

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 Investitionen für die Kompressoren und Rohrleitungen bedingt.

In zwei früheren Arbeiten^{1,2} wurde ein neues Gas- und Isotopentrennverfahren beschrieben, das auf der teilweisen räumlichen Entmischung verschiedenen 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 berichtet³.

Die verwendeten Bezeichnungen

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

Das Isotopengemisch durchläuft eine konvergente Düse mit der Stromstärke L . Ein Abschäler zerlegt den austretenden Strahl in einen Mantelgasstrom ϑL und einen Kerngasstrom $(1-\vartheta)L$. Die Größe ϑ 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 leichteren 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:

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

Spezifische ideale isotherme Kompressionsarbeit:

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

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. 4) wurden die Anreicherungsversuche in einer ausheizbaren Apparatur aus V2A-Stahl mit stopfbuchsenlosen Ventilen ausgeführt⁵. 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

¹ Die Trenndüse. Ein neues Element zur Gas- und Isotopentrennung, E. W. BECKER, K. BIER u. H. BURGHOF, Z. Naturforsch. 10 a, 565 [1955]. Im folgenden mit I bezeichnet.

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

³ Ein Teil der Ergebnisse wurde bereits auf der 2. Genfer Konferenz über die friedliche Verwendung der Atomenergie mitgeteilt. E. W. BECKER, K. BIER, H. BURGHOF, 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].

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

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



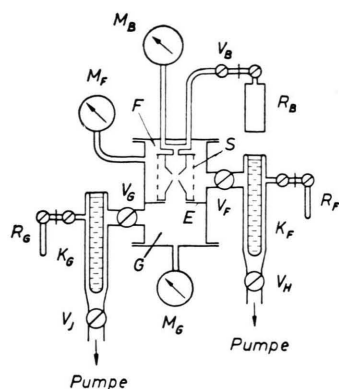


Abb. 1. Schema der Trennapparatur.

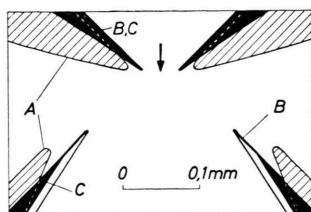


Abb. 3. Querschnitt durch die Mündungen von Düse und Abschäler bei den Geometrien A, B und C. Für die Geometrien B und C, bei denen sich die Düsenweiten nur wenig unterscheiden, wurde der Mittelwert der Düsenweiten eingezeichnet.

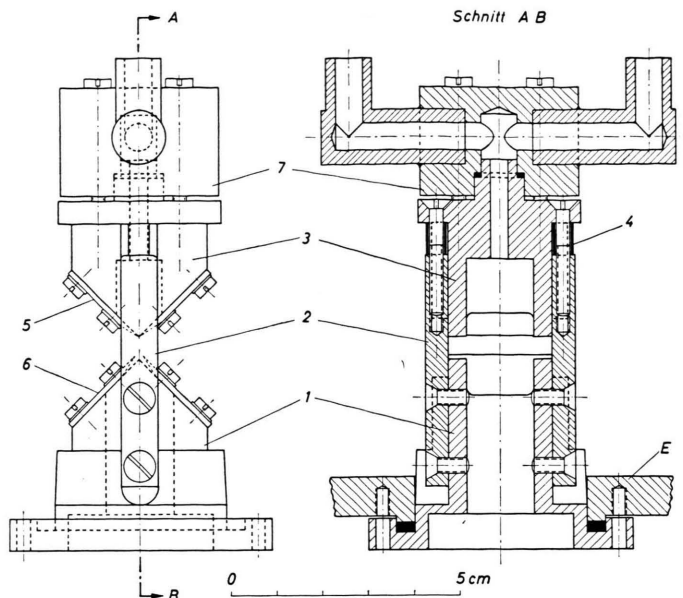


Abb. 2. Das Trennsystem. Der Abschälerkörper 1 ist über die Führungsschienen 2 mit dem Düsenkörper 3 verbunden. Durch Distanzstücke 4 wird der Abstand zwischen Düse und Abschäler festgelegt. Die Weiten des Düsen- bzw. Abschälerschlitzes können durch Verschieben der aufgeschraubten Düsenbleche 5 und Abschälerbleche 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.

Ganzes auf die Zwischenwand E der Trennkammer aufgesetzt. Der UF_6 -Vorratsbehälter R_B und das mechanische Membran-Manometer⁶ 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 werden⁷. Mit diesen Ventilen werden die Drücke im Mantelgasraum F und im Kerngasraum G eingestellt. Die Drücke p_F und p_G werden mit den Hochfrequenz-Membranmanometern M_F und M_G gemessen⁸. 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 °C gestatten. Die aus Kupferrohr bestehenden Anschlußleitungen der Druckmeßgeräte und der UF_6 -Behälter werden mit einer Gasflamme ausgeheizt.

Alle lösbaren 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 Gesamtdichtigkeit der Apparatur war kleiner als $2 \cdot 10^{-6} \text{ Torr} \cdot \text{l} \cdot \text{sec}^{-1}$.

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-

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

⁷ Beim Siedepunkt der flüssigen Luft ist der Dampfdruck des UF_6 nicht mehr meßbar.

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

beschriebenen Manometers. An Stelle des dort angegebenen Differentialkondensators wird ein einfacher Kondensator mit Vergleichsvakuum ($< 10^{-3}$ Torr) verwendet. Mit einer 50 μ 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 Kühlfalle zur Kammer geöffnet und der Restdruck mit den Druckmeßgeräten kontrolliert.

Der Gasdurchsatz der Düse L und das Abschälverhältnis ϑ 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 Gegendrucke 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 Gegendrucke 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 eingelöteten Gasleitung genügt, um das einströmende Gas während des Versuches auf die gewünschte Temperatur aufzuheizen. Die Gastemperatur T_B wird mit einem in die Manometerleitung eingebauten Thermolement in etwa 5 cm Abstand von der Düse gemessen und mit einem Kompensationsschreiber registriert. Die Fehlergrenze der Temperaturangabe dürfte etwa $\pm 2^\circ\text{C}$ betragen.

Die Experimente wurden mit 3 auf Grund der Vorversuche besonders aussichtsreich erscheinenden Kombinationen der geometrischen Parameter des Trenndüsenystems durchgeführt. Die kritischen Abmessungen sind in Tab. 1 zusammengestellt. Abb. 3 zeigt die räumliche Anordnung der Düsen- und Abschälbleche 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 Verfügung⁹. 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-

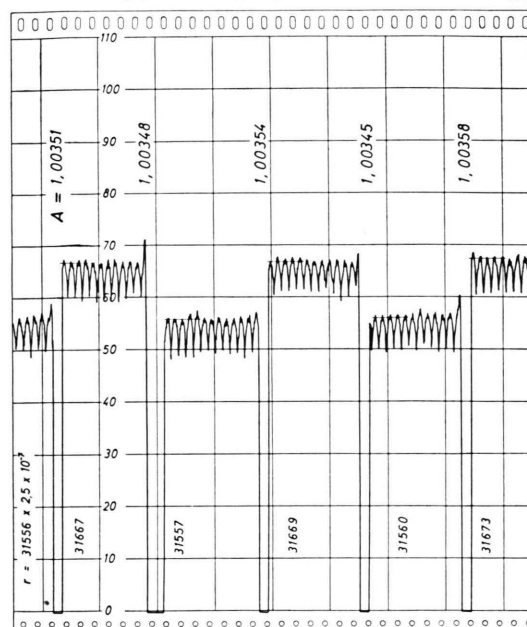


Abb. 4. Registrierung des Häufigkeitsverhältnisses $r = \frac{(U^{235}F_5)^+}{(U^{238}F_5)^+}$ zweier abwechselnd in das Massenspektrometer eingelassener UF_6 -Proben mit den sich ergebenden Einzelwerten des Trennfaktors A. Der Mittelwert des Elementareffektes der Trennung beträgt $\varepsilon_A = (3,50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

auffänger über zwei Verstärker gespeister Streifenblattschreiber registriert unmittelbar das Verhältnis $r = \frac{(U^{235}F_5)^+}{(U^{238}F_5)^+}$ der durch Elektronenbeschuss erzeugten $(\text{UF}_5)^+$ -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

⁹ 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 Zehnteileinheiten 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 betragen, lagen die relativen Fehler für ϵ_A im allgemeinen unter $\pm 5\%$.

Versuche mit niedrigen Gegendrücken

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 einzuregulieren, was die Versuchstechnik wesentlich vereinfachte.

a) Zimmertemperatur

Abb. 5 zeigt die Abhängigkeit des Abschälverhältnisses ϑ und des Elementareffektes der Trennung ϵ_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 Drücken 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 zunimmt¹⁰. 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 auf¹¹.

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

¹⁰ Wegen der theoretischen Beschreibung des Trenndüsen-effektes vgl. II sowie die demnächst erscheinende Arbeit von F. ZIGAN.

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

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).

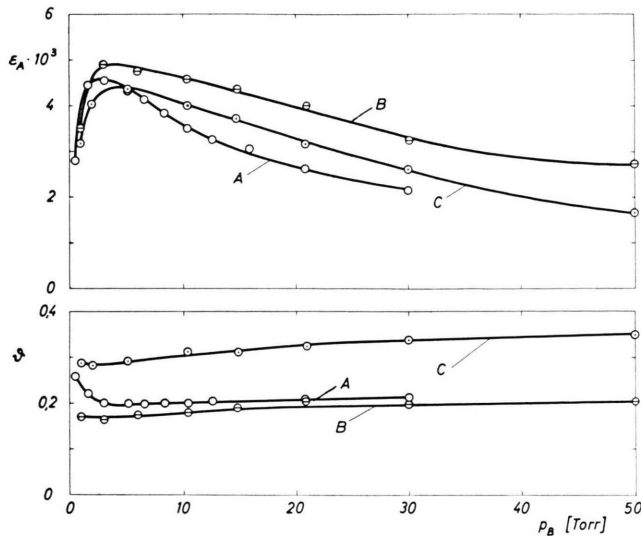


Abb. 5. Der Elementareffekt der Trennung ε_A und das Abschälverhältnis ϑ in Abhängigkeit vom Einlaßdruck p_B bei niedrigen Gegendrücken ($p_F, p_G < 10^{-1}$ Torr) und Zimmertemperatur für die Geometrien A, B und C.

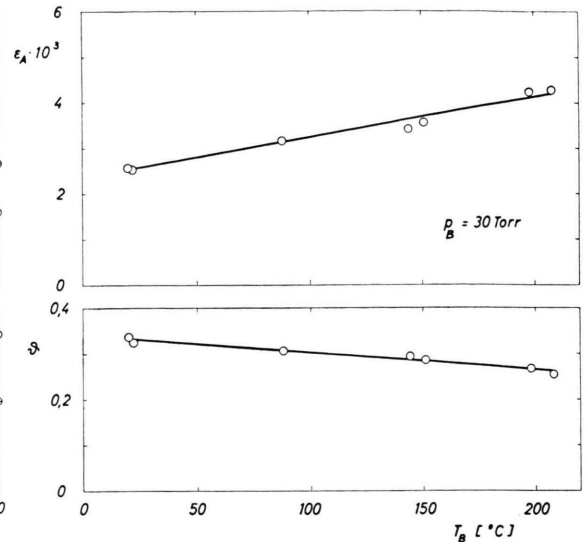


Abb. 6. Der Elementareffekt der Trennung ε_A und das Abschälverhältnis ϑ in Abhängigkeit von der Einlaßtemperatur T_B bei einem Einlaßdruck $p_B = 30,0$ Torr und niedrigen Gegendrücken ($p_F, p_G < 10^{-1}$ Torr). Geometrie C.

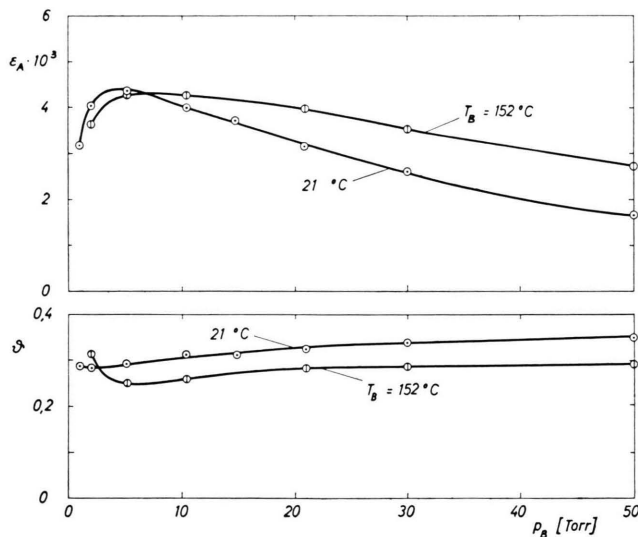


Abb. 7. Der Elementareffekt der Trennung ε_A und das Abschälverhältnis ϑ in Abhängigkeit vom Einlaßdruck p_B bei einer Einlaßtemperatur $T_B = 152$ °C und niedrigen Gegendrücken ($p_F, p_G < 10^{-1}$ Torr). Geometrie C. Zum Vergleich ist die entsprechende bei Zimmertemperatur gemessene Kurve aus Abb. 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 gekrümmt 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 ϑ und des Elementareffektes der Trennung ε_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 Fehlergrenze 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

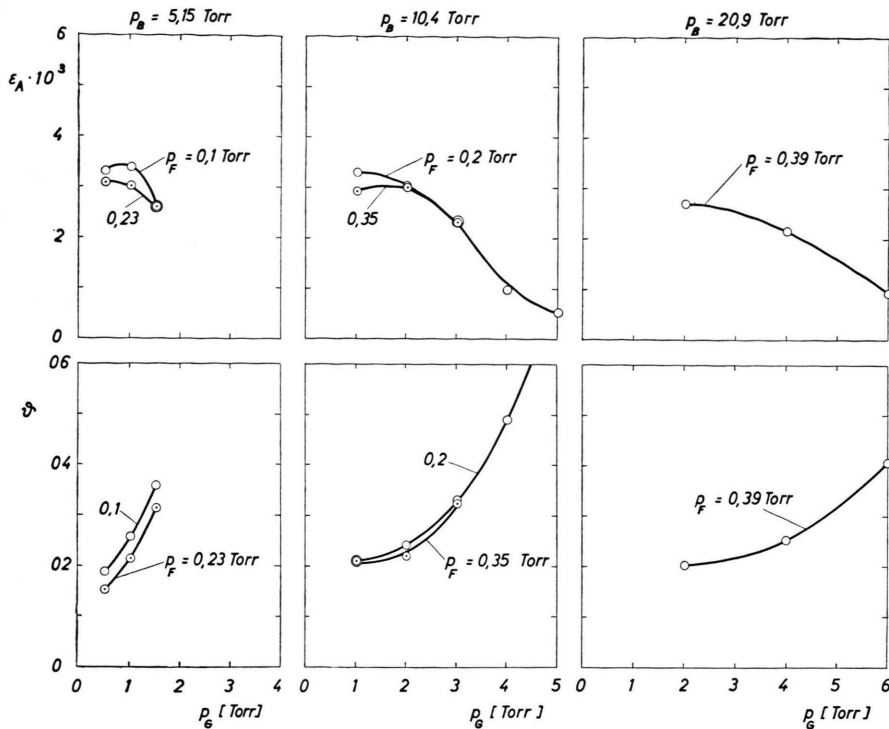


Abb. 8. Der Elementareffekt der Trennung ϵ_A und das Abschälverhältnis ϑ in Abhängigkeit vom hinteren Gegen- druck p_G , bei verschiedenen Einlaßdrücken p_B und vorderen Gegen- drücken p_F . Geometrie A (Zimmer- temperatur).

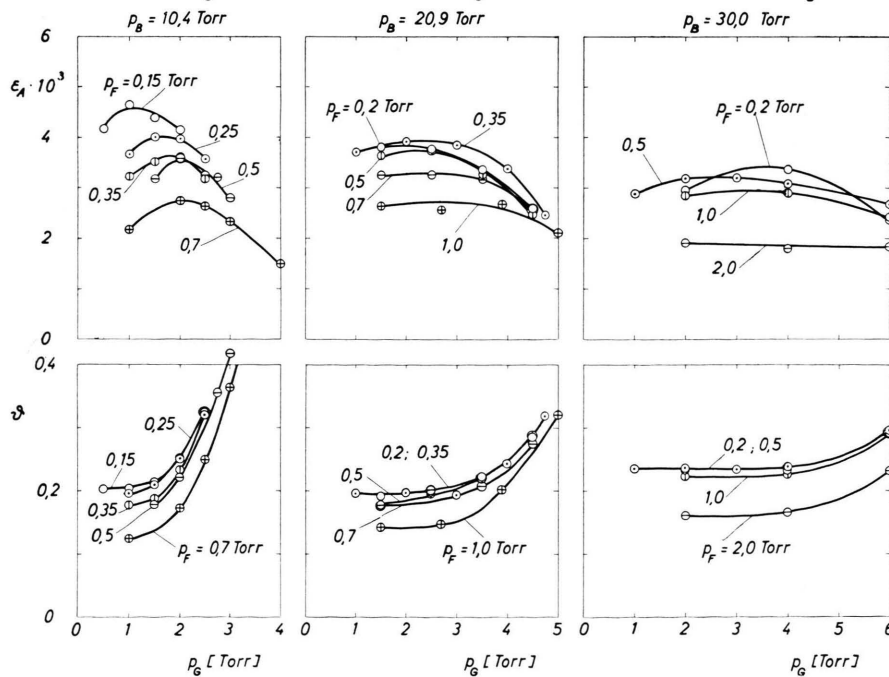


Abb. 9. Der Elementareffekt der Trennung ϵ_A und das Abschälverhältnis ϑ in Abhängigkeit vom hinteren Gegen- druck p_G , bei verschiedenen Einlaßdrücken p_B und vorderen Gegen- drücken p_F . Geometrie B (Zimmer- temperatur).

Teil auf die Verminderung des Abschälverhältnisses zurückgeführt werden, die regelmäßig zu einer Steigerung von ϵ_A führt¹². Darüber hinaus ist eine positive Temperaturabhängigkeit von ϵ_A zu erwarten,

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

¹² Vgl. z. B. II, Abb. 7.

druck (≈ 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 ϑ und des Elementareffektes der Trennung ε_A vom Einlaßdruck p_B bei einer Temperatur von 152°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 Isotopengemischen in verhältnismäßig engen Grenzen voraussagen. Bei den Geometrien A und B wurden die Versuche bei Zimmertemperatur mit jeweils 3 verschiedenen Einlaßdrücken 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°C angeschlossen. Die für das Abschälverhältnis ϑ und den Elementareffekt der Trennung ε_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 Isotopen¹³:

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 Strahldurchmesser zunimmt, während mit steigendem hinterem Gegendruck der Durchtritt des Strahlkernes 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-

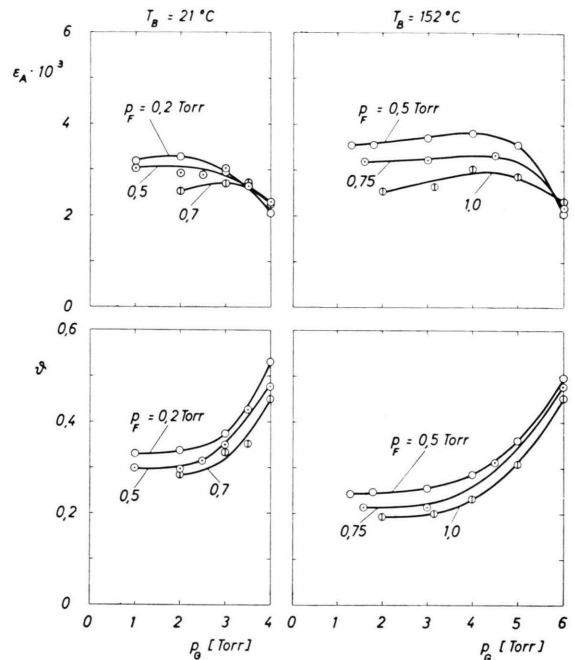


Abb. 10. Der Elementareffekt der Trennung ε_A und das Abschälverhältnis ϑ in Abhängigkeit vom hinteren Gegendruck p_G , bei verschiedenen vorderen Gegendrücken p_F und Einlaßtemperaturen T_B . Geometrie C (Einlaßdruck $p_B = 20,9$ Torr).

rung des Expansionsverhältnisses p_B/p_F verbundene Zunahme der für die Entmischung maßgeblichen Komponente des relativen Druckgefälles zurückgeführt werden¹⁴. Bei einer Steigerung des hinteren Gegendruckes p_G durchläuft ε_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 Rückstaus des Kerngases auftritt¹⁵. Bei einer Steigerung des Einlaßdruckes mischt sich die positive Wirkung des gesteigerten Expansionsverhältnisses mit der negativen Wirkung

¹³ Vgl. II, Abb. 8.

¹⁴ Für die Entmischung ist die auf die Stromfläche bezogene Normalkomponente des relativen Druckgefälles maßgeblich¹⁰. Bei einer Erhöhung des Expansionsverhältnisses

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

¹⁵ Vgl. dazu II, Abb. 6.

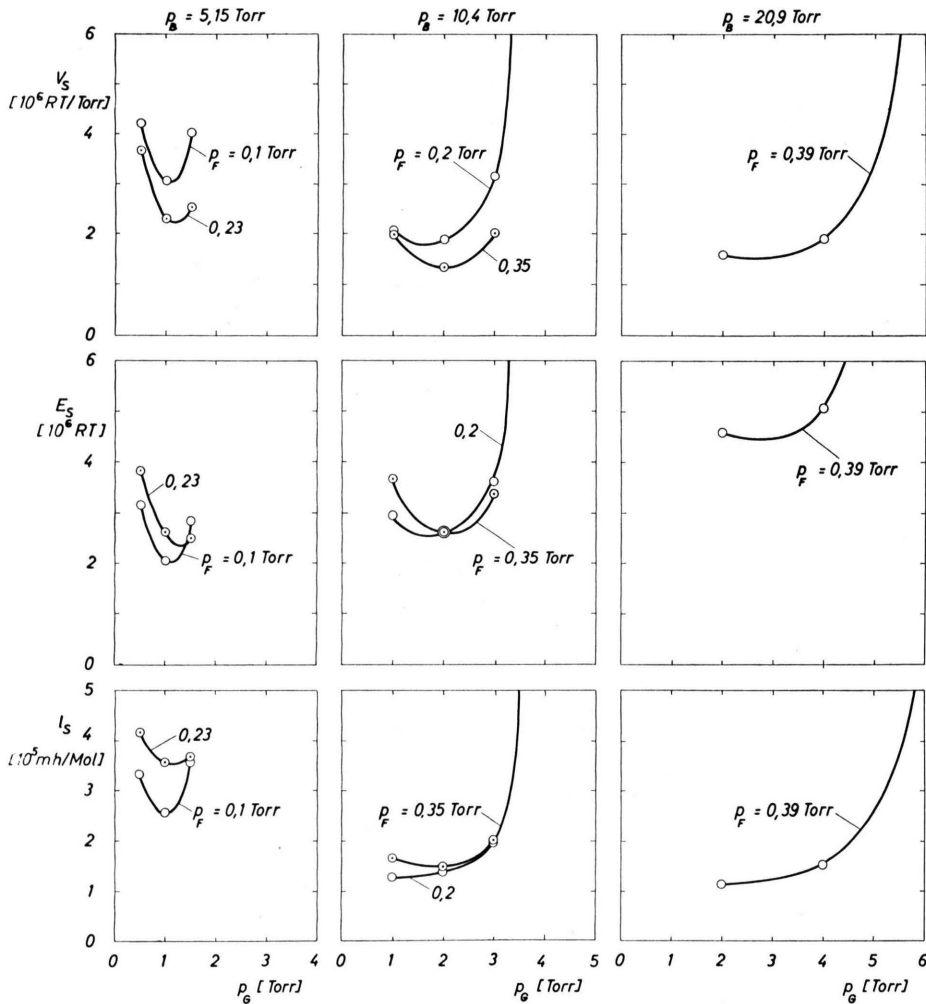


Abb. 11. Das spezifische Ansaugvolumen V_s , die spezifische ideale isotherme Kompressionsarbeit E_s und die spezifische Schlitzlänge l_s berechnet aus den in Abb. 8 wiedergegebenen Meßwerten für die Geometrie A.

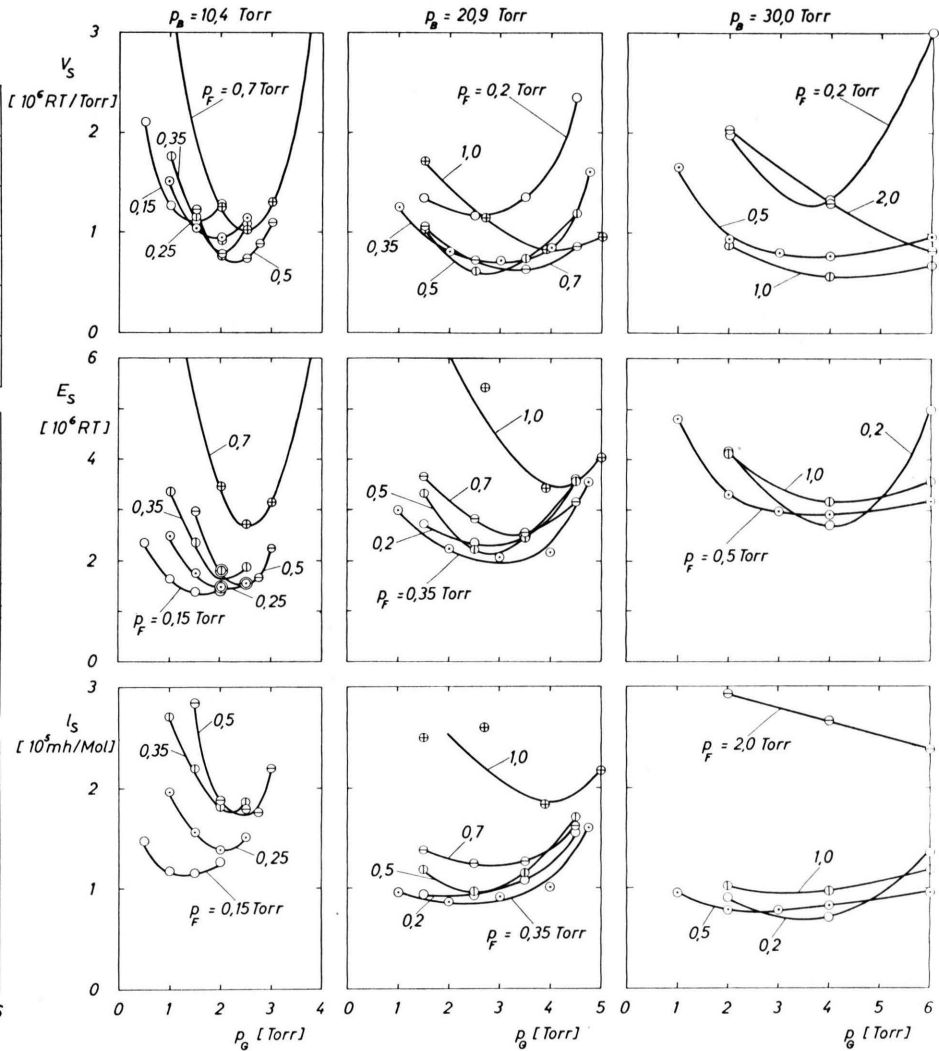


Abb. 12. Das spezifische Ansaugvolumen V_s , die spezifische ideale isotherme Kompressionsarbeit E_s und die spezifische Schlitzlänge l_s berechnet aus den in Abb. 9 wiedergegebenen Meßwerten für die Geometrie B.

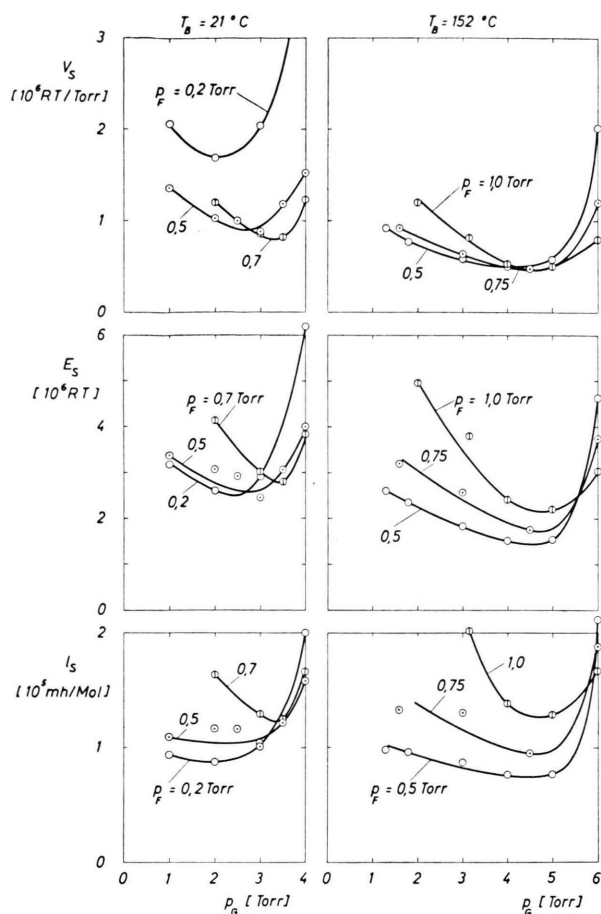


Abb. 13. Das spezifische Ansaugvolumen V_s , die spezifische ideale isotherme Kompressionsarbeit E_s und die spezifische Schlitzlänge l_s berechnet aus den in Abb. 10 wiedergegebenen Meßwerten für die Geometrie C.

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°C auf 152°C (Abb. 10) ist die bereits im vorigen Abschnitt beschriebene Zunahme des Elementareffektes der Trennung unter gleichzeitiger Verminderung des Abschälverhältnisses zu beobachten. Dabei ergibt sich eine deutliche Steigerung der Gegen-druckbeständigkeit von ε_A und ϑ .

Ermittlung der günstigsten Betriebsbedingungen

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

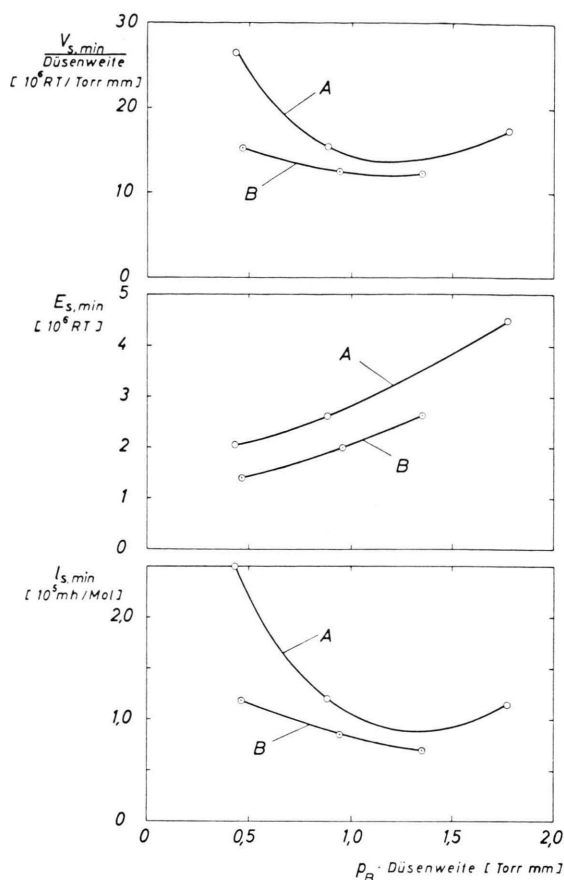


Abb. 15. Die Minimalwerte der spezifischen Kompressionsarbeit, der spez. Schlitzlänge und des Quotienten aus dem spez. Ansaugvolumen und der Düsenweite in Abhängigkeit vom Produkt aus Einlaßdruck p_B und Düsenweite für die Geometrien A und B.

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 Gegen-druckes 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 Gegen-druck p_F dargestellt. Man bemerkt, daß die Kurven für das spezifische Ansaugvolumen auch im untersuchten Bereich

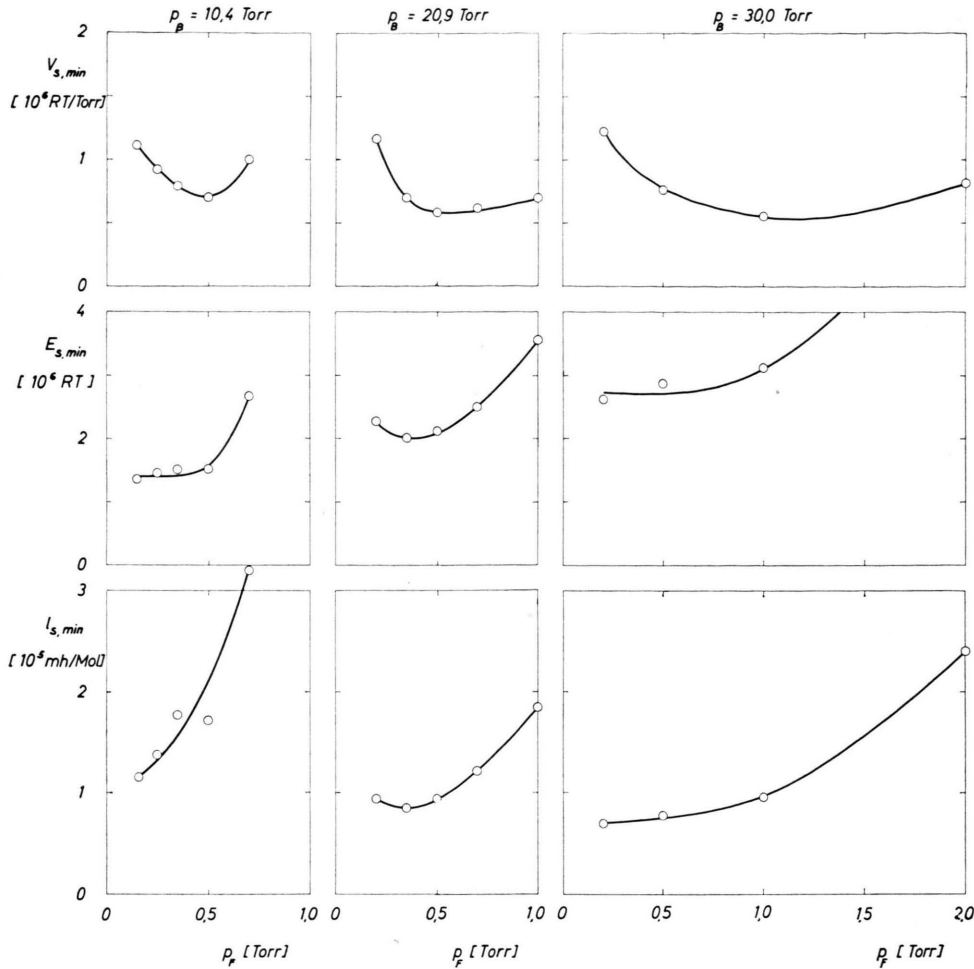


Abb. 14.
Die aus Abb. 12
folgenden Minimal-
werte $V_{s,min}$,
 $E_{s,min}$ und $l_{s,min}$
der spezifischen
Aufwandsgrößen
der Geometrie B
in Abhängigkeit
vom vorderen
Gegendruck p_F .

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 werden¹⁶.

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 Gewichtungsfaktoren 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 $RT/Torr$ bzw. RT 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.

¹⁶ 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 Absolutdrucke enthalten, sollte sich bei der Verminderung der Düsenweite lediglich eine Verschiebung der Druckskala ergeben. Inwieweit diese Voraussetzungen 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 Veröffentlichung² auf Grund der Ent-

	Optimalbedingung			
	kleinste spez. Kompr.-Arbeit ge- messen	kleinstes spez. Ansaugvolumen ab- geschätzt	kleinstes spez. Kompr.-Arbeit ge- messen	kleinstes spez. Ansaugvolumen ab- geschätzt
Spez. Kompressionsarbeit (10^2 kWh/Mol)	9,5	8,5	22,7	17,4
Spez. Ansaugvolumen (10^6 m ³ /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 abgeschätzten² 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 Argon¹⁷: Nach der gaskinetischen Ähnlichkeitsbeziehung geht

¹⁷ Vgl. J. D'Ans u. E. Lax, Taschenbuch für Chemiker und Physiker, Berlin 1949, und Anm. 4, 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 Experimentes 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 überein¹⁸.

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 Wert¹⁹ von $5,4 \cdot 10^2$ kWh/gMol. Dieser Unterschied dürfte sich jedoch durch eine bessere Anpassung der Abschälgeometrie noch ausgleichen lassen²⁰. Der schwächste Punkt des Trenndüsenverfahrens ist das große spezifische Ansaugvolumen, das verhältnismäßig hohe Investitionen für die Kompressoren und Rohrleitungen bedingt²¹. 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.

¹⁸ 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.

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

²⁰ 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-

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.

²¹ Das spezifische Ansaugvolumen kann theoretisch durch weitere Verminderung der kritischen Abmessungen des Trenndüsen systems herabgesetzt werden. In der Praxis ist jedoch eine untere Grenze durch mechanische Probleme gegeben.

The Potential Distribution in a Toroidal Condenser

By A. J. H. BOERBOOM

Laboratorium voor Massaspektrografie, Amsterdam, The Netherlands
(Z. Naturforschg. **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 spectrographs¹. 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

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

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