

Man sieht deutlich, daß jedes einzelne Partikelchen durch die Wasserzumischung eine geringere Aufladung zeigt als bei den vorhergehenden Versuchen. Aus einer Fülle von Einzelversuchen ergab sich, daß gerade bei einer Zumischung um 1 Gew.-% ein Umschlag der Auf-

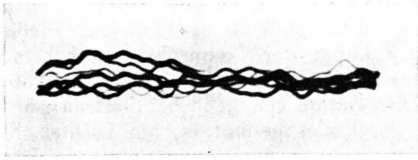


Abb. 2. Oszillogramm der elektrischen Aufladungserscheinungen und der vorbeifliegenden geladenen  $\text{CO}_2$ -Schneepartikelchen bei  $\text{CO}_2$  mit ca. 1 Gewichts-%  $\text{H}_2\text{O}$ .

ladung des  $\text{CO}_2$ -Schnees von minus nach plus erfolgt, so daß die Aufladung bei einigen Versuchen um einen Faktor 1000 kleiner war als bei trockenem  $\text{CO}_2$ . Mit steigendem Wassergehalt steigt die Aufladung wieder

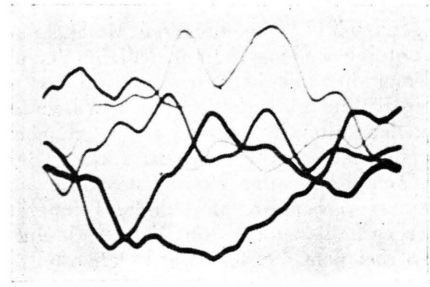


Abb. 3. Oszillogramm der elektrischen Aufladungserscheinungen und der vorbeifliegenden geladenen  $\text{CO}_2$ -Schneepartikelchen bei einem Wasserzusatz zu  $\text{CO}_2$  von mehr als 1 Gew.-%.

an, wobei der Schnee nun positiv geladen ist, bis sie diejenige der trockenen Kohlensäure an absoluter Größe bei weitem übertrifft (um einen Faktor 10 bis 100), s. Abb. 3.

## Das Verhalten von Schwefeldioxyd im Trennrohr

Von K. CLUSIUS und H. U. HOSTETTLER

Physikalisch-Chemisches Institut der Universität Zürich

(Z. Naturforsch. **12 a**, 83–84 [1957]; eingegangen am 3. Dezember 1956)

Kürzlich erschien eine Arbeit von WULLKOPF über die charakteristischen Konstanten des Schwefeldioxyds im Trennrohr<sup>1</sup>. Wir haben uns gleichfalls mit dieser Frage befaßt und möchten einige Überlegungen und Ergebnisse mitteilen, die wir dabei erhalten haben. Es wurde eine 10 m lange Trennanlage von 0,85 cm Rohrdurchmesser benutzt, die mit Heizdrähten aus Platin-Iridium von 0,04 cm Durchmesser ausgerüstet war. Die Analysen wurden massenspektroskopisch durch Intensitätsvergleich der  $^{34}\text{SO}$ - mit der  $^{32}\text{SO}$ -Spitze vorgenommen.

1. Von allen für die Anreicherung der schweren Schwefelisotope in Frage kommenden Verbindungen bietet Schwefeldioxyd den Vorteil großer thermischer Beständigkeit. Dafür hat es den Nachteil der relativ hohen kritischen Temperatur  $T_k$  von  $430^\circ\text{K}$ . Legt man das LENNARD-JONESSCHE Molekülmodell zugrunde, so zeigt sich, daß der Thermodiffusionsfaktor  $\alpha$  erst bei Temperaturen zwischen  $T_k$  und  $1,5 T_k$  positive Werte annimmt. Die Lage dieser Nullstelle hängt von den speziellen Indizes für das Kraftgesetz der molekularen Wechselwirkung ab und ist noch nicht genauer bekannt. Jedenfalls muß man erwarten, daß  $\alpha$  unterhalb von  $160^\circ\text{C}$  negativ ist.

Nun wird in der Theorie des Trennrohrs gewöhnlich angenommen, daß  $\alpha$  lediglich positive Werte hat und daß seine Temperaturabhängigkeit durch Einsetzen eines Mittelwerts ausreichend berücksichtigt werden kann. Genau so verfährt man mit den anderen Transportgrößen, wie der Zähigkeit, der Diffusion und Wärmeleitung. Bei letzteren liefert eine solche Mittelwertbil-

dung wohl stets brauchbare Näherungen. Beim Thermodiffusionsfaktor hat man jedoch zu berücksichtigen, daß der Trennrohreffekt weitgehend vernichtet wird, wenn die Nullstelle von  $\alpha$  geometrisch in die Nähe der Nullstelle für die Konvektion im Trennrohrspalt fällt. Unter bestimmten Temperaturverhältnissen sind sogar Umkehr-effekte möglich, bei denen die schweren Molekeln am Kopf der Trennanlage angereichert werden statt am Fuß.

Dies wurde beim Wasserdampf<sup>2</sup> gefunden und jetzt auch am Schwefeldioxyd beobachtet (Versuch 1, Tab. 1).

Versuch	Temperatur der kalten Wand $^\circ\text{C}$	Temperatur des Heizdrahtes $^\circ\text{C}$	Oberes Ende ‰ $^{34}\text{S}$	Unteres Ende ‰ $^{34}\text{S}$	Trennfaktor $Q$
1	$15^\circ$	$700^\circ$	4,71	4,23	0,89
2	$15^\circ$	$900^\circ$	4,47	4,71	1,06
3	$80^\circ$	$900^\circ$	4,01	5,06	1,28
4	$90^\circ$	$1100^\circ$	3,48	6,15	1,82

Tab. 1. Trennversuche an  $\text{SO}_2$  von 0,73 Atm. in einer 10 m langen Trennrohranlage.

Die Inversion ist nicht sehr groß, doch braucht dieser Umstand nicht zu bedeuten, daß auch die negativen  $\alpha$ -Werte geringfügig sind. Eher ist das Gegenteil der Fall, wenn man beachtet, daß im drahtgeheizten Trennrohr sich die Größe des Temperaturgradienten annähernd umgekehrt proportional zum Abstand vom Heizdraht verhält. Dadurch bekommt das Vorzeichen der Thermodiffusion im aufsteigenden, heißen Gasstrom gegenüber dem im kalten, absinkenden einen überwiegenden Einfluß. Deshalb genügt auch die relativ geringfügige Tem-

<sup>1</sup> H. WULLKOPF, Z. Phys. **146**, 389 [1956].

<sup>2</sup> R. H. DAVIES u. J. T. KENDALL, Nature, Lond. **165**, 487 [1950].

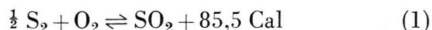


peratursteigerung von 700° C auf 900° C, um den normalen Trenneffekt — die schweren Molekeln sammeln sich am unteren Ende — hervorzurufen (Versuch 2).

Die Vorzeichenumkehr von  $\alpha$  veranlaßte uns, an Stelle der Kühlung durch fließendes Wasser eine Erwärmung der kalten Trennrohrwand vorzunehmen, um der Inversionstemperatur näher zu rücken. Bei unveränderter Temperatur der Heizdrähte sollte sich dann die Trennung verbessern, obwohl die Temperaturdifferenz zwischen heißer und kalter Wand verkleinert wird. Versuch 3, bei dem das Kühlwasser abgestellt war, so daß es sich im Laufe von 4 Stunden auf 80° C erwärmte, bestätigt diese Erwartung; der Trennfaktor ist in dieser kurzen Zeit erheblich gestiegen. Eine nochmalige Steigerung der Drahttemperatur auf 1100° C (Versuch 4) hatte eine weitere Erhöhung zur Folge.

Eine Abschätzung des integralen Thermodiffusionsfaktors  $\alpha$  aus dem 4. Versuch ergibt  $\alpha = 0,53 \cdot 10^{-3}$  ( $0,22 \cdot 10^{-3}$ ); eine Anlage von 75 m (180 m) Länge sollte 80-proz.  $^{34}\text{S}$  liefern; die Leistungsaufnahme würde 7,2 kW (15 kW) betragen (eingeklammert die von WULLKOPF erhaltenen Werte). Wahrscheinlich ist damit noch nicht das Optimum erreicht, weil die Temperatur der „kalten“ Wand immer noch erheblich unter der vermuteten Inversionstemperatur von  $\alpha$  liegt. Eine weitere Steigerung ließe sich durch Füllung des Kühlmantels mit Öl oder einer hochsiedenden Salzlösung erzielen, nötigenfalls unter gleichzeitiger Wärmeisolation der Rohrmäntel.

2. Bei Drahttemperaturen von 1100° C zeigt sich nach einiger Zeit an den kalten Stellen der unteren Rohrenden eine deutliche Schwefelabscheidung. Obwohl bei dieser Temperatur in Schwefeldioxyd von 0,73 Atm. Druck die Reaktion



erst einen Dissoziationsgrad von  $3 \cdot 10^{-5} \%$  erreicht, muß der abgeschiedene Schwefel doch aus diesem Gleichgewicht stammen. Dank der katalytischen Wirksamkeit des heißen Platindrahts wird das Zersetzungsgleichgewicht schnell eingestellt, andererseits wird der gebildete Sauerstoff durch Thermodiffusion rasch aus dem Gleichgewicht entfernt.

<sup>3</sup> K. CLUSIUS, S.B. Bayer. Akad. 1956, S. 155.

## Die Winkelkorrelationen der 199 keV – 110 keV- und 178 keV – 131 keV- $\gamma$ - $\gamma$ -Kaskaden im $\gamma$ -Spektrum des $^{169}\text{Tm}$

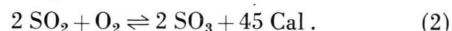
Von U. CAPPELLER und R. KLINGELHÖFER

Physikalisches Institut der Universität Marburg/Lahn  
(Z. Naturforsch. 12 a, 84–85 [1957]; eingegangen am 23. Dezember 1956)

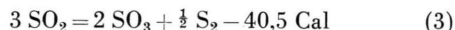
Der Zerfall des  $^{169}\text{Yb}$  ist in den letzten Jahren mehrfach untersucht worden<sup>1–9</sup>. Das auf Grund dieser Un-

Dieser Schwierigkeit glauben wir mit einer entsprechenden Maßnahme begegnen zu können, wie sie inzwischen bei der Trennung der Bromisotope in Form des zersetzlichen Bromwasserstoffs zum Erfolg geführt hat<sup>3</sup>. Durch kontinuierliche Zugabe von Sauerstoff am schweren Ende der Anlage und Abscheidung der gleichen Menge Sauerstoff am leichten Ende ließe sich in der ganzen Länge der Trennrohre ein konstanter Gehalt von einigen Prozent Sauerstoff aufrechterhalten, der die Dissoziation genügend herabsetzen würde.

Günstigen Falles genügt es, am leichten Ende der Trennanlage eine gewisse Sauerstoffmenge vorzugeben, durch die sich dann an den Drähten eine bestimmte Schwefeltrioxyd-Konzentration einstellen und über die ganze Trennanlage verbreiten würde:



Der aus den Gln. (1) und (2) folgende Zerfall des Dioxids



könnte auch auf diesem Wege wirksam unterdrückt werden.

3. Ob sich die negativen  $\alpha$ -Werte hier und in ähnlich gelagerten Fällen für Trennzwecke nutzbar machen lassen, müssen weitere Untersuchungen zeigen. Erwägenswert scheint es, in diesem Temperaturbereich auf einen schon früher geäußerten Vorschlag zurückzugreifen und die Thermodiffusion in einem zweiphasigen System wirken zu lassen<sup>4</sup>. Dazu würde man flüssiges Schwefeldioxyd am unteren Ende der Anlage verdampfen, im Trennrohr gasförmig unter gleichzeitiger Wirkung eines Temperaturgradienten aufsteigen lassen, am Kopf der Anlage wieder kondensieren und als Flüssigkeitsfilm an der gekühlten Rohrwand in den Verdampfer zurückführen. Man gewinnt bei dieser Arbeitsweise einen neuen Freiheitsgrad insofern, als die umlaufende Substanzmenge innerhalb weiter Grenzen variiert werden kann, ohne die Abmessungen der Anlage und den Arbeitsdruck ändern zu müssen.

Die Versuche werden in den angedeuteten Richtungen fortgesetzt.

<sup>4</sup> K. CLUSIUS u. G. DICKEL, Z. Phys. Chem. (B) 44, 450 [1939].

tersuchungen vorgeschlagene Termschema (Abb. 1) des Folgekerns  $^{169}\text{Tm}$  stützt sich wesentlich auf die Beobachtung zweier  $\gamma$ - $\gamma$ -Kaskaden (199 keV – 110 keV und 178 keV – 131 keV), deren Einzelkomponenten im  $\gamma$ -Spektrum des  $^{169}\text{Tm}$  besonders intensiv hervortreten. Den an den Kaskaden beteiligten Niveaus (8 keV, 118 keV, 139 keV und 317 keV) können in Anlehnung an das Kollektivmodell von BOHR-MOTTelson und gestützt auf die gemessenen Konversionskoeffizienten die in Abb. 1 angegebenen Drehimpuls- und Paritäten zugeordnet werden.

<sup>1</sup> S. DeBENEDETTI u. F. K. McGOWAN, Phys. Rev. 74, 728 [1948].

<sup>2</sup> J. M. CORK, H. B. KELLER, W. C. RUTLEDGE u. A. E. STODARD, Phys. Rev. 78, 95 [1950].