

<sup>1</sup> E. W. Becker u. K. Bier, Z. Naturforschg. **9a**, 975 [1954].

<sup>2</sup> G. Hertz, Z. Phys. **79**, 108 [1932].



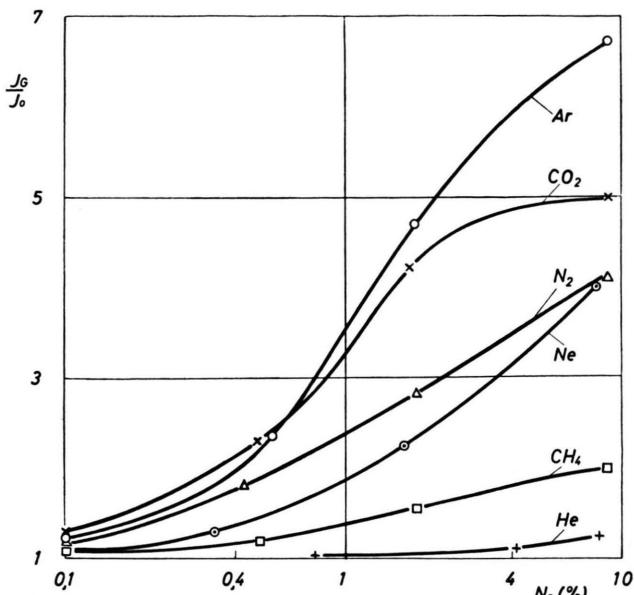


Abb. 1. Verhältnis des Staudrucks  $J_G$  eines Molekularstrahls, der aus Wasserstoff mit dem Gehalt  $N_0$  an schwerer Komponente erzeugt wurde, zum Staudruck  $J_0$  eines reinen Wasserstoffstrahls. Das Strahlerzeugungssystem ist in Abb. 8 der in Anm.<sup>1</sup> zitierten Arbeit wiedergegeben.

### Die Apparatur

Die Untersuchung wurde mit der in Abb. 2 schematisch dargestellten Anordnung durchgeführt. Ein Gaszuleitungsrohr B trägt an seinem unteren Ende die Laval-Düse C, der die kegelförmige Abschäblende D gegenübersteht<sup>3</sup>. Der Abstand zwischen Düse und Abschäblende kann durch Verschieben des Rohres B in der mit einem Simmerring gedichteten Führung E von außen verändert werden. An die Kammern F und G, die das Mantel- bzw.

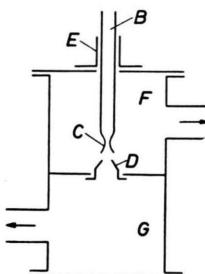


Abb. 2. Schema der Trennanordnung.

Kerngas aufnehmen, sind über Ventile Quecksilberpumpen (Hg 45 Leybold) angeschlossen, deren Vorvakuumseite mit rotierenden Ölpumpen in Verbindung steht. Die Gasproben werden auf der

Vorvakuumseite der Quecksilberpumpen unter einem Druck von maximal 12 Torr entnommen und für die Analysen in einer Töpler-Einrichtung verdichtet.

### Versuche mit Testgemischen

Ein Teil der Eigenschaften des Trennelementes konnte mit Testgemischen ermittelt werden, die

<sup>3</sup> Vgl. Abb. 2 der in Anm. 1 zitierten Arbeit.

einen besonders großen Trennfaktor besitzen und sich leicht analysieren lassen. Es wurde einmal ein Gemisch aus 97,8%  $\text{H}_2$  und 2,2% Ar verwendet, dessen Mischungsverhältnis in einer Gaswaage mit einem Fehler von weniger als 1% zu bestimmen war; zum anderen ein Gemisch aus 90,4%  $\text{CO}_2$  und 9,6%  $\text{H}_2$ , das durch Ausfrieren des  $\text{CO}_2$  in flüssiger Luft mit einem Fehler von 2 bis 3% analysiert werden konnte. Aus den Molenbrüchen  $n_0$ ,  $n_K$  und  $n_M$  der leichten Komponente im Ausgangs-, Kern- und Mantelgas sowie aus den entsprechenden Molenbrüchen  $N_0$ ,  $N_K$  und  $N_M$  der schweren Komponente wurden gebildet:

- a) der Anreicherungsfaktor der leichten Komponente im Mantelgas

$$\alpha = \frac{n_M N_0}{n_0 N_M};$$

- b) der Anreicherungsfaktor der schweren Komponente im Kerngas

$$\beta = \frac{N_K n_0}{N_0 n_K};$$

- c) der Trennfaktor

$$A = N_K n_M / N_M n_K.$$

Die drei Größen hängen durch die Beziehung  $A = \alpha \cdot \beta$  zusammen. Ferner wurde gemessen:

- d) das Abschälverhältnis

$$\vartheta = \frac{\text{molare Stromstärke des Mantelgases}}{\text{molare Gesamtstromstärke}}.$$

### 1. Der räumliche Verlauf der Trennung

Durch Variation des Durchmessers  $f$  der Abschäleröffnung und ihres Abstandes  $d$  von der Düsenmündung sollte zunächst ein qualitativer Einblick in den räumlichen Verlauf der Trennung gewonnen werden.

Es wurde eine Laval-Düse mit einer engsten Öffnung von 0,51 mm  $\varnothing$  und einer Mündung von 1,5 mm  $\varnothing$  verwendet. Der Außenwinkel der kegelförmigen, mit Öffnungen von 0,78, 1,5 und 2,2 mm  $\varnothing$  versehenen Abschäblenden betrug 70°, der Innenwinkel 50°. Im Gaszuleitungsrohr B (Abb. 2) standen die Gemische unter einem Druck  $p_B = 15$  Torr, wodurch sich die Drücke  $p_F$  und  $p_G$  in den Räumen F und G je nach dem Abschälverhältnis und der Art des Gemisches auf  $10^{-2}$  bis  $10^{-3}$  Torr einstellten. Der Gasstrom durch die Düse betrug bei dem  $\text{H}_2/\text{Ar}$ -Gemisch 6,5 nLiter/h und bei dem  $\text{CO}_2/\text{H}_2$ -Gemisch 1,8 nLiter/h.

Nach Abb. 3 nimmt der Anreicherungsfaktor  $\alpha$  der leichten Komponente im Mantelgas für beide Gemische im untersuchten Bereich mit steigendem Abschälerdurchmesser  $f$  und fallendem Abschäler-

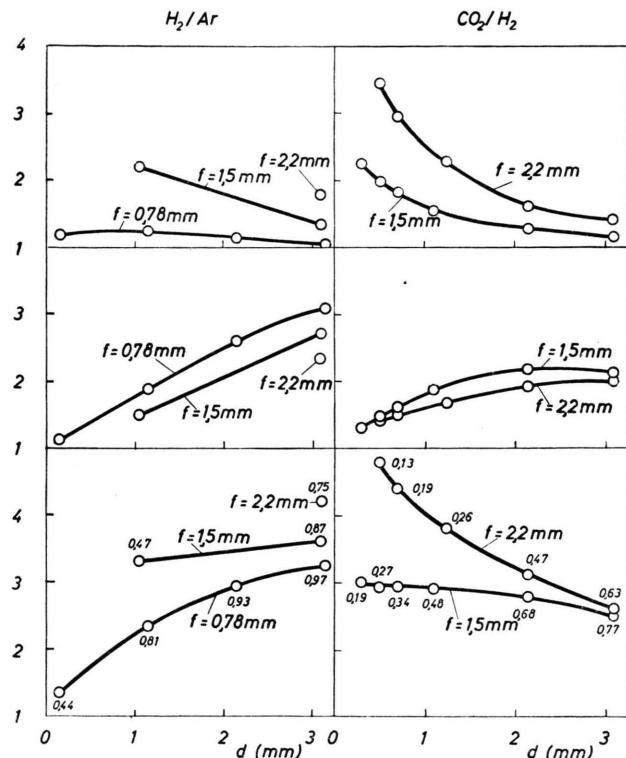


Abb. 3. Abhängigkeit der Anreicherungsfaktoren  $\alpha$  und  $\beta$  sowie des Trennfaktors  $A$  vom Abschälerdurchmesser  $f$  und vom Abstand  $d$  zwischen Abschäleröffnung und Düsemündung. Die Zahlen an den Meßpunkten geben das Abschälverhältnis  $\theta$  wieder.

abstand  $d$  zu, während der Anreicherungsfaktor  $\beta$  der schweren Komponente im Kerngas im wesentlichen den umgekehrten Verlauf zeigt<sup>4</sup>. Beziiglich des Trennfaktors  $A$  verhalten sich die Gemische etwas verschieden: zwar nimmt  $A$  für beide mit steigendem Abschälerdurchmesser zu; mit steigender Entfernung  $d$  wächst dagegen nur der Trennfaktor für  $H_2/Ar$ , während diese Größe für  $CO_2/H_2$  im untersuchten Entfernungsbereich monoton abfällt<sup>5</sup>.

Aus diesem Ergebnis läßt sich qualitativ das in Abb. 4 dargestellte Stromdichtediagramm ableiten. Darin bedeuten  $S_1$  und  $S_2$  die Stromdichte-

verteilungen der schweren,  $L_1$  und  $L_2$  die der leichten Komponente in 1 und 3 mm Abstand von der Düsenmündung C. Die Gesamtstromstärken der Komponenten sind zur Vereinfachung der Darstellung als etwa gleich angenommen. Bei Berücksichtigung der Zylindersymmetrie gibt ein Vergleich der von den Abschälern begrenzten Teilflächen unter den Kurven die experimentell gefundene Abhängigkeit der Anreicherungsfaktoren  $\alpha$  und  $\beta$  vom Durchmesser und Abstand der Abschäleröffnung für beide Gemische qualitativ richtig wieder. Die von dem Diagramm nicht erfaßten feineren Unterschiede im Verhalten der Gemische, die am Verlauf für  $A$  besonders deutlich werden, lassen sich an Hand folgenden Modells der Entmischung verstehen:

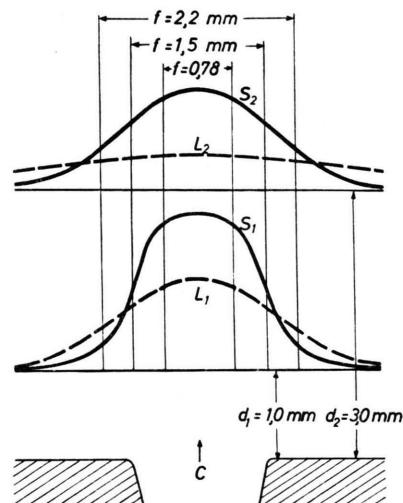


Abb. 4. Die Stromdichteverteilungen  $S$  und  $L$  der schweren bzw. leichten Komponente in verschiedenen Abständen  $d$  von der Mündung der Düse C.

Die verschiedene räumliche Ausbreitung der beiden Strahlkomponenten beruht offenbar hauptsächlich darauf, daß der leichtere Partner, bei gleicher Schwerpunktsgeschwindigkeit wie der schwere, eine schnellere ungeordnete Molekularbewegung ausführt<sup>6</sup>. Bei dem Gemisch aus

<sup>4</sup> Die Tatsache, daß die Verlängerung der mit  $f = 0.78 \text{ mm}$  aufgenommenen Kurve für  $\beta$  beim  $H_2/Ar$ -Gemisch bei  $d = 0$  innerhalb der Fehlernähe den Wert  $\beta = 1$  erreicht, spricht dafür, daß in der Düse selber noch keine merkliche Entmischung stattfindet. Bei diesem Abschäler, dessen Durchmesser wesentlich kleiner als die Düsenmündung ist, dürfte deshalb auch die entsprechende Kurve für  $\alpha$  bei sehr kleinen Werten von  $d$  wieder abfallen.

<sup>5</sup> Es ist dabei zu beachten, daß die Untersuchung am  $CO_2/H_2$ -Gemisch hauptsächlich mit größeren Abschälerdurchmessern ausgeführt wurde.

<sup>6</sup> Bei einer vollständigen Beschreibung des Trenneffektes müssen auch die Zusammenstöße im Strahl und die Störung der Verteilungsfunktionen berücksichtigt werden.

≈ 98% H<sub>2</sub> und 2% Ar ist die Schwerpunktsgeschwindigkeit nahezu mit der eines Strahls aus reinem Wasserstoff identisch, während bei der 10-proz. H<sub>2</sub>/CO<sub>2</sub>-Mischung die wesentlich geringere Schwerpunktsgeschwindigkeit eines fast reinen CO<sub>2</sub>-Strahls vorliegt. Da die ungeordneten Geschwindigkeiten der schweren bzw. leichten Komponenten in den Gemischen praktisch übereinstimmen, ergibt sich für das Gemisch mit überwiegendem Gehalt an schwerer Komponente ein in Strahlrichtung zusammengedrängter Ablauf des Entmischungsprozesses<sup>7</sup>.

Es sei betont, daß der Einfluß des Molenbruches der schweren Komponente auf die Ausscheidungsgeometrie hauptsächlich durch den extremen Massenunterschied der Komponenten bedingt ist. Bei Isotopengemischen, die eine erheblich kleinere relative Massendifferenz besitzen, sollte die mittlere Masse für die Geometrie kaum eine Rolle spielen, da die Schwerpunktsgeschwindigkeit des Strahles mit der Masse etwa im gleichen Maße abnimmt wie die Querkomponente der ungeordneten Molekulargeschwindigkeit.

## 2. Die Drucke vor und hinter der Düse

Nach dem beschriebenen Mechanismus ist für die Trennung ein gerichteter Gasstrahl erforderlich, dessen Teilchendichte klein genug sein muß, um die Komponenten weitgehend unabhängig von einander ausscheiden zu lassen. Da die räumliche Ausbildung des Strahls durch das Expansionsverhältnis  $p_B/p_F$  sowie den Absolutdruck  $p_F$  gegeben ist<sup>1</sup>, der auch, zusammen mit dem Wirkungsquerschnitt, die freie Weglänge im Strahl bestimmt, muß die Entmischung in charakteristischer Weise von den Drucken vor und hinter der Düse abhängen.

Bei den in Abb. 5 wiedergegebenen Versuchen wurde der Trennfaktor für H<sub>2</sub>/Ar in Abhängigkeit vom Einlaßdruck  $p_B$  bei fester Geometrie gemessen. Für Kurve a war der Gegendruck  $p_F$  auf 0,5 Torr, für Kurve b auf 0,1 Torr eingestellt. Bei Kurve c blieb das Ventil zur Pumpe für alle Einlaßdrücke voll geöffnet, wodurch  $p_F$  im untersuch-

ten Bereich von  $p_B$  zwischen 0,1 und 0,01 Torr variierte.

Nach Abb. 5 steigt der Trennfaktor mit zunehmendem Einlaßdruck zunächst an, um nach Erreichen eines Maximums konstant zu bleiben oder wieder abzufallen. Der anfängliche Anstieg ist um so steiler, je kleiner der Gegendruck, d. h. je größer das Expansionsverhältnis bei vorgegebenem Einlaßdruck ist. Die Tatsache, daß auch die Höhe des Maximums mit fallendem Gegendruck zunimmt, spiegelt den erwähnten Einfluß der mittleren freien Weglänge wider<sup>8</sup>. Dabei ist zu berücksichtigen, daß die Dichte im Strahl auf dem relativ kurzen Weg zwischen Düse und Abschäler merklich höher sein kann, als es dem im Raum F gemessenen Druck  $p_F$  entspricht<sup>1</sup>.

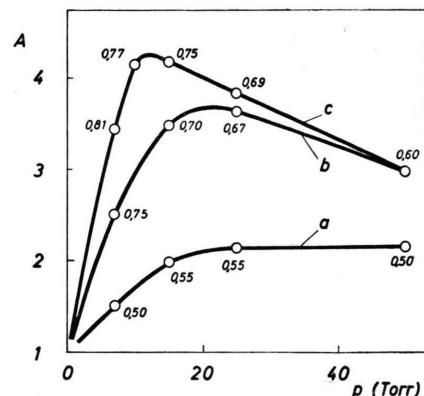


Abb. 5. Der Trennfaktor  $A$  in Abhängigkeit vom Druck  $p_B$  vor der Düse bei verschiedenen Gegendrücken  $p_F$ : a)  $p_F = 0,5$  Torr; b)  $p_F = 0,1$  Torr; c) Ventil zur Quecksilberpumpe voll geöffnet. H<sub>2</sub>/Ar-Gemisch,  $f = 2,2$  mm,  $d = 3,1$  mm. Die Zahlen an den Meßpunkten geben wieder das Abschälverhältnis an.

## 3. Der Düsendurchmesser

Dem Einfluß der freien Weglänge geht eine Abhängigkeit der Entmischung vom Strahl- bzw. Düsendurchmesser parallel, da die Möglichkeit zum freien Ausscheiden der Komponenten durch das Verhältnis beider Größen bestimmt wird.

In Abb. 6 ist die mit CO<sub>2</sub>/H<sub>2</sub> gemessene Abhängigkeit des Trennfaktors vom Einlaßdruck für die bisher verwendete sowie für eine engere Düse wie-

<sup>7</sup> In größerer Entfernung muß die Entmischung in jedem Fall durch die Abbremsung des Strahls rückgängig gemacht werden, wenn der Strahl nicht, wie bei den in Abb. 1 dargestellten Versuchen, ins Hochvakuum überführt wird. Für den im Hochvakuum laufenden Strahl ergibt sich durch Zusammenstöße, bei denen bevorzugt die leichte Komponente ausscheidet,

eine außerordentlich hohe Anreicherung der schweren Komponente im Reststrahl (vgl. Einleitung).

<sup>8</sup> Bei vergleichbaren Expansionsverhältnissen, jedoch wesentlich höheren Gegendrücken als den hier verwendeten (z.B.  $p_F = 10$  Torr), beobachtet man eine schwache Entmischung, bei der sich die schwerere Komponente im Mantelgas anreichert.

dergegeben, die einen kleinsten Durchmesser von 0,35 mm und einen Mündungsdurchmesser von 1,2 mm besaß. Die Versuche wurden mit voll geöffneten Pumpenventilen durchgeführt.

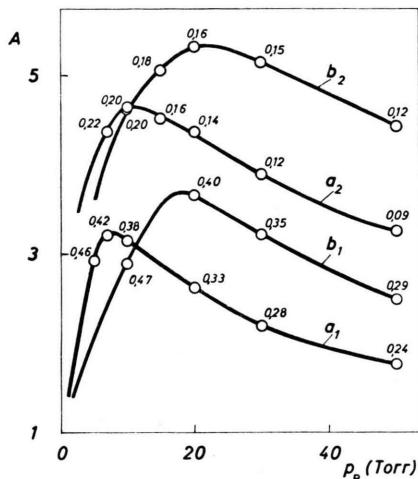


Abb. 6. Die mit  $\text{CO}_2/\text{H}_2$  gemessene Abhängigkeit des Trennfaktors  $A$  vom Einlaßdruck  $p_B$  für eine Laval-Düse mit einem engsten Durchmesser von 0,51 mm (Kurven a) und 0,35 mm (Kurven b).  $a_1$  und  $b_1$  wurden mit einem Abschälerdurchmesser  $f_1 = 1,5$  mm,  $a_2$  und  $b_2$  mit  $f_2 = 2,2$  mm aufgenommen;  $d = 0,7$  mm. Die Zahlen an den Meßpunkten geben wieder das Abschälverhältnis an.

Man bemerkt eine Verschiebung des Maximums der mit der engeren Düse aufgenommenen Kurven zu größeren Einlaßdrucken. Die gleichzeitige Erhöhung dürfte hauptsächlich darauf beruhen, daß mit der engeren Düse bei gleichem Gegendruck  $p_F$  ein größeres Expansionsverhältnis erreicht werden kann.

#### 4. Der Druck hinter der Abschäblerblende

Während ein verhältnismäßig niedriger Druck im Raum zwischen Düse und Abschäblerblende aus den erwähnten Gründen für die Trennung obligatorisch ist, besteht für die Höhe des Druckes im Raum hinter der Abschäblerblende lediglich die einschränkende Bedingung, daß keine Rückmischung der getrennten Strahlteile durch die Abschäblerblende erfolgen soll. Diese Forderung wurde bei den bisherigen Versuchen durch kräftiges Abpumpen erfüllt. Für die praktische Anwendung des Verfahrens ist es jedoch von erheblicher Bedeutung, daß sich im Raum G (Abb. 2) ohne Nachteil für die Trennung wesentlich höhere Drucke als im Raum

F aufrechterhalten lassen, wenn die Abschäblerblende gleichzeitig als Staudüse benutzt wird.

Diese Möglichkeit geht aus den in Tab. 1 zusammengestellten, mit  $\text{CO}_2/\text{H}_2$  durchgeföhrten Versuchen hervor, bei denen eine Abschäblerblende mit einem zylindrischen Kanal von 2 mm  $\varnothing$  und 9,5 mm Länge verwendet wurde. Bei einem Druck  $p_F$  von  $1 \cdot 10^{-2}$  Torr ergibt eine Erhöhung des Druckes  $p_G$  von  $1 \cdot 10^{-2}$  auf  $3 \cdot 10^{-1}$  Torr nach Tab. 1 noch keine außerhalb der Fehlergrenze liegende Verminderung des Trennfaktors. Erst eine Erhöhung von  $p_G$  auf  $8 \cdot 10^{-1}$  Torr setzt  $A$  von 5,1 auf 3,1 herab. Aus noch im Gang befindlichen Versuchen geht hervor, daß bei geeigneterer Formgebung des Abschälerkanals noch merklich höhere Verhältnisse  $p_G/p_F$  ohne Nachteil für die Entmischung aufrechterhalten werden können.

$p_B$ (Torr)	$d$ (mm)	$p_F$ (Torr)	$p_G$ (Torr)	$A$
15	1,1	$1 \cdot 10^{-2}$	$1 \cdot 10^{-2}$	5,1
15	1,0	$1 \cdot 10^{-2}$	$3 \cdot 10^{-1}$	5,0
15	0,7	$1 \cdot 10^{-2}$	$8 \cdot 10^{-1}$	3,1

Tab. 1. Abhängigkeit des Trennfaktors  $A$  vom Druck  $p_G$  hinter der Abschäblerblende bei Benutzung eines zylindrischen Abschälerkanals. Das Abschälerverhältnis  $\vartheta$  wurde durch Variation von  $d$  auf etwa 0,5 konstant gehalten.

Aus einem Vergleich der in Tab. 1 zusammengestellten Ergebnisse mit den in Abb. 3 wiedergegebenen Versuchen folgt die bemerkenswerte Tatsache, daß sich der Trennfaktor, für ein vorgegebenes Abschälerverhältnis, durch Verwendung eines stauenden Abschälerkanals steigern läßt. Dieser Effekt dürfte vor allem auf dem bevorzugten Rückstrom der leichten Komponenten aus dem Abschälerkanal in den Raum F (Abb. 2) beruhen.

#### 5. Die Schlitzdüse

Da der Gasdurchsatz einer runden Düse durch das Verhältnis von Strahldurchmesser und freier Weglänge nach oben begrenzt ist, müssen bei einer praktischen Anwendung des Verfahrens gegebenenfalls mehrere Kombinationen aus Düse und Abschäler parallelgeschaltet werden. Wesentlich einfacher ist es jedoch, die Düse schlitzförmig und den Abschäler dachförmig auszubilden, wodurch es möglich wird, den Gasdurchsatz unter Einhaltung der kritischen Düsenweite mit der Schlitzlänge im Prinzip beliebig zu steigern.

Bei einem orientierenden Versuch wurde eine Schlitzzüse von 0,2 mm Weite und 20 mm Länge verwendet. Der Abstand zwischen der Düsenmündung und der Abschäleröffnung betrug 0,4 mm, während die Abschälerweite auf 2,1 mm eingestellt war. Mit  $p_B = 10$  Torr konnte für  $\vartheta = 0,10$  ein Trennfaktor  $A = 5,7$  erzielt werden, was praktisch dem bei der runden Düse erhaltenen Ergebnis (Abb. 3) entspricht. Der Gasdurchsatz war dabei etwa zwölfmal größer als der der 0,5 mm weiten runden Düse bei gleichem Einlaßdruck. Eine weitere Steigerung des Durchsatzes war wegen der begrenzten Pumpkapazität nicht möglich.

### Versuche mit Isotopen

Die Grundeigenschaften des Trennelementes wurden mit Testgemischen ermittelt, die wegen der großen relativen Massendifferenz ihrer Komponenten leicht zu beobachtende Entmischungen ergaben. Die für die praktische Isotopentrennung wichtige Abhängigkeit der Anreicherungsfaktoren vom Abschälverhältnis und von der relativen Massendifferenz läßt sich aus diesen Versuchen jedoch nur unvollkommen entnehmen, weshalb es zweckmäßig erschien, diese Zusammenhänge unmittelbar an Isotopengemischen zu studieren.

#### 1. Das Abschälverhältnis

Für die Untersuchung war das natürliche Gemisch aus  $\approx 0,3\%$  Ar<sup>36</sup> und  $\approx 99,6\%$  Ar<sup>40</sup> besonders geeignet, da es leicht zugänglich ist und sich massenspektrometrisch mit großer Genauigkeit analysieren lässt. Die Analysen wurden mit einem Massenspektrometer 21—103 C der Consolidated Engineering Corporation durchgeführt<sup>9</sup>, wobei jede Probe, abwechselnd mit dem Ausgangsgas, fünfmal in das Spektrometer eingelassen wurde. Bei jeder Messung wurde das Massenpaar 36/40 fünfmal hintereinander registriert, so daß für die Mittelwertbildung von jeder Probe fünfundzwanzig Einzelangaben des Mischungsverhältnisses vorlagen.

In Tab. 2 sind die Ergebnisse von sieben, unter verschiedenen Bedingungen durchgeföhrten Versuchen zusammengestellt. Für die verschiedenen Düsen wurde der Einlaßdruck  $p_B$  so gewählt, wie

<sup>9</sup> Wir danken dem Direktor des Max-Planck-Institutes für Kohlenforschung, Herrn Prof. Dr. K. Ziegler, für die Möglichkeit zur Benutzung des Massenspektrometers.

Düse	$p_B$ (Torr)	$d$ (mm)	$\alpha$	$\beta$	$A$	$\vartheta$
a	10	2,1 <sub>s</sub>	1,0173 $\pm 0,0006$	1,0251 $\pm 0,0005$	1,0427 $\pm 0,0008$	0,59
		1,1	1,0345 $\pm 0,0009$	1,0164 $\pm 0,0007$	1,0514 $\pm 0,0012$	0,31
		0,7	1,0450 $\pm 0,0009$	1,0123 $\pm 0,0008$	1,0578 $\pm 0,0012$	0,20
b	23	2,1 <sub>s</sub>	1,0211 $\pm 0,0008$	1,0209 $\pm 0,0012$	1,0424 $\pm 0,0011$	0,49
		1,4	1,0339 $\pm 0,0019$	1,0152 $\pm 0,0014$	1,0492 $\pm 0,0019$	0,30
		1,1	1,0409 $\pm 0,0012$	1,0117 $\pm 0,0009$	1,0535 $\pm 0,0012$	0,22
c	10	0,3 <sub>s</sub>	1,1251 $\pm 0,0016$	1,0046 $\pm 0,0012$	1,1302 $\pm 0,0013$	0,04

Tab. 2. Trennversuche mit dem natürlichen Gemisch aus  $\approx 0,3\%$  Ar<sup>36</sup> und  $\approx 99,6\%$  Ar<sup>40</sup>. Die Düsen a und b waren Laval-Düsen mit einem engsten Durchmesser von 0,51 bzw. 0,35 mm; c war eine konvergente Düse mit 0,47 mm  $\varnothing$  (vgl. die in Ann. 1 zitierte Arbeit). Abschälerdurchmesser  $f = 2,2$  mm;  $p_F$  und  $p_G \approx 1 \cdot 10^{-2}$  Torr. Der Gasdurchsatz durch die Düse betrug in allen Fällen etwa 1 nLiter/Stunde.

er sich bei den Testversuchen mit CO<sub>2</sub>/H<sub>2</sub> bezüglich  $A$  als optimal erwiesen hatte. Nach Abb. 7 läßt sich die Abhängigkeit der Größen

$$\varepsilon_\alpha = \alpha - 1; \quad \varepsilon_\beta = \beta - 1; \quad \varepsilon_A = A - 1$$

vom Abschälverhältnis durch gemeinsame Kurven darstellen. Dabei nimmt  $\varepsilon_\beta$  mit steigenden,  $\varepsilon_\alpha$  dagegen mit fallenden  $\vartheta$ -Werten zu, wie es auf Grund

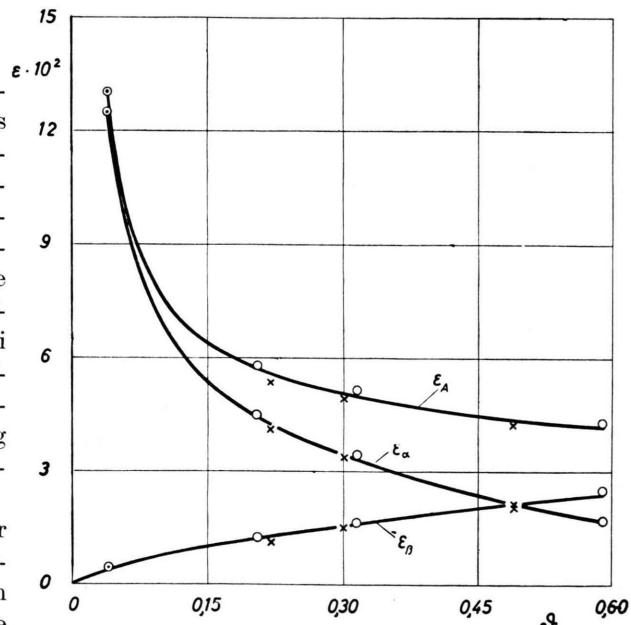


Abb. 7. Abhängigkeit der Größen  $\varepsilon_\alpha$ ,  $\varepsilon_\beta$  und  $\varepsilon_A$  vom Abschälverhältnis  $\vartheta$  bei der Entmischung der Argonisotope. Wegen der Versuchsbedingungen vgl. Tab. 2. ○ weite Laval-Düse, ✕ enge Laval-Düse, ◎ konvergente Düse.

der in Abb. 3 dargestellten Testversuche zu erwarten war. Da der steile Anstieg von  $\varepsilon_\alpha$  mit kleiner werdendem  $\vartheta$  den gleichzeitigen Abfall von  $\varepsilon_\beta$  überwiegt, wächst auch  $\varepsilon_A$  mit fallendem Abschälverhältnis stark an.

Dieses Verhalten erklärt sich daraus, daß bei einer Verminderung des Abschälverhältnisses durch Verkleinerung des Abstandes  $d$  nur noch solche Teilchen in das Mantelgas gelangen, die eine besonders hohe Querkomponente der Geschwindigkeit besitzen. Durch Abschneiden des oberen Bereiches der Geschwindigkeitsverteilungen verschieden schwerer Komponenten ergibt sich bekanntlich in dem anfallenden Gas eine um so größere Verschiebung des Mischungsverhältnisses, je höher die untere Grenze des abgeschnittenen Bereiches gewählt wird.

## 2. Die relative Massendifferenz

Die Abhängigkeit der Entmischung von der relativen Massendifferenz konnte in einfacher Weise mit natürlichem Xenon<sup>10</sup> untersucht werden, das sieben Isotope mit einer Häufigkeit über 1% im Atomgewichtsbereich 128–136 besitzt. Um eine gut meßbare Konzentrationsverschiebung der Komponenten zu erhalten, wurde mit einem Abschälverhältnis  $\vartheta = 0,04$  gearbeitet, das sich mit der gleichen Anordnung wie bei dem entsprechenden Argonversuch realisieren ließ (Tab. 2, Düse c). Die Analysen wurden wieder mit dem C.E.C.-Massenspektrometer durchgeführt.

Das Ergebnis ist in Abb. 8 graphisch dargestellt, wobei alle Kombinationen der erwähnten sieben Isotope berücksichtigt wurden. Die insgesamt 21 Meßpunkte ordnen sich gut um eine Gerade, deren Steigung einer Verschiebung  $\varepsilon_A = 1,17\%$  pro 1% relativer Massendifferenz entspricht. Dies stimmt innerhalb der Fehlergrenze mit dem bei Argon für gleiches Abschälverhältnis erzielten Resultat überein.

## Gesichtspunkte für die praktische Isotopen trennung

Zur Erzielung eines ausreichenden Gesamtanreicherungsfaktors muß für die praktische Isotopen trennung, wie beim Hertz'schen Verfahren<sup>2</sup>, eine größere Zahl von Trennelementen hinterein-

andergeschaltet werden. Zur Verminderung des Gesamtaufwandes läßt sich dabei der Gasdurchsatz der einzelnen Stufen nach bekannten Optimalprinzipien<sup>11</sup> mit steigender Anreicherung progressiv vermindern.

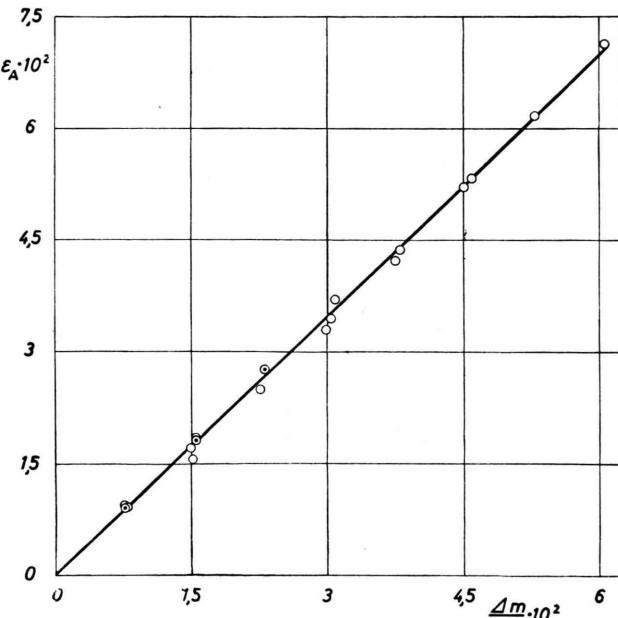


Abb. 8. Abhängigkeit der Größe  $\varepsilon_A$  von der relativen Massendifferenz, gebildet für alle Paare der sieben Xenonisotope mit einer Häufigkeit über 1%. Bei den mit  $\odot$  bezeichneten Meßpunkten fallen zwei Werte innerhalb der Zeichengenauigkeit zusammen.

Da das Kerngas bei Ausnutzung des Rückstaus unter einem wesentlich höheren Druck anfällt als das Mantelgas, wird es zur Einsparung von Pumpkapazität im allgemeinen zweckmäßig sein, das Abschälverhältnis  $\vartheta$  wesentlich kleiner als 0,5 zu wählen. Dem Anstieg von  $\varepsilon_\alpha$  und Abfall von  $\varepsilon_\beta$  entsprechend (Abb. 7) ist in diesem Fall das Mantelgas einer Stufe nicht der Düse der vorhergehenden, sondern der einer weiter zurückliegenden Stufe zuzuführen, wobei nach dem übergeordneten Gesichtspunkt des Optimalprinzips die zu vereinigenden Ströme gleiche Isotopenzusammensetzung besitzen sollen.

Die Betriebsbedingungen der Elemente wird man im allgemeinen so einstellen, daß bei vorgegebenem  $\vartheta$  ein möglichst hohes  $\varepsilon_\alpha$  erzielt wird. Da-

<sup>10</sup> Für die Lieferung des Xenons sind wir der Firma Linde, Höllriegelskreuth, zu Dank verpflichtet.

<sup>11</sup> Vgl. z.B. K. Cohen, The Theory of Isotope Se-

paration as Applied to the Large Scale Production of U<sup>235</sup>, New York 1951, McGraw Hill Book Comp.; M. Benedict in: Kirk-Othmer Bd. 5, S. 76/133.

bei ist jedoch zu berücksichtigen, daß der Gesamtaufwand einer Anlage bei vorgegebener Menge und Konzentration des Produktes wesentlich von den Ansaugdrucken  $p_F$  und  $p_G$  sowie von den Kompressionsverhältnissen  $p_B/p_F$  und  $p_B/p_G$  abhängt. Für eine vollständige Optimalrechnung ist daher eine genaue Kenntnis der zu verwendenden Pumpen erforderlich.

Die Bestimmung der Isotopenhäufigkeiten mit dem C.E.C.-Massenspektrometer wurde von Herrn Dipl.-Phys. W. Beyrich durchgeführt. Bei einem Teil der Versuche hat uns Herr Dipl.-Phys. F. Zigan geholfen. Herrn Prof. Dr. W. Walcher danken wir für das der Arbeit entgegengebrachte Interesse. Der Deutschen Forschungsgemeinschaft sind wir für Sachbeihilfen zu Dank verpflichtet.

## Über die schweren Kerne in der primären kosmischen Strahlung

Von H. FAY

Aus dem Max-Planck-Institut für Physik, Göttingen

(Z. Naturforschg. **10a**, 572—581 [1955]; eingegangen am 28. Mai 1955)

The present paper describes the results of an investigation on heavy nuclei ( $Z > 2$ ) of the primary cosmic radiation. The measurements were made in 40 stripped emulsions flown over Sardinia ( $\lambda \sim 40^\circ$ ) in a height of about 27 km for 7 hours. The energy of the nuclei was deduced from their multiple Coulomb scattering, and, if they fragmentated, from the opening angles of their secondary products. For the determination of the charge number  $Z$  the measurement of the  $\delta$ -ray density was sufficient, all particles having energies/nucleon  $\geq 1,3$  GeV. The result is thus independent of possible influences of spurious scattering.

The charge spectrum under an average of  $32 \text{ g/cm}^2$  of residual material shows that the number of nuclei with  $3 \leq Z \leq 5$  is approximately equal to that of nuclei with  $6 \leq Z \leq 9$ . This is in agreement with the charge spectrum found by Dainton, Fowler, and Kent, but at variance with the results of Bradt and Peters. The magnitude of the correction to be applied for the scanning loss of Li-nuclei is discussed. The correction factor used by Dainton et al. appears to be too high. With regard to the influence of the residual material it is shown that the calculated intensity of the Li-, Be-, and B-nuclei at the top of the atmosphere will be strongly affected by the uncertainty of the probabilities  $p_k^i$  for fragmentation. The fragmentation probabilities found in this work are in good agreement with those obtained by Bradt and Peters and by Gottstein, they are, however, somewhat smaller than those measured by Noon, Kaplon, and Ritson. The values of the mean free paths in emulsion can be represented by a formula for the cross-sections given by Peters et al.

The energy spectrum agrees with that deduced by Kaplon et al. from measurements of the latitude-effect. It was found that because of spurious scattering cell lengths of at least 4 mm are required in order to measure energies  $> 4 \text{ GeV/nucleon}$ . A spectrum similar to that found by Dainton et al. is obtained, if one confines the scattering measurements on cells which are not long enough. The flux of nuclei  $Z \geq 6$  at the top of the atmosphere is somewhat smaller than measured by other authors at  $\lambda = 41^\circ$ .

Die Untersuchung des Ladungsspektrums der schweren Kerne ( $Z \geq 3$ ) in der primären kosmischen Strahlung wird dadurch erschwert, daß die einfallenden Kerne in der Restatmosphäre zu einem gewissen Teil durch Kernstöße in leichtere Restkerne aufgespalten werden. Will man daher die am Meßort erhaltenen Ergebnisse auf den Gipfel der Atmosphäre extrapolieren, so benötigt man dazu die Werte der mittleren freien Weglängen  $L_i$  der Kernsorte  $i$  in Luft und der Wahrscheinlichkeiten  $p_k^i$ , mit denen beim Stoß eines Kernes der Sorte  $k$  ein Restkern der Sorte  $i$  entsteht. Da die leichten Kerne Li, Be, B häufig als Restkerne auftreten, ist bei der Bestimmung ihrer primären Häufigkeit eine entsprechende Korrektur von entschei-

dender Bedeutung. Die Werte der  $p_k^i$  in Luft sind heute jedoch noch nicht genügend genau bekannt, so daß die extrapolierten Flußwerte unsicher bleiben.

Aber selbst die Ergebnisse der direkten Messungen unter  $15-20 \text{ g/cm}^2$  Restatmosphäre sind nicht bei allen Autoren in Übereinstimmung. So fanden Bradt und Peters<sup>1</sup> einen Fluß der Li-, Be- und B-Kerne, der wesentlich kleiner ( $< 20\%$ ) als der der C-, N-, O-, F-Kerne war und der vollständig erklärt werden konnte als herrührend aus Aufspaltungen schwererer Kerne in der Restatmosphäre.

<sup>1</sup> H. L. Bradt u. B. Peters, Phys. Rev. **80**, 943 [1950].