

# Das Trenndüsenverfahren

## III. Entmischung der Uranisotope

Von E. W. BECKER und R. SCHÜTTE

Kernforschungszentrum Karlsruhe, Institut für Kernverfahrenstechnik  
(Z. Naturforsch. 15 a, 336—347 [1960]; eingegangen am 25. Februar 1960)

Mit einer einstufigen Trenndüsenanordnung wird die Entmischung der Uranisotope im  $UF_6$  in Abhängigkeit vom Einlaßdruck, vom vorderen und hinteren Gegendruck, von der Einlaßtemperatur und von der Geometrie des Trennsystems bestimmt. Mit den experimentellen Ergebnissen werden die optimalen Betriebsbedingungen und die spezifischen Aufwandsgrößen des Trenndüsenverfahrens für den Fall der Uranisotope ermittelt. Es zeigt sich, daß die spezifische ideale isotherme Kompressionsarbeit beim Trenndüsenverfahren in derselben Größenordnung wie beim Diffusionsverfahren liegt. Als schwächster Punkt des Trenndüsenverfahrens erweist sich das große spezifische Ansaugvolumen, das verhältnismäßig hohe Investierungen für die Kompressoren und Rohrleitungen bedingt.

In zwei früheren Arbeiten<sup>1, 2</sup> wurde ein neues Gas- und Isotopen trennverfahren beschrieben, das auf der teilweisen räumlichen Entmischung verschieden schwerer Gase in einer expandierenden Überschallströmung beruht. Die Entwicklung wurde hauptsächlich mit dem natürlichen Gemisch der Argonisotope durchgeführt, dessen Häufigkeitsverhältnis sich massenspektrometrisch besonders schnell und genau bestimmen läßt.

Da das Verfahren vor allem für die Anreicherung des in der Kerntechnik benötigten Uranisotops  $U^{235}$  interessiert, wurden die Versuche in der Zwischenzeit auf Uranhexafluorid ausgedehnt. Über das Ergebnis dieser Untersuchungen wird im folgenden berichtet<sup>3</sup>.

### Die verwendeten Bezeichnungen

Um das Lesen der Arbeit zu erleichtern, sollen die in den früheren Veröffentlichungen eingeführten Bezeichnungen nochmals kurz zusammenge stellt werden:

Das Isotopen gemisch durchläuft eine konvergente Düse mit der Stromstärke  $L$ . Ein Abschäler zerlegt den austretenden Strahl in einen Mantelgasstrom  $\vartheta L$  und einen Kerngasstrom  $(1-\vartheta) L$ . Die Größe  $\vartheta$  wird *Abschälverhältnis* genannt. In den Räumen vor bzw. hinter dem Abschäler herrschen die Drucke  $p_F$  bzw.  $p_G$ . Mit  $p_B$  wird der Ruhedruck des Gases in der Zuleitung zur Düse bezeichnet, mit  $n_0$  der Molenbruch der leichten Komponente im Ausgangsgas. Aus den entsprechenden Molenbrüchen  $n_M$  und  $n_K$  im Mantel- bzw. Kerngas ergibt sich der Trennfaktor  $A = n_M(1-n_K)/n_K(1-n_M)$  und der *Elementareffekt der Trennung*  $\varepsilon_A = A - 1$ . Die untersuchten spezifischen Aufwandsgrößen sind definiert durch:

Spezifisches Ansaugvolumen:

$$V_s = \frac{2 R T}{\varepsilon_A^2 \vartheta (1-\vartheta)} \left\{ \frac{\vartheta}{p_F} + \frac{(1-\vartheta)}{p_G} \right\}, \quad (1)$$

Spezifische ideale isotherme Kompressionsarbeit:

$$E_s = \frac{2 R T}{\varepsilon_A^2 \vartheta (1-\vartheta)} \left\{ \vartheta \ln \frac{p_B}{p_F} + (1-\vartheta) \ln \frac{p_B}{p_G} \right\}, \quad (2)$$

Spezifische Schlitzlänge:

$$l_s = \frac{2}{\varepsilon_A^2 \vartheta (1-\vartheta)} \frac{\text{Schlitzlänge}}{L}. \quad (3)$$

### Die Apparatur

Wegen der korrodierenden Eigenschaften des  $UF_6$  (s. Anm.<sup>4</sup>) wurden die Anreicherungsversuche in einer ausheizbaren Apparatur aus V2A-Stahl mit stopfbuchsenlosen Ventilen ausgeführt<sup>5</sup>. Ihr Aufbau und die Versuchstechnik sollen an Hand der schematischen Darstellung Abb. 1 erläutert werden.

Das Trennsystem S besteht aus einer 15 mm langen Schlitzdüse und einem ebenso langen Abschäler, die im gewünschten Abstand zu einer mechanisch starren Einheit zusammengebaut sind. Das System wird als

<sup>1</sup> Die Trenndüse. Ein neues Element zur Gas- und Isotopen trennung, E. W. BECKER, K. BIER u. H. BURGHOFF, Z. Naturforsch. 10 a, 565 [1955]. Im folgenden mit I bezeichnet.

<sup>2</sup> Das Trenndüsenverfahren II. Die physikalischen Grundlagen des Trenneffektes und die spezifischen Aufwandsgrößen des Verfahrens, E. W. BECKER, W. BEYRICH, K. BIER, H. BURGHOFF u. F. ZIGAN, Z. Naturforsch. 12 a, 609 [1957]. Im folgenden mit II bezeichnet.

<sup>3</sup> Ein Teil der Ergebnisse wurde bereits auf der 2. Genfer Konferenz über die friedliche Verwendung der Atomennergie mitgeteilt. E. W. BECKER, K. BIER, H. BURGHOFF, O. HAGENA,

P. LOHSE, R. SCHÜTTE, P. TUROWSKI u. F. ZIGAN, Proc. 2nd U.N. Intern. Conf. on the Peaceful Uses of Atomic Energy, Vol. 4, S. 455—457 [1958]. Wegen der ersten Versuche mit  $UF_6$  vgl. E. W. BECKER u. R. SCHÜTTE, Z. Naturforsch. 11 a, 679 [1956].

<sup>4</sup> Vgl. z. B. J. J. KATZ u. E. RABINOWITCH, The Chemistry of Uranium, McGraw-Hill, New York 1951.

<sup>5</sup> Die Apparatur wurde von der Fa. E. Leybold's Nachf. gebaut. Wir danken der Firma für die ausgezeichnete konstruktive Durchbildung.



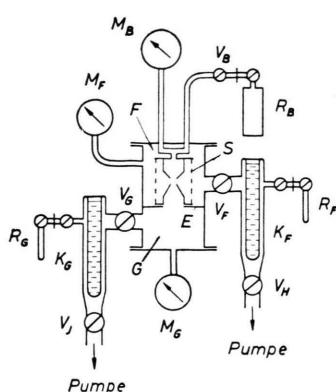


Abb. 1. Schema der Trennapparatur.

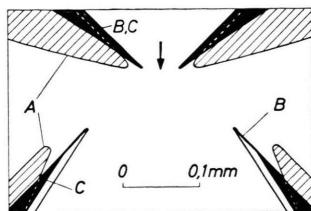


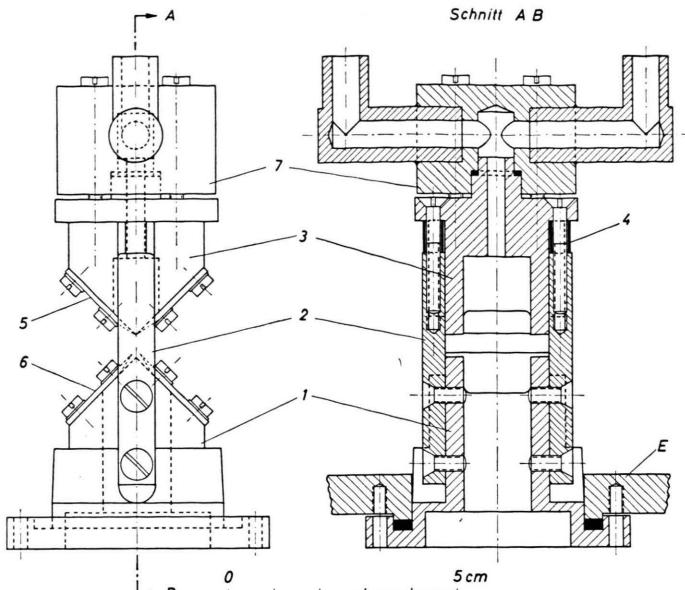
Abb. 3. Querschnitt durch die Mündungen von Düse und Abschäler bei den Geometrien A, B und C. Für die Geometrien B und C, bei denen sich die Düsenweiten nur wenig unterscheiden, wurde der Mittelwert der Düsenweiten eingezeichnet.

Ganzes auf die Zwischenwand E der Trennkammer aufgesetzt. Der  $UF_6$ -Vorratsbehälter  $R_B$  und das mechanische Membran-Manometer  $M_B$  sind mit der Düse durch Tombakschläuche verbunden. Der Druck  $p_B$  vor der Düse wird mit dem Nadelventil  $V_B$  geregelt. Die Räume F und G der Trennkammer sind über die Ventile  $V_F$  und  $V_G$  an die mit flüssiger Luft gekühlten Ausfrierfallen  $K_F$  und  $K_G$  angeschlossen, auf denen die beiden Fraktionen des  $UF_6$  aufgefangen werden <sup>7</sup>. Mit diesen Ventilen werden die Drücke im Mantelgasraum F und im Kergasraum G eingestellt. Die Drücke  $p_F$  und  $p_G$  werden mit den Hochfrequenz-Membranmanometern  $M_F$  und  $M_G$  gemessen <sup>8</sup>. Die gesamte Apparatur kann mit zwei Quecksilber-Diffusionspumpen (Leybold Hg 12) über vorgeschaltete, mit flüssiger Luft gekühlte Quecksilberfallen evakuiert werden. Trennkammer, Ventile und Ausfrierfallen sind außen mit Ringheizkörpern versehen, die eine Ausheizung unter Hochvakuum bei  $100-150^\circ C$  gestatten. Die aus Kupferrohr bestehenden Anschlußleitungen der Druckmeßgeräte und der  $UF_6$ -Behälter werden mit einer Gasflamme ausgeheizt.

<sup>6</sup> Heraeus-Membran-Vakuummeter VM-M. Wir danken der Firma Heraeus für die Überlassung einer korrosionsgeschützten Ausführung dieses Gerätes.

<sup>7</sup> Beim Siedepunkt der flüssigen Luft ist der Dampfdruck des  $UF_6$  nicht mehr meßbar.

<sup>8</sup>  $M_F$  und  $M_G$  sind korrosionsfeste Ausführungen des von E. W. BECKER u. O. STEHL, Z. Angew. Phys. 4, 20 [1952]

Abb. 2. Das Trennsystem. Der Abschälerkörper 1 ist über die Führungsschienen 2 mit dem Düsenkörper 3 verbunden. Durch Distanzstücke 4 wird der Abstand zwischen Düse und Abschäler festgelegt. Die Weiten des Düsen- bzw. Abschälerschlitzes können durch Verschieben der aufgeschräbten Düsenbleche 5 und Abschälerbleche 6 variiert werden. Nachdem das System in den Zwischenboden E der Trennkammer eingesetzt worden ist, wird die Düse über das Verbindungsstück 7 an die  $UF_6$ -Zuführung und die Manometerleitung angeschlossen.

Alle lösbareren Verbindungen werden durch in Nuten liegende Teflon-Ringe gegen eine in die Nut greifende Feder gedichtet. Die Einzelheiten des Trennsystems S gehen aus Abb. 2 hervor.

Vor dem Zusammenbau werden alle Teile der Apparatur sorgfältig gereinigt und entfettet. Nach mehrstündigem Ausheizen und Evakuieren wird die gesamte Apparatur während 12-15 Stunden mit Chlortrifluorid ( $ClF_3$ ) unter einem Druck von etwa 50 Torr behandelt. Dadurch werden letzte Spuren von Feuchtigkeit und von organischen Rückständen beseitigt und die Oberflächen der Apparatur in gewissem Maße gegen  $UF_6$  passiviert. Die Gesamtundichtigkeit der Apparatur war kleiner als  $2 \cdot 10^{-6} \text{ Torr} \cdot l \cdot sec^{-1}$ .

Während der Anreicherungsversuche werden die zu den Pumpen führenden Ventile  $V_J$  und  $V_H$  geschlossen. Das auf den Kühlfallen  $K_F$  und  $K_G$  aufgefangene  $UF_6$  wird nach Beendigung des Versuchs und Schließen der Ventile  $V_F$  und  $V_G$  aufgetaut und in die zuvor evakuierten und mit flüssiger Luft eingekühlten Probenbehälter  $R_F$  und  $R_G$  übergefroren. Um die vollständige Über-

beschriebenen Manometers. An Stelle des dort angegebenen Differentialkondensators wird ein einfacher Kondensator mit Vergleichsvakuum ( $< 10^{-3}$  Torr) verwendet. Mit einer  $50 \mu$  starken Silbermembran beträgt die maximale Empfindlichkeit  $10^{-3}$  Torr/Skt. Der Gesamtmeßbereich beträgt etwa 6 Torr.

führung der Proben sicherzustellen, wird nach der mutmaßlichen Beendigung des Überfrierens das Ventil der jeweiligen Kühlzelle zur Kammer geöffnet und der Restdruck mit den Druckmeßgeräten kontrolliert.

Der Gasdurchsatz der Düse L und das Abschälerverhältnis  $\vartheta$  können bei einem Gesamtdurchsatz von 2 bis 15 g  $UF_6$  je Versuch mit ausreichender Genauigkeit durch Wiegen der Probenbehälter bestimmt werden. Je nach der verwendeten Düsenweite und dem gewählten Einlaßdruck  $p_B$  liegt die Versuchsdauer zwischen 5 und 60 Minuten. Sie wurde stets so lang gewählt, daß die durch Einstellvorgänge verursachten Störungen vernachlässigbar blieben. Normalerweise konnte der Einlaßdruck  $p_B$  innerhalb von 10–20 sec auf den Sollwert eingeregelt werden. Für eine genaue Einstellung der Gegendrücke  $p_F$  und  $p_G$  wurden dagegen im allgemeinen 30–45 sec benötigt.

Das zur Messung des Druckes  $p_B$  verwendete Membran-Manometer besitzt im untersuchten Druckbereich von 1–50 Torr eine annähernd logarithmisch geteilte Skala. Für die Einstellung von  $p_B$  ergab sich daher ein nahezu konstanter Relativfehler, der bei etwa  $\pm 2\%$  lag. Die Angaben für die Gegendrücke  $p_F$  und  $p_G$  dürften mit einer Ungenauigkeit von  $\pm 5\%$  bis  $\pm 10\%$  behaftet sein, die sowohl von der Eichunsicherheit der Druckmeßkondensatoren als auch von Einstellfehlern herrührt. Da die Unsicherheiten bei der Eichung mit fallendem, die Unsicherheiten bei der Einstellung dagegen mit steigendem Druck zunehmen, kann auch hier mit annähernd konstanten Relativfehlern gerechnet werden.

Bei Versuchen unter erhöhter Ausgangstemperatur wird die ganze Trennkammer auf die gewünschte Temperatur gebracht. Der Wärmeübergang in der eingelötenen Gaszuleitung genügt, um das einströmende Gas während des Versuches auf die gewünschte Temperatur aufzuheizen. Die Gastemperatur  $T_B$  wird mit einem in die Manometerleitung eingebauten Thermoelement in etwa 5 cm Abstand von der Düse gemessen und mit einem Kompensationsschreiber registriert. Die Fehlergrenze der Temperaturangabe dürfte etwa  $\pm 2^\circ C$  betragen.

Die Experimente wurden mit 3 auf Grund der Versuche besonders aussichtsreich erscheinenden Kombinationen der geometrischen Parameter des Trenndüsensystems durchgeführt. Die kritischen Abmessungen sind in Tab. 1 zusammengestellt. Abb. 3 zeigt die räumliche Anordnung der Düsen- und Abschälerbleche im Schnitt. Für die Versuchsreihe A wurden vernickelte Stahlbleche verwendet, während für die Reihen B und C besonders scharf zugeschliffene Bleche aus Anoxin zur Verfügung standen.

Bezeichnung der Geometrie	A	B	C
Düsenweite (mm)	0,085	0,045	0,049
Abschälerweite $f$ (mm)	0,29	0,19	0,25
Abstand Düse–Abschäler $d$ (mm)	0,10	0,08	0,11

Tab. 1. Die kritischen Abmessungen bei den 3 Kombinationen der geometrischen Parameter. Die Länge der Schlitzdüse und des Abschälers betrug in allen Fällen 15 mm.

## Die massenspektrometrischen Messungen

Für die Messung der Isotopenhäufigkeiten der  $UF_6$ -Fraktionen stand ein speziell für diese Aufgabe entwickeltes Massenspektrometer zur Verfügung<sup>9</sup>. Das Gerät enthält als besondere Einrichtungen eine ausheizbare Probeneinlaß-Apparatur aus Edelstahl, ein regelbares Ventil in der Gaszuleitung zur Ionenquelle und ein Doppelauffängersystem. Ein vom Doppel-

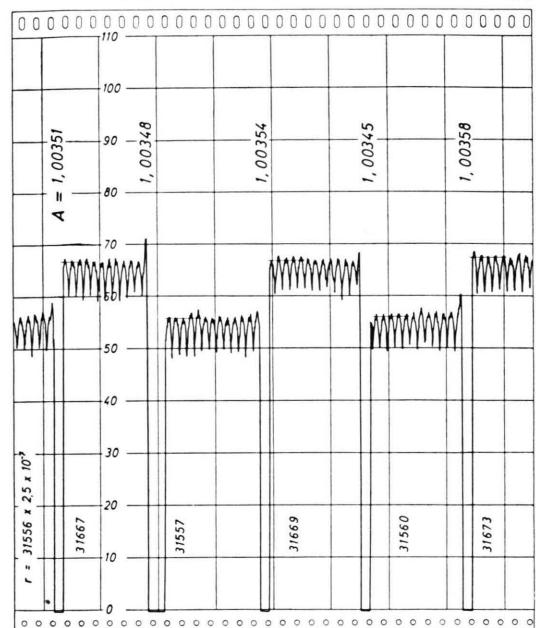


Abb. 4. Registrierung des Häufigkeitsverhältnisses  $r = \frac{(U^{235} F_5)^+}{(U^{238} F_5)^+}$  zweier abwechselnd in das Massenspektrometer eingelassener  $UF_6$ -Proben mit den sich ergebenden Einzelwerten des Trennfaktors A. Der Mittelwert des Elementareffektes der Trennung beträgt  $\varepsilon_A = (3,50 \pm 0,02) \cdot 10^{-3}$ .

auffänger über zwei Verstärker gespeister Streifenblattschreiber registriert unmittelbar das Verhältnis  $r = \frac{(U^{235} F_5)^+}{(U^{238} F_5)^+}$  der durch Elektronenbeschuß erzeugten  $(UF_5)^+$ -Ionen. Bei konstanter Magnetfeldstärke wird der Beschleunigungsspannung eine schwache Sägezahnspannung überlagert, die das Ionenbündelpaar etwa zweimal in der Minute über den Auffängerspalt wandern läßt. Dadurch wird erreicht, daß das als Meßwert benutzte Maximum des Ionenstromverhältnisses mit Sicherheit erfaßt wird.

Vor der Messung werden die an den Einlaßteil des Spektrometers angeschlossenen  $UF_6$ -Proben auf ihre Reinheit geprüft. Dazu werden die Probenbehälter in

<sup>9</sup> Consolidated Electrodynamics Corporation, Pasadena, U.S.A. Typ 21-220 A. Für die Bereitstellung der Mittel zur Beschaffung dieses Gerätes danken wir dem Bundesministerium für Atomkernenergie und Wasserwirtschaft. Die massenspektrometrischen Messungen wurden z. Tl. von den Herren H. Häss und G. SCHÜLER durchgeführt.

einer Kältemischung aus Kohlensäureeis mit Azeton eingekühlt und die Restdrücke über den Proben mit einem PIRANI-Wärmeleitmanometer gemessen. Bei der Temperatur des Kältebades beträgt der Dampfdruck des  $UF_6$  ungefähr  $2 \cdot 10^{-3}$  Torr. Ein höherer Restdruck deutet auf einen Gehalt an Fluorwasserstoff hin, der durch Zersetzung von  $UF_6$  entstanden ist. Ein Probe, deren Restdruck  $5 \cdot 10^{-3}$  Torr übersteigt, wird durch wiederholtes Umkristallisieren und Abpumpen des Restgases solange gereinigt, bis der Dampfdruck im Kältebad diesen Grenzwert nicht mehr überschreitet.

Das Meßgas wird dann unter dem sich bei der Temperatur des Leitungswassers einstellenden Dampfdruck von etwa 50 Torr in die Einlaßleitung des Massenspektrometers expandiert und strömt durch das regelbare Ventil in die Ionisierungskammer der Ionenquelle. Durch geeignete Wahl der Ionenstromstärke sowie der Ionenquellenpotentiale kann erreicht werden, daß bei einer Änderung des Ionenstroms um  $\pm 10\%$  die Änderung des registrierten Isotopenmischungsverhältnisses  $r$  weniger als  $\pm 5 \cdot 10^{-6}$  beträgt. Da eine automatische Regeleinrichtung das Einlaßventil so steuert, daß der vorgegebene Sollwert des Ionenstroms mit einer Regelbreite von  $\pm 0,2\%$  eingehalten wird, sind kleinere Unterschiede im Einlaßdruck der Proben bedeutungslos. In der höchsten Stufe beträgt die Empfindlichkeit des Registriergerätes  $1,1 \cdot 10^{-6} \text{ mm}^{-1}$ . Bei einer Strichbreite von 0,4 mm ist die von Rauschspannungen verursachte Breite der Null-Linie im allgemeinen nicht größer als 2 mm.

Zusammengehörende Proben des Kern- und Mantelgases werden nach einem strengen Zeitplan in ständigem Wechsel 4- bis 6-mal gegeneinander gemessen. Jede Einzelmessung dauert 8 min, davon werden 60 sec für das Zurückfrieren des Meßgases in den Probenbehälter und für das Leerpumpen der Einlaßleitung benötigt. Diese Pumpzeit genügt bei einwandfreier Ionenquelle, um den Ionenstrom unter 2% des Arbeitswertes zu senken. Während der effektiven Meßzeit von 7 min wird das Maximum des Isotopenmischungsverhältnisses etwa 12-mal registriert. Ein typischer Registrierstreifen ist in Abb. 4 wiedergegeben.

Für die Auswertung werden jeweils die letzten 5 Maxima jeder Einzelmessung durch Einzeichnen eines Striches graphisch gemittelt, bei der Ablesung werden Zehnteleinheiten geschätzt. Aus je zwei aufeinanderfolgenden Werten  $r_M$  und  $r_K$  wird der Trennfaktor  $A = r_M/r_K$  errechnet. Für den aus 4 bis 6 Einzelmessungen gebildeten Mittelwert  $\bar{A}$  lag der mittlere quadratische Fehler zwischen  $\pm 2 \cdot 10^{-5}$  und  $\pm 2 \cdot 10^{-4}$ ; im Durchschnitt über 300 ausgeführte Messungen betrug er  $\pm 7 \cdot 10^{-5}$ . Da die beobachteten Trenneffekte meist einige Promille betrugen, lagen die relativen Fehler für  $\varepsilon_A$  im allgemeinen unter  $\pm 5\%$ .

<sup>10</sup> Wegen der theoretischen Beschreibung des Trenndüseneffektes vgl. II sowie die demnächst erscheinende Arbeit von F. ZIGAN.

<sup>11</sup> Die bei dieser Betrachtung benutzte Ähnlichkeitsbeziehung gilt streng nur dann, wenn bei einer Druckänderung alle geometrischen Parameter im gleichen Verhältnis verändert

## Versuche mit niedrigen Gegendrucken

Zunächst wurden mehrere Versuchsreihen bei völlig geöffneten Ventilen  $V_F$  und  $V_G$  (Abb. 1) durchgeführt. Die Gegendrücke  $p_F$  und  $p_G$  lagen dabei so niedrig ( $< 10^{-1}$  Torr), daß sie keinen meßbaren Einfluß auf die Entmischung mehr hatten. Es war daher nicht erforderlich,  $p_F$  und  $p_G$  auf bestimmte Werte einzustellen, was die Versuchstechnik wesentlich vereinfachte.

### a) Zimmertemperatur

Abb. 5 zeigt die Abhängigkeit des Abschälverhältnisses  $\vartheta$  und des Elementareffektes der Trennung  $\varepsilon_A$  vom Einlaßdruck  $p_B$  für die 3 Kombinationen der geometrischen Parameter (vgl. Tab. 1).

Das *Abschälverhältnis* ist bei großen Werten von  $p_B$  nahezu vom Einlaßdruck unabhängig, wie dies für eine isentropische Expansion mit konstantem Adiabatenexponenten zu erwarten ist. Die Abweichungen, die zu kleineren Drucken hin auftreten, dürften mit dem Übergang der gasdynamischen in die molekulare Strömungsform und mit dem steigenden Einfluß der Reibung zusammenhängen.

Der *Elementareffekt der Trennung* durchläuft in allen Fällen ein ausgeprägtes Maximum. Der Abfall bei großen Werten des Einlaßdruckes ist darauf zurückzuführen, daß der entmischende Druckdiffusionsstrom in diesem Bereich vom Absolutdruck weitgehend unabhängig ist, während der Einstrom  $L$  des zu entmischenden Gases mit steigendem Druck zunimmt<sup>10</sup>. Der Abfall bei kleinen Werten von  $p_B$  kann wieder mit dem Übergang der gasdynamischen in die ohne räumliche Trennung verlaufende molekulare Ausströmung erklärt werden. Dieser Übergang wird durch die KNUDSEN-Zahl, d. h. das Verhältnis aus Strahldicke und gaskinetischer freier Weglänge beschrieben. Da die Düsenweite und damit die Strahldicke bei der Geometrie B nur etwa halb so groß wie bei A ist, tritt eine bestimmte Entmischung im Fall B bei einem etwa doppelt so großen Druck wie im Fall A auf<sup>11</sup>.

Bei der Geometrie C liegt das Abschälverhältnis nahezu um einen Faktor 2 höher als bei der mit praktisch gleicher Düsenweite arbeitenden Geome-

werden. Dies ist beim Übergang von der Geometrie A zur Geometrie B nach Tab. 1 aber nicht der Fall. Die Betrachtung dürfte dennoch den Kern der Sache treffen, da die beiden Geometrien etwa dasselbe Abschälverhältnis liefern und Entmischungen, die im Bereich der Grenzentmischung liegen (vgl. II, Abb. 3).

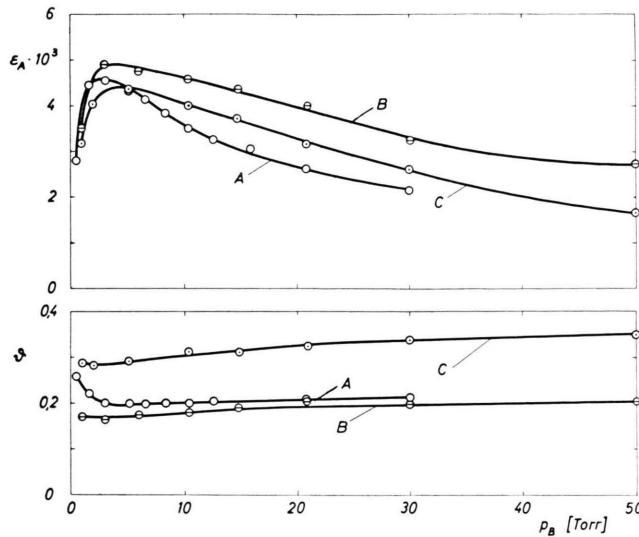


Abb. 5. Der Elementareffekt der Trennung  $\varepsilon_A$  und das Abschälverhältnis  $\vartheta$  in Abhängigkeit vom Einlaßdruck  $p_B$  bei niedrigen Gegendrucken ( $p_F, p_G < 10^{-1}$  Torr) und Zimmertemperatur für die Geometrien A, B und C.

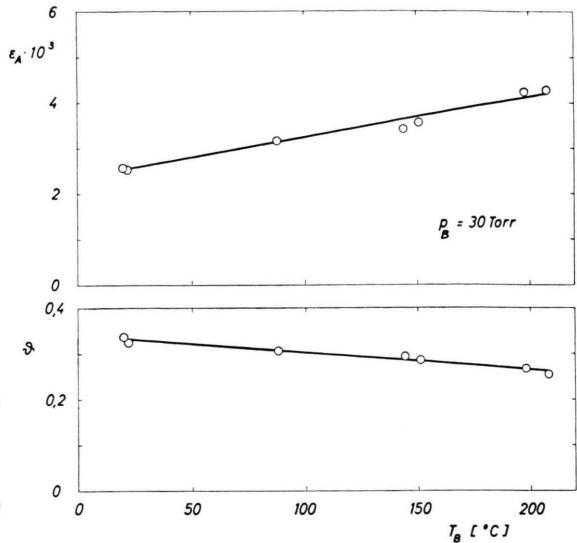


Abb. 6. Der Elementareffekt der Trennung  $\varepsilon_A$  und das Abschälverhältnis  $\vartheta$  in Abhängigkeit von der Einlaßtemperatur  $T_B$  bei einem Einlaßdruck  $p_B = 30,0$  Torr und niedrigen Gegendrucken ( $p_F, p_G < 10^{-1}$  Torr). Geometrie C.

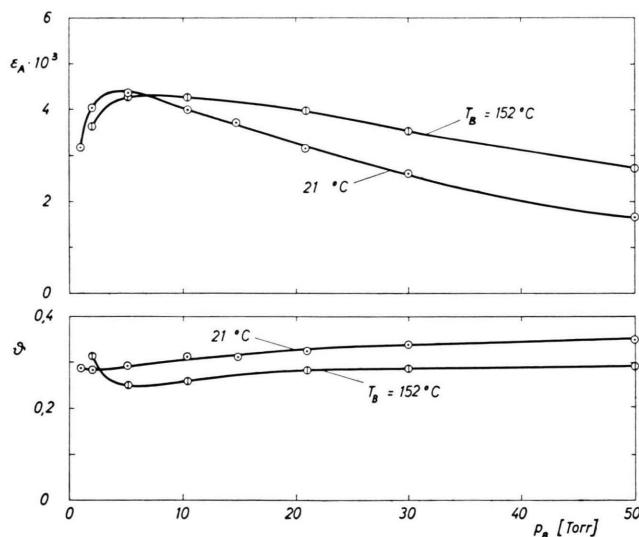


Abb. 7. Der Elementareffekt der Trennung  $\varepsilon_A$  und das Abschälverhältnis  $\vartheta$  in Abhängigkeit vom Einlaßdruck  $p_B$  bei einer Einlaßtemperatur  $T_B = 152$  °C und niedrigen Gegendrucken ( $p_F, p_G < 10^{-1}$  Torr). Geometrie C. Zum Vergleich ist die entsprechende bei Zimmertemperatur gemessene Kurve aus Abb. 5 eingezeichnet.

trie B, obwohl beim Übergang von B auf C die Abschälerweite und der Abstand zwischen Düse und Abschäler etwa im gleichen Verhältnis vergrößert wurden. Dies zeigt, daß die Stromlinien im Bereich zwischen Düse und Abschäler stark nach außen gekrümmmt sind.

Das Verhältnis von Gasdurchsatz  $L$  und Einlaßdruck  $p_B$  war bei allen Geometrien oberhalb von  $p_B = 5$  Torr praktisch konstant. Die Mittelwerte betrugen in diesem Bereich bei Zimmertemperatur:

Geometrie	A	B	C
$L/p_B =$	11,5	6,9	$7,2 \cdot 10^{-3}$ gMol/h Torr.

#### b) Erhöhte Temperatur

Abb. 6 zeigt die Abhängigkeit des Abschälverhältnisses  $\vartheta$  und des Elementareffektes der Trennung  $\varepsilon_A$  von der Einlaßtemperatur  $T_B$  für die Geometrie C bei einem Einlaßdruck von 30 Torr.

Das Abschälverhältnis nimmt zwischen Zimmertemperatur und 210 °C von 0,33 auf 0,26 ab. Der Effekt ist im Rahmen der vorliegenden theoretischen Ansätze nicht zu erklären. Es muß in Erwägung gezogen werden, daß er auf einer Temperaturabhängigkeit der geometrischen Parameter des Trennsystems als Folge der thermischen Ausdehnung beruht. In diesem Temperaturbereich nahm gleichzeitig der normierte Durchsatz  $L/p_B$  innerhalb der Fehlergrenzen linear von  $7,2 \cdot 10^{-3}$  auf  $6,2 \cdot 10^{-3}$  gMol/h Torr ab.

Der Elementareffekt der Trennung steigt im untersuchten Temperaturbereich praktisch linear um den Faktor 1,64 an. Der Effekt kann zum größten

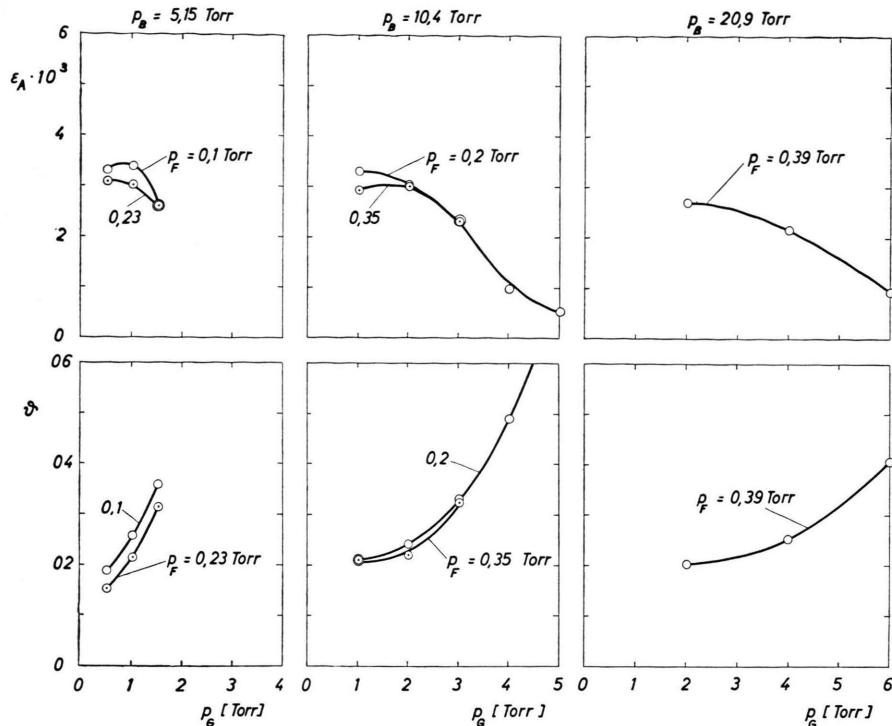


Abb. 8. Der Elementareffekt der Trennung  $\varepsilon_A$  und das Abschälverhältnis  $\vartheta$  in Abhängigkeit vom hinteren Gegendruck  $p_G$ , bei verschiedenen Einlaßdrücken  $p_B$  und vor deren Gegendrucken  $p_F$ . Geometrie A (Zimmer-temperatur).

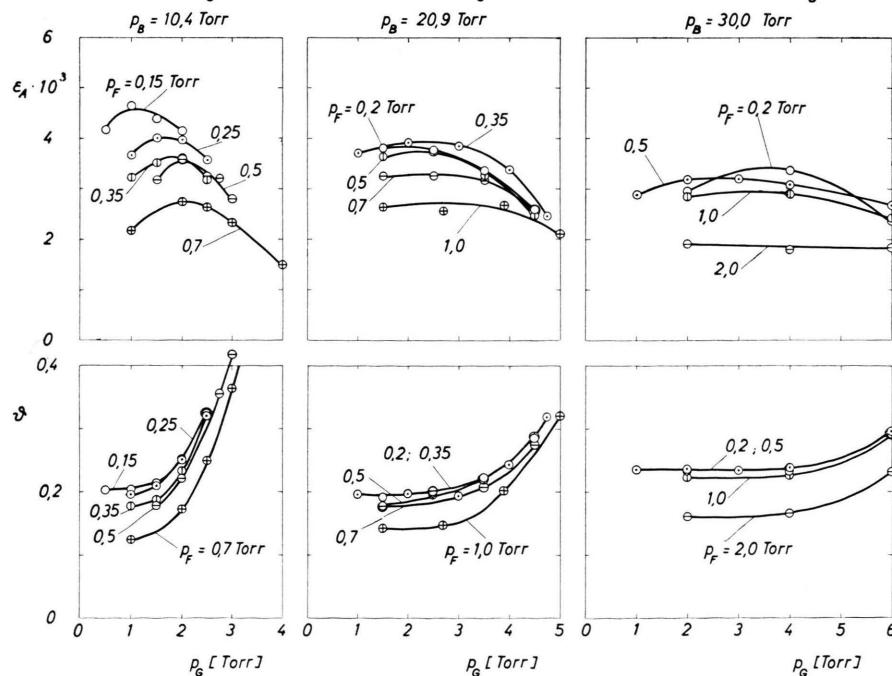


Abb. 9. Der Elementareffekt der Trennung  $\varepsilon_A$  und das Abschälverhältnis  $\vartheta$  in Abhängigkeit vom hinteren Gegendruck  $p_G$ , bei verschiedenen Einlaßdrücken  $p_B$  und vor deren Gegendrucken  $p_F$ . Geometrie B (Zimmer-temperatur).

Teil auf die Verminderung des Abschälverhältnisses zurückgeführt werden, die regelmäßig zu einer Steigerung von  $\varepsilon_A$  führt<sup>12</sup>. Darüber hinaus ist eine positive Temperaturabhängigkeit von  $\varepsilon_A$  zu erwarten,

weil der Einlaßdruck  $p_B$  mit 30 Torr beträchtlich über dem aus Abb. 5 folgenden optimalen Einlaß-

<sup>12</sup> Vgl. z. B. Abb. 7.

druck ( $\approx 5$  Torr) liegt und eine Temperaturerhöhung bezüglich der für die Entmischung maßgeblichen KNUDSEN-Zahl wie eine Verminderung des Druckes wirkt.

Abb. 7 zeigt die Abhängigkeit des Abschälverhältnisses  $\vartheta$  und des Elementareffektes der Trennung  $\varepsilon_A$  vom Einlaßdruck  $p_B$  bei einer Temperatur von  $152^\circ\text{C}$  für die Geometrie C. Zum Vergleich sind die entsprechenden Kurven für Zimmertemperatur aus Abb. 5 mit eingezeichnet. Man bemerkt, daß das Maximum der Entmischung für die höhere Temperatur bei einem größeren Einlaßdruck liegt, wie dies auf Grund der negativen Temperaturabhängigkeit der KNUDSEN-Zahl zu erwarten ist.

### Versuche unter Variation der Gegendrucke

Zur Ermittlung der günstigsten Betriebsbedingungen mußten, neben der Geometrie des Trennsystems, dem Einlaßdruck und der Einlaßtemperatur, auch die Gegendrucke  $p_F$  und  $p_G$  variiert werden. Der erforderliche Variationsbereich ließ sich dabei auf Grund der früheren Versuche mit leichten Isotopen-gemischen in verhältnismäßig engen Grenzen voraussehen. Bei den Geometrien A und B wurden die Versuche bei Zimmertemperatur mit jeweils 3 verschiedenen Einlaßdrucken durchgeführt, wobei besonderes Gewicht auf die Geometrie B gelegt wurde. Bei der Geometrie C wurde mit nur einem Einlaßdruck  $p_B = 20,9$  Torr gearbeitet, dafür aber eine weitere Meßreihe bei  $152^\circ\text{C}$  angeschlossen. Die für das Abschälverhältnis  $\vartheta$  und den Elementareffekt der Trennung  $\varepsilon_A$  erzielten Werte sind in den Abb. 8 bis 10 für verschiedene vordere Gegendrucke  $p_F$  jeweils in Abhängigkeit vom hinteren Gegendruck  $p_G$  dargestellt. Der qualitative Verlauf der Kurven ist ähnlich wie bei den leichten Isotopen<sup>13</sup>:

Das *Abschälverhältnis* nimmt, bei konstantem Einlaßdruck  $p_B$ , mit fallendem  $p_F$  und steigendem  $p_G$  zu. Dies beruht darauf, daß mit kleiner werdendem vorderen Gegendruck das Expansionsverhältnis und damit der Strahl durchmesser zunimmt, während mit steigendem hinterem Gegendruck der Durchtritt des Strahlkerne durch die Abschäleröffnung erschwert wird. Mit steigendem Einlaßdruck  $p_B$  wird das Abschälverhältnis gegen  $p_F$  und  $p_G$  unempfindlicher. Dies ist verständlich, da für die Eigenschaften

des Strahls im wesentlichen die Druckverhältnisse  $p_B/p_F$  und  $p_B/p_G$  maßgeblich sind.

Der *Elementareffekt* der Trennung nimmt, bei konstantem Einlaßdruck  $p_B$ , im Mittel mit fallendem  $p_F$  zu, obwohl das Abschälverhältnis gleichzeitig ansteigt. Der Effekt ist bei kleinen Werten von  $p_G$  besonders ausgeprägt. Er kann auf die mit der Steige-

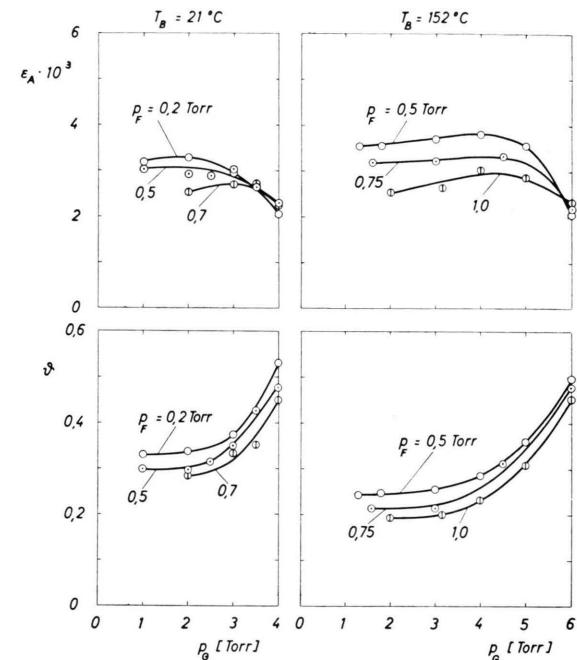


Abb. 10. Der Elementareffekt der Trennung  $\varepsilon_A$  und das Abschälverhältnis  $\vartheta$  in Abhängigkeit vom hinteren Gegendruck  $p_G$ , bei verschiedenen vorderen Gegendrucken  $p_F$  und Einlaßtemperaturen  $T_B$ . Geometrie C (Einlaßdruck  $p_B = 20,9$  Torr).

nung des Expansionsverhältnisses  $p_B/p_F$  verbundene Zunahme der für die Entmischung maßgeblichen Komponente des relativen Druckgefälles zurückgeführt werden<sup>14</sup>. Bei einer Steigerung des hinteren Gegendruckes  $p_G$  durchläuft  $\varepsilon_A$ , vor allem bei der Geometrie B, ein schwaches Maximum. Die anfängliche Zunahme dürfte im wesentlichen auf der Druckdiffusion beruhen, die in der negativen Strahlrichtung als Folge des Rückstaues des Kergases auftritt<sup>15</sup>. Bei einer Steigerung des Einlaßdruckes mischt sich die positive Wirkung des gesteigerten Expansionsverhältnisses mit der negativen Wirkung

<sup>13</sup> Vgl. II, Abb. 8.

<sup>14</sup> Für die Entmischung ist die auf die Stromfläche bezogene *Normalkomponente* des relativen Druckgefälles maßgeblich<sup>10</sup>. Bei einer Erhöhung des Expansionsverhältnisses

steigt diese u. a. wegen der mit der Strahlauflaufweitung verbundenen Zunahme der Stromflächenkrümmung an.

<sup>15</sup> Vgl. dazu II, Abb. 6.

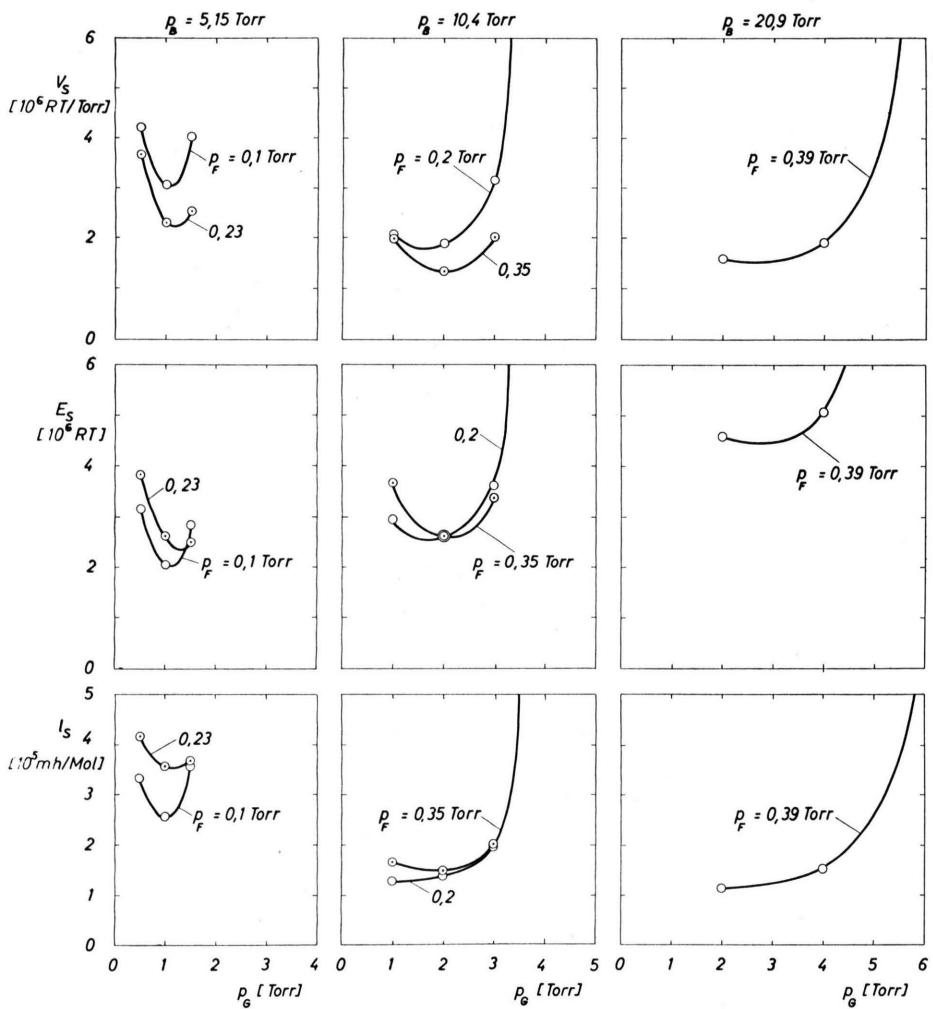


Abb. 11. Das spezifische Ansaugvolumen  $V_s$ , die spezifische ideale isotherme Kompressionsarbeit  $E_s$  und die spezifische Schlitzlänge  $l_s$  berechnet aus den in Abb. 8 wiedergegebenen Meßwerten für die *Geometrie A*.

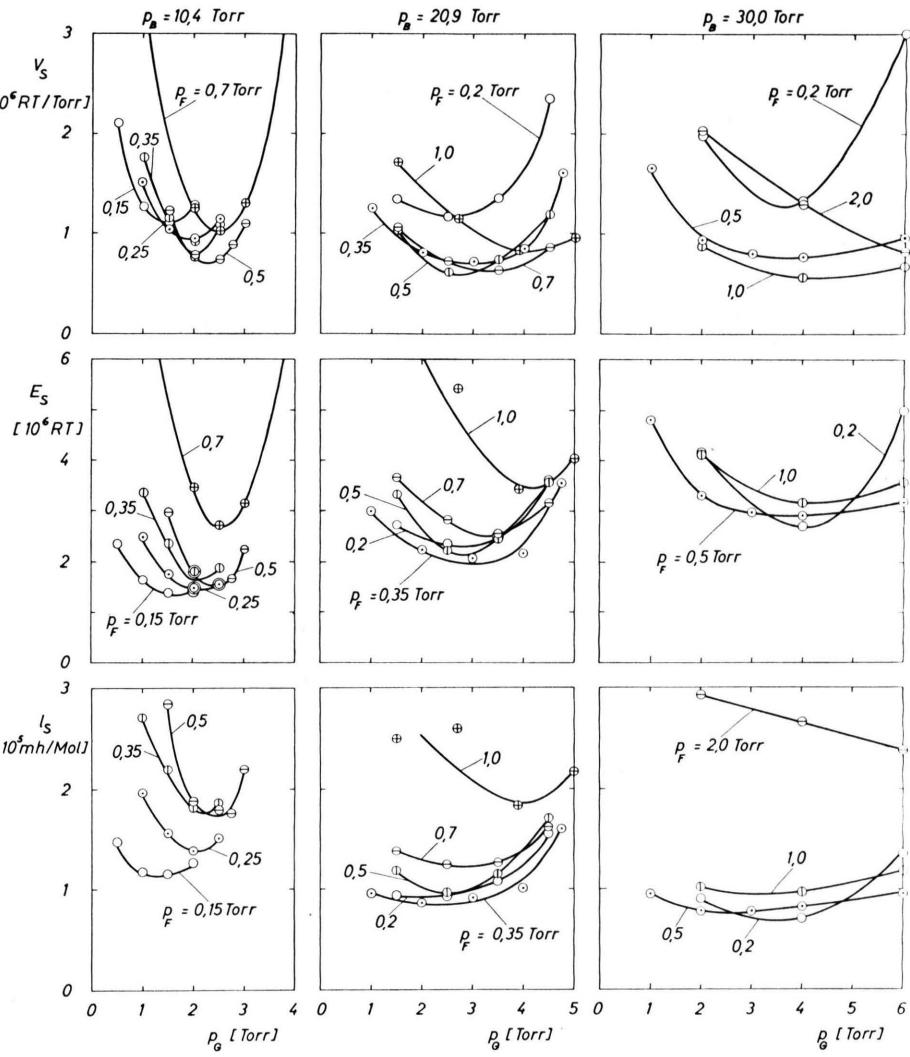


Abb. 12. Das spezifische Ansaugvolumen  $V_s$ , die spezifische ideale isotherme Kompressionsarbeit  $E_s$  und die spezifische Schlitzlänge  $l_s$  berechnet aus den in Abb. 9 wiedergegebenen Meßwerten für die *Geometrie B*.

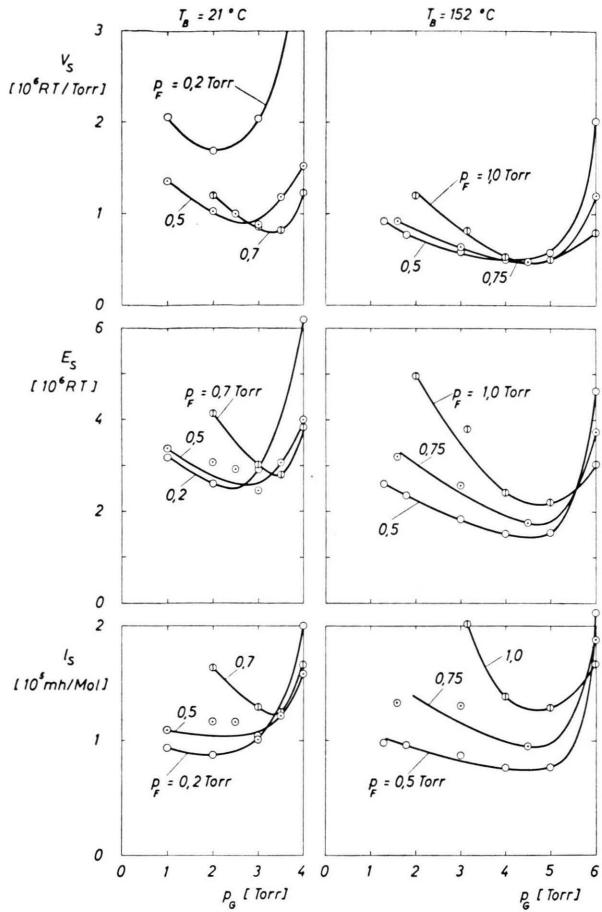


Abb. 13. Das spezifische Ansaugvolumen  $V_s$ , die spezifische ideale isotherme Kompressionsarbeit  $E_s$  und die spezifische Schlitzlänge  $l_s$  berechnet aus den in Abb. 10 wiedergegebenen Meßwerten für die Geometrie C.

des gesteigerten Gaseinstroms (vgl. den vorigen Abschnitt). Für kleine Werte von  $p_F$  und  $p_G$  ergibt sich dabei eine negative, für große dagegen eine positive Abhängigkeit des Elementareffektes der Trennung vom Einlaßdruck.

Bei der Erhöhung der Einlaßtemperatur  $T_B$  von  $21^\circ\text{C}$  auf  $152^\circ\text{C}$  (Abb. 10) ist die bereits im vorigen Abschnitt beschriebene Zunahme des Elementareffektes der Trennung unter gleichzeitiger Veränderung des Abschälverhältnisses zu beobachten. Dabei ergibt sich eine deutliche Steigerung der Gegendruckbeständigkeit von  $\varepsilon_A$  und  $\vartheta$ .

#### Ermittlung der günstigsten Betriebsbedingungen

Aus den in den Abb. 8 bis 10 dargestellten experimentellen Ergebnissen wurde mit den Gln. (1)

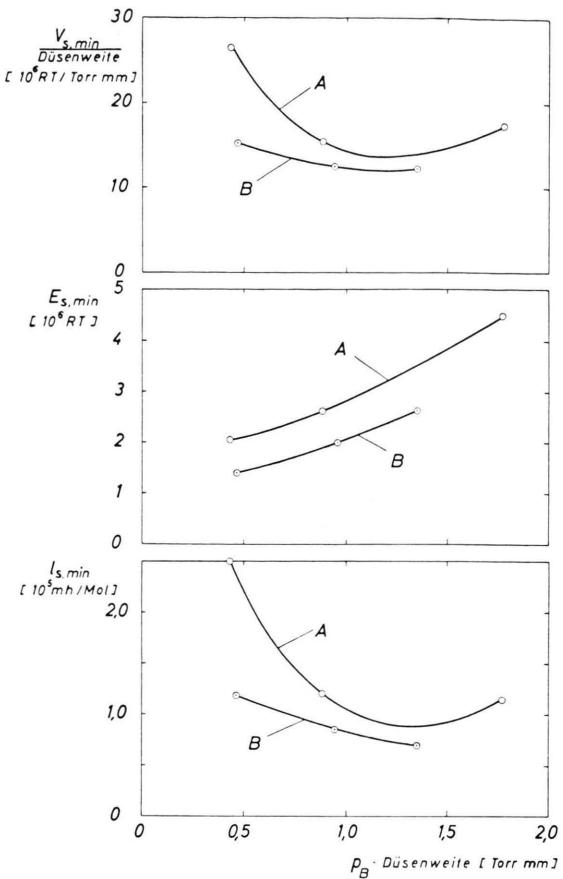


Abb. 15. Die Minimalwerte der spezifischen Kompressionsarbeit, der spez. Schlitzlänge und des Quotienten aus dem spez. Ansaugvolumen und der Düsenweite in Abhängigkeit vom Produkt aus Einlaßdruck  $p_B$  und Düsenweite für die Geometrien A und B.

bis (3) das spezifische Ansaugvolumen  $V_s$ , die spezifische ideale isotherme Kompressionsarbeit  $E_s$  und die spezifische Schlitzlänge  $l_s$  berechnet. Die Ergebnisse sind in den Abb. 11 bis 13 dargestellt.

Im untersuchten Bereich des *hinteren Gegendruckes*  $p_G$  durchlaufen die spezifischen Aufwandsgrößen fast in allen Fällen ein Minimum, das bei vorgegebenen Werten von  $p_B$ ,  $T_B$  und  $p_F$  für alle drei Aufwandsgrößen praktisch beim selben Wert von  $p_G$  liegt.

Für die am besten untersuchte Geometrie B sind in Abb. 14 die bei der Variation von  $p_G$  erzielten Minimalwerte der spezifischen Aufwandsgrößen in Abhängigkeit vom *vorderen Gegendruck*  $p_F$  dargestellt. Man bemerkt, daß die Kurven für das spezifische Ansaugvolumen auch im untersuchten Bereich

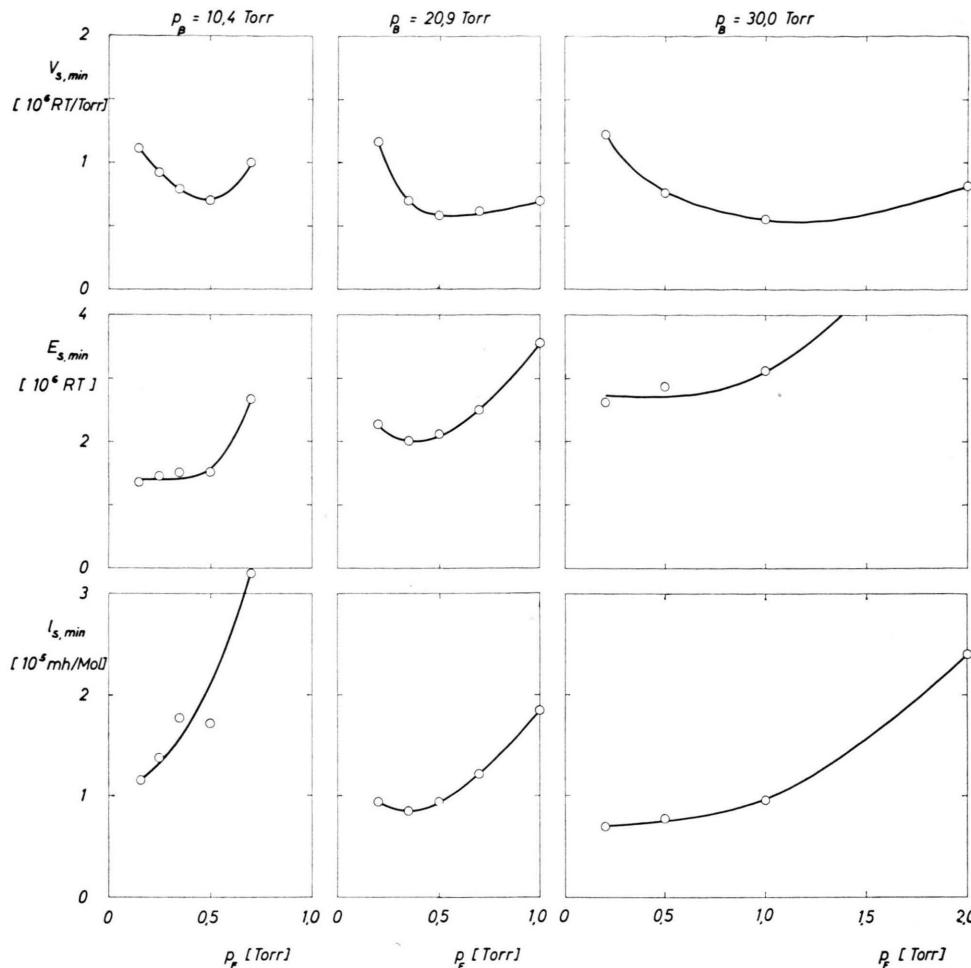


Abb. 14.  
Die aus Abb. 12  
folgenden Minimal-  
werte  $V_{s,\min}$ ,  
 $E_{s,\min}$  und  $l_{s,\min}$   
der spezifischen  
Aufwandsgrößen  
der Geometrie B  
in Abhängigkeit  
vom vorderen  
Gegendruck  $p_f$ .

des vorderen Gegendruckes ein Minimum durchlaufen. Für die beiden anderen Aufwandsgrößen sind die Kurven deutlich zu kleineren Werten von  $p_f$  verschoben, wobei nur im Fall  $p_B = 20.9$  Torr Minima erreicht werden<sup>16</sup>.

Auch hinsichtlich des *Einlaßdruckes*  $p_B$  sind die Forderungen für die 3 Aufwandsgrößen widersprechend: Nach Abb. 14 ergibt sich für das spezifische Ansaugvolumen und die spezifische Schlitzlänge im untersuchten Bereich eine negative, für die spezifische Kompressionsarbeit dagegen eine positive Abhängigkeit vom Einlaßdruck. Für den Einlaßdruck läßt sich daher, ebenso wie für den vorderen Gegendruck, nur dann ein Optimalwert angeben, wenn die Gewichtsfaktoren bekannt sind, mit denen die 3 spezifischen Aufwandsgrößen in den Preis des produzierten Materials eingehen.

Durch die Erhöhung der *Einlaßtemperatur*  $T_B$  von 21 °C auf 152 °C werden nach Abb. 13 alle Aufwandsgrößen merklich vermindert. Dabei ist jedoch zu berücksichtigen, daß  $V_s$  und  $E_s$  in Einheiten von  $R T/Torr$  bzw.  $R T$  angegeben sind. Der aus Abb. 13 hervorgehende Vorteil der Temperatursteigerung läßt sich daher nur realisieren, wenn sich die Temperatursteigerung auf die Trennelemente beschränkt und die Kompressoren in beiden Fällen auf derselben Temperatur gehalten werden.

<sup>16</sup> Bei der spezifischen Schlitzlänge, deren Definitionsgleichung (3) die Gegendrucke nicht enthält, kann ein Minimum im Bereich endlicher Gegendrucke nur auftreten, wenn ein Gebiet mit positiver Gegendruck-Abhängigkeit des Trennpotentials existiert. Ein solcher Effekt kann sich als Folge der im vorigen Abschnitt beschriebenen positiven Wirkung des Rückstaus des Kerngases ergeben.

Bezeichnung der Geometrie	A			B			C	
Einlaßdruck $p_B$ (Torr)	5,15 10,4 20,9			10,4 20,9 30,0			20,9 20,9	
Einlaßtemperatur $T_B$	Zimmertemperatur			Zimmertemperatur			Zi.-T.	152 °C
Min. spezifisches Ansaugvolumen $V_s$ ( $10^6$ RT/Torr)	2,25	1,32	1,50	0,69	0,57	0,55	0,83	0,48
Min. sp. id. isotherme Kompressionsarbeit $E_s$ ( $10^6$ RT)	2,05	2,62	4,50	1,40	2,00	2,63	2,52	1,48
Min. spez. Schlitzlänge $l_s$ ( $10^5$ mh/Mol)	2,50	1,20	1,15	1,18	0,85	0,70	0,88	0,74

Tab. 2. Die aus den Abb. 11 bis 13 folgenden Minimalwerte der spezifischen Aufwandsgrößen für die verschiedenen Trenngeometrien.

### Diskussion der Ergebnisse

In Tab. 2 sind die bei Zimmertemperatur mit den drei Geometrien erzielten Minimalwerte der spezifischen Aufwandsgrößen in Abhängigkeit vom Einlaßdruck  $p_B$  dargestellt.

Danach ergibt sich beim Übergang von der Geometrie A zur Geometrie B vor allem eine erhebliche Verminderung des spezifischen Ansaugvolumens. Der Effekt kann mit der oben diskutierten Relation zwischen Düsenweite und Absolutdruck in Kombination mit der Tatsache erklärt werden, daß das spezifische Ansaugvolumen nach Gl. (1) zu den Absolutwerten der Gegendrucke umgekehrt proportional ist. Für die beiden anderen Aufwandsgrößen, deren Definitionsgleichungen (2) und (3) keine Absolutdrücke enthalten, sollte sich bei der Verminde rung der Düsenweite lediglich eine Verschiebung der Druckskala ergeben. Inwieweit diese Voraussagen der Theorie zutreffen, geht aus Abb. 15 hervor. Dort sind die spezifische Kompressionsarbeit, die spezifische Schlitzlänge und der Quotient aus spezifischem Ansaugvolumen und Düsenweite gegen das Produkt aus Einlaßdruck und Düsenweite aufgetragen. Man bemerkt, daß die Kurven für die beiden Geometrien in dieser Darstellung dicht beieinander liegen, wie dies nach der Theorie zu erwarten ist. Die verbleibenden Unterschiede dürften größtenteils auf der unzureichenden Variation der Gegendrucke bei der Geometrie A beruhen.

In Tab. 3 sind die mit der Geometrie B erzielten Werte der spezifischen Aufwandsgrößen zusammengestellt, die sich unter den Optimalbedingungen „kleinste spezifische Kompressionsarbeit“ bzw. „kleinstes spezifisches Ansaugvolumen“ ergeben. Daneben sind die Werte eingetragen, die in der früheren Veröffentlichung<sup>2</sup> auf Grund der Ent

	Optimalbedingung			
	kleinste spez. Kompr.-Arbeit gemessen	kleinste spez. Ansaugvolumen abgeschätzt	kleinstes spez. Ansaugvolumen gemessen	kleinstes spez. Ansaugvolumen abgeschätzt
Spez. Kompressionsarbeit ( $10^2$ kWh/Mol)	9,5	8,5	22,7	17,4
Spez. Ansaugvolumen ( $10^6$ m <sup>3</sup> /Mol)	23,8	11,2	10,0	6,65
Spez. Schlitzlänge ( $10^4$ mh/Mol)	12,6	3,5	10,5	4,3

Tab. 3. Vergleich der mit  $UF_6$  gemessenen und der auf Grund der Entmischung der Argonisotope für  $UF_6$  abgeschätzten<sup>2</sup> minimalen spezifischen Aufwandsgrößen (Zimmertemperatur).

mischungsversuche mit den Argonisotopen für  $UF_6$  abgeschätzt wurden. Zur Zeit dieser Veröffentlichung lagen noch keine Erfahrungen über den Einfluß des gaskinetischen Wirkungsquerschnittes und des Adiabatenexponenten auf die Entmischung vor. Die Abschätzung konnte daher nur unter der Voraussetzung durchgeführt werden, daß die optimalen Betriebsbedingungen beim Argon und Uranhexafluorid dieselben seien, während sich die Elementareffekte der Entmischung wie die relativen Massendifferenzen der Isotopen und die molaren Durchflüsse durch die Düse umgekehrt wie die Wurzeln aus den mittleren Massen der Isotopengemische verhalten.

Nach Tab. 3 liegen im Fall der spezifischen Schlitzlänge die gemessenen Werte im Mittel um den Faktor 3,1 und im Fall des spezifischen Ansaugvolumens um den Faktor 1,8 höher als die abgeschätzten Werte. Diese Diskrepanz kann damit erklärt werden, daß der gaskinetische Wirkungsquerschnitt von  $UF_6$  etwa um einen Faktor 3,5 größer ist als der von Argon<sup>17</sup>. Nach der gaskinetischen Ähnlichkeitsbeziehung geht

<sup>17</sup> Vgl. J. D'ANS u. E. LAX, Taschenbuch für Chemiker und Physiker, Berlin 1949, und Anm. <sup>4</sup>, S. 430.

dieser Faktor linear in die *minimale spezifische Schlitzlänge* ein, da der größere Wirkungsquerschnitt durch eine entsprechende Verminderung des Einlaßdruckes und damit des Gasdurchsatzes  $L$  kompensiert werden muß. Eine Veränderung der Düsenweite ist bei dieser Aufwandsgröße ohne Einfluß, da wegen der hierzu reziproken Änderung des optimalen Einlaßdruckes der Moldurchsatz der Düse unter optimalen Betriebsbedingungen unverändert bleibt. Beim *spezifischen Ansaugvolumen* läßt sich die negative Wirkung des größeren Wirkungsquerschnittes durch Verminderung der Düsenweite kompensieren. Da die Düsenweite bei der Geometrie B gegenüber der Düsenweite bei den Argonversuchen etwa auf die Hälfte reduziert wurde, ist es verständlich, daß bei dieser Aufwandsgröße eine kleinere Diskrepanz zwischen dem Ergebnis der Abschätzung und dem des Experiments gefunden wird. Bei der *spezifischen Kompressionsarbeit* ist kein Einfluß des gas-kinetischen Wirkungsquerschnittes auf den Minimalwert zu erwarten, da die ideale isotherme Kompressionsarbeit nur vom Druckverhältnis, nicht aber vom Absolutdruck abhängt. Tatsächlich stimmen bei die-

ser Aufwandsgröße nach Tab. 3 die gemessenen mit den abgeschätzten Werten nahezu überein<sup>18</sup>.

Der in der vorliegenden Arbeit für  $UF_6$  experimentell bestimmte Minimalwert der spezifischen idealen isothermen Kompressionsarbeit von  $9,5 \cdot 10^2$  kWh/gMol ist um den Faktor 1,8 größer als der entsprechende, für das Diffusionsverfahren abgeschätzte Wert<sup>19</sup> von  $5,4 \cdot 10^2$  kWh/gMol. Dieser Unterschied dürfte sich jedoch durch eine bessere Anpassung der Abschälgeometrie noch ausgleichen lassen<sup>20</sup>. Der schwächste Punkt des Trenndüsenverfahrens ist das große spezifische Ansaugvolumen, das verhältnismäßig hohe Investierungen für die Kompressoren und Rohrleitungen bedingt<sup>21</sup>. Andererseits stellt die Vermeidung der beim Diffusionsverfahren benutzten porösen Membranen einen betriebstechnischen Vorteil dar, der an anderen Stellen zu Kosteneinsparungen führen dürfte.

Bei der Durchführung der Anreicherungsversuche und bei den massenspektrometrischen Messungen haben Herr Dr. W. HENKES und Herr Dipl.-Phys. O. HAGENA geholfen. Herrn Dr. K. BIER danken wir für wertvolle Diskussionen.

wartet werden, daß ein etwas kleinerer Abstand günstiger wäre. Dafür sprechen auch die früheren Versuche mit den Argonisotopen, bei denen die niedrigsten Werte der spezifischen Aufwandsgrößen bei einem Verhältnis Düsenweite zu Abstand Düse—Abschäler  $\approx 1:1$  erreicht wurden.

<sup>21</sup> Das spezifische Ansaugvolumen kann theoretisch durch weitere Verminderung der kritischen Abmessungen des Trenndüsenverfahrens herabgesetzt werden. In der Praxis ist jedoch eine untere Grenze durch mechanische Probleme gegeben.

<sup>18</sup> Aus dem Vergleich scheint hervorzugehen, daß der Unterschied im Adiabatenexponenten von Argon und  $UF_6$  ohne größere Bedeutung für die Entmischung ist. Dies beruht möglicherweise auf einer unvollständigen Akkommodation der inneren Freiheitsgrade des  $UF_6$  während der mit nur wenigen Zusammenstößen verlaufenden Expansion.

<sup>19</sup> E. W. BECKER, Chemie-Ing. Technik **29**, 365 [1957].

<sup>20</sup> Da bei der Vergrößerung des Abstandes zwischen Düse und Abschäler (Übergang von der Geometrie B zur Geometrie C) nach Tab. 2 alle Aufwandsgrößen ansteigen, kann er-

## The Potential Distribution in a Toroidal Condenser

By A. J. H. BOERBOOM

Laboratorium voor Massaspectrografie, Amsterdam, The Netherlands  
(Z. Naturforsch. **15 a**, 347—350 [1960]; eingegangen am 13. Februar 1960)

The electrostatic potential is calculated in a toroidal condenser consisting of two rotational symmetric electrodes having the median plane as a plane of symmetry. The result is expressed as a series expansion in the coordinates around the main circle and in the mutual distance of the electrodes in the median plane.

Recently toroidal condensers have been described to be used for energy selecting devices in mass spectrographs<sup>1</sup>. In addition to the radial focusing they

exert an axial focusing, in this way increasing the transmission. The problem of calculating the potential field in these condensers has been solved in

<sup>1</sup> H. EWALD and H. LIEBL, Z. Naturforsch. **10 a**, 872 [1955]; **12 a**, 28 [1957]; **14 a**, 588 [1959]. H. LIEBL and H. EWALD, Z. Naturforsch. **12 a**, 538, 541 [1957]; **14 a**, 199, 588, 842 [1959]. — H. EWALD, Z. Naturforsch. **14 a**, 198, 680 [1959]. — H. EWALD, H. LIEBL and G. SAUERMANN, Z. Naturforsch. **14 a**, 129 [1959]. — G. SAUERMANN and H. EWALD, Z. Natur-

forsch. **14 a**, 137 [1959]. — H. EWALD and G. SAUERMANN, Z. Naturforsch. **11 a**, 173 [1956]. — H. LIEBL, Z. Naturforsch. **13 a**, 490 [1958]. — H. WACHSMUTH, H. LIEBL and H. EWALD, Z. Naturforsch. **14 a**, 844 [1959]. — H. A. TASMAN, Thesis, Leyden (in preparation).