

Isotopentrennung in einer Zirkularströmung

Von H. J. MÜRTZ * und H. G. NÖLLER

Aus dem Institut für Physikalische Chemie der Universität Bonn
(Z. Naturforsch. 16 a, 569—577 [1961]; eingegangen am 14. Februar 1961)

Strömt ein Gasgemisch durch eine konvergente Düse mit Schallgeschwindigkeit tangential in ein Rohr ein, so bildet sich bei niedrigem Druck (< 5 Torr) eine laminare Strömung aus, die spiralförmig in Richtung der Rohrachse verläuft. Infolge der Zentrifugalkräfte, die in einem rotierenden Gas auftreten, reichert sich die leichte Komponente des Gemisches in der Rohrachse, die schwere am Rande des Rohres an.

Die Abhängigkeit des Trennfaktors von der Masse, dem Trennröhradius, dem Schälrohr- und Düsendurchmesser und der Trennröhrlänge wird diskutiert. Auf Grund der vorliegenden Messungen können qualitative Aussagen über die Einstellung des Gleichgewichtes im Trennröhr gemacht werden. Aus den gemessenen Drücken ergeben sich Tangentialgeschwindigkeiten von $1,2 \cdot 10^5$ cm/sec für Wasserstoff und $1,95 \cdot 10^4$ cm/sec für Quecksilber. Für die Gasgemische $H_2 - CO_2$, $H_2 - HD$ und $Ar^{36} - Ar^{40}$ ergeben sich maximale Trennfaktoren der Größe 2,4, 1,13 und 1,12. Den gemessenen Trennfaktoren werden die nach COHEN u. a. berechneten Trennpotentiale gegenübergestellt. Das maximale Trennpotential für Argon errechnet sich zu $5 \cdot 10^{-3}$ nl/min.

Zur Trennung von Gasgemischen und gasförmigen Isotopengemischen wird mit Erfolg die bei Druckgradienten auftretende „Druckdiffusion“ benutzt, zum Beispiel in Gaszentrifugen¹, expandierenden Gasstrahlen mit einem Druckgradienten quer zur Strömungsrichtung² und in Molekularpumpen³. Es ist naheliegend, auch den in einer Zirkularströmung entstehenden Druckgradienten zur Massentrennung heranzuziehen^{4, 5}.

Durch eine konvergente Düse tritt Gas mit Schallgeschwindigkeit tangential in ein Rohr ein, so daß sich eine Strömung ausbildet, die schraubenförmig in Richtung der Rohrachse verläuft. Infolgedessen treten Zentrifugalkräfte und damit Druckunterschiede auf, die die leichte Komponente eines binären Gasgemisches in der Nähe der Rohrachse, die schwere am Rande anreichern. Da die Entstehung von Turbulenz eine Anreicherung erheblich stören würde, wird bei niedrigen Drücken gearbeitet.

Strömt das Gasgemisch mit Schallgeschwindigkeit w_s tangential ein und expandiert zur Achse hin, so gilt nach dem Satz von der Erhaltung des Drehimpulses (s. Abb. 1)

$$w_s r_s = w_L r_L. \quad (1)$$

Die Gasgeschwindigkeit w_L im Abstand r_L von der Achse könnte also hiernach über alle Grenzen wachsen, wenn r_L hinreichend klein ist. Die Gasdynamik läßt jedoch nur eine maximale Geschwindigkeit w_{max} in einem Abstand r_{min} zu, bei der die innere Energie

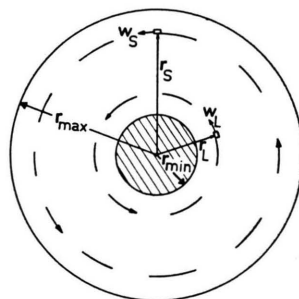


Abb. 1. Potentialströmung mit Zirkulation (schematisch). r Krümmungsradien der einzelnen Stromlinien, w Tangentialkomponente der Geschwindigkeit, r_{max} Radius des Trennröhres, r_{min} minimaler Radius.

des Gases vollständig in kinetische umgewandelt wird und die Temperatur und der Druck den Wert Null annehmen. Dieser Zustand wird jedoch nicht erreicht, sondern das Gas expandiert, bis es in einem größeren Abstand von der Achse als r_{min} einen end-

* Dissertation, Bonn 1960.

¹ W. GROTH u. K. H. WELGE, Z. physik. Chem., N.F. 19, 1/2 [1959].

² E. W. BECKER, K. BIER u. H. BURGHOF, Z. Naturforsch. 10 a, 565 [1955].

³ W. FISCHER u. A. KLEMM, Z. Naturforsch. 14 a, 851 [1959].

⁴ H. G. NÖLLER u. H. J. MÜRTZ, Naturwiss. 16, 382 [1958] (Kurze Mitteilung).

⁵ Erste Untersuchungen einer Isotopentrennung in einem Wirbelrohr (nach RANQUE u. HILSCH) wurden bereits 1943 von H. Freiherr RAUSCH VON TRAUBENBERG durchgeführt

(vgl. Z. Naturforsch. 1, 420 [1946]) und später von K. ELSE und M. HOCH (vgl. Z. Naturforsch. 6 a, 25 [1951]). Da in den verwendeten Wirbelrohren hohe Drücke (> 1 at) herrschten, war die Strömung nicht mehr laminar. Aus diesem Grunde erzielten die Autoren nur kleine und schlecht reproduzierbare Trenneffekte. Außerdem wurde der schwere Gemischanteil im Kaltgasstrom — also in der Wirbelmitte — angereichert, so daß die Zentrifugalwirkung des Wirbels als Ursache der Anreicherung ausgeschlossen werden kann.



lichen Druck annimmt, der in dem zylindrischen ruhenden Kern der Strömung herrscht. Dieser Druck ergibt sich daraus, daß das nachströmende Gas mit einer endlichen Sauggeschwindigkeit aus dem Kern abgepumpt wird. Es wurden Druckverhältnisse zwischen dem Rand und dem Kern von etwa 3 : 1 gemessen.

Wenn die infolge des Druckgradienten auftretende Diffusion als Ursache der Trennung angesehen wird, kann der Gleichgewichtstrennfaktor A_∞ aus dem Druckverhältnis P_S/P_L berechnet werden. Der Gleichgewichtstrennfaktor A_∞ ist durch

$$A_\infty = (n_{1L} n_{2S}) / (n_{1S} n_{2L}) \quad (2)$$

definiert. n ist die Teilchendichte. Die Indizes 1 und 2 beziehen sich auf die Gase 1 und 2, L und S auf die leichte und schwere Fraktion (s. auch Abb. 1). Nach CHAPMAN ist die Diffusionsgeschwindigkeit⁶

$$c_1 - c_2 = - \frac{n^2}{n_1 n_2} D \left(\frac{d(n_1/n)}{dr} + \frac{n_1 n_2 (m_2 - m_1)}{n^2 m P} \frac{dP}{dr} \right) + f(dT/dr) + f(K). \quad (3)$$

Darin bedeuten:

$n = n_1 + n_2$ die Summe der Teilchendichten der Gase 1 und 2,

m_1, m_2 = Molekülmassen der Gase 1 und 2,

$\bar{m} = \frac{n_1 m_1 + n_2 m_2}{n}$ = mittlere Molekülmasse,

\bar{c}_1, \bar{c}_2 = mittlere Geschwindigkeiten der Gasmoleküle 1 und 2,

D = Diffusionskoeffizient, P = Druck,

r = Abstand von der Rotationsachse.

Die Summanden $f(dT/dr)$ und $f(K)$ sind Beiträge der Thermodiffusion und der nicht massenproportionalen Kräfte. Der Beitrag der Thermodiffusion ist um mindestens eine Größenordnung kleiner als der beobachtete Effekt und hat im allgemeinen ein umgekehrtes Vorzeichen⁷. Beide Anteile werden im folgenden vernachlässigt. In einem ursprünglich homogenen Gasmisch $[d(n_1/n)/dr = 0]$ entsteht ein Diffusionsstrom, wenn ein Druckgradient dP/dr erzeugt wird. Hierdurch bildet sich ein endliches Konzentrationsgefälle aus, und ein Diffusionsstrom fließt in umgekehrter Richtung. Offenbar ist das Gleichgewicht erreicht, wenn beide Diffusionsströme entgegengesetzt gleich sind, wenn also

$$\bar{c}_1 - \bar{c}_2 = 0. \quad (4)$$

Daraus folgt

$$\frac{n^2}{n_1 n_2} d(n_1/n) = - \frac{m_2 - m_1}{\bar{m}} d(\ln P). \quad (5)$$

Die Integration von r_L bis r_S ergibt dann den Gleichgewichtstrennfaktor

$$A_\infty = (P_S/P_L)^{(m_2 - m_1)/\bar{m}}. \quad (6)$$

Um das Diffusionsgleichgewicht angenähert zu erreichen, ist eine bestimmte Einstellzeit erforderlich, die umgekehrt proportional zum Diffusionskoeffizienten und damit direkt proportional zum Druck anzunehmen ist.

P_S/P_L läßt sich experimentell bestimmen. Daraus kann A_∞ berechnet und mit dem gemessenen Trennfaktor A verglichen werden.

Für die Trennung der Argonisotope Ar^{36} und Ar^{40} ergibt sich [z. B. $P_S/P_L = 3$ und $(m_2 - m_1)/\bar{m} = 0,1$] ein Gleichgewichtstrennfaktor $A_\infty = 1,12$. Es wurden Werte zwischen 1,12 und 1,02 gemessen (vgl. Abb. 5 b).

Die Entstehung von Turbulenz würde den Trennvorgang erheblich stören und muß daher verhindert werden. Bei REYNOLDSSchen Zahlen Re kleiner als 2000 tritt mit Sicherheit keine Turbulenz auf. Eine Abschätzung ergibt, daß diese Bedingung bei kleineren Drücken als 5 Torr im Trennrohr erfüllt wird.

Apparatur und Meßmethode

Abb. 2 gibt den schematischen Aufbau der Anlage wieder. Aus einer Hochdruckgasflasche Gf strömt über ein Ventil Gas aus, das über eine zweite Drosselstelle durch die Düse D ins Trennrohr A tritt. Zur Druckkonstanthaltung dient ein Luftballon L, wenn die Einlaßdrücke kleiner als 1 at sind. Bei höheren Drücken muß das Bombenventil erwärmt werden, um eine Vereisung zu verhindern. Der Druck vor der Düse (Einlaßdruck P_D) wird mit einem offenen U-Rohrmanometer m_1 gemessen. Das Mantelgas wird mit einer Roots-pumpe P_1 (1000 m³/h Förderleistung bei einem Ansaugdruck von 0,1 Torr) abgesaugt. Das Kerngas gelangt durch das Schälrohr B in die ölgekühlte Rootspumpe P_2 (600 m³ pro Std. Förderleistung bei einem Ansaugdruck von 0,1 Torr). An den Stellen a' und b' befinden sich Kompressionsvakuummeter, mit denen der Druck vor den Pumpen kontrolliert wird. Diese Drücke sind bei bekannter Sauggeschwindigkeit der Pumpen ein Maß für die Gesamtdurchsatzmenge \dot{G} und das Zapfverhältnis Θ . An den Stellen a und b werden Gasproben entnommen.

Um die Zirkularströmung in radialer Richtung untersuchen zu können, wurde eine bewegliche Meßsonde

⁶ S. CHAPMAN u. T. G. COWLING, The Mathematical Theory of Non-uniform Gases, 2nd edition, Cambridge 1952.

⁷ E. W. BECKER, W. BEYRICH, K. BIER, H. BURGHOF u. F. ZIGAN, Z. Naturforsch. 12 a, 609 [1957].

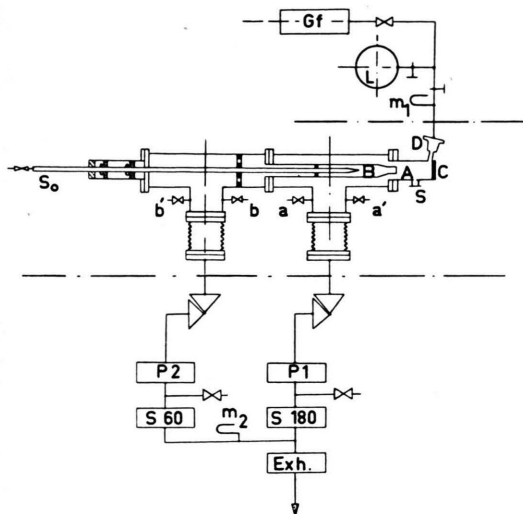


Abb. 2. Schema der Apparatur. A Trennrohr, a Abzapfstelle für das Mantelgas, a' Druckmeßstelle, B Schälrohr, b Abzapfstelle für das Kerngas, b' Druckmeßstelle, C abnehmbare Stirnfläche des Trennrohres, D Düse, Exh. Exhaustor, Gf Hochdruckgasflasche, L Luftballon, m U-Rohr-Manometer mit Hg-Füllung, P Rootspumpe, S kurzer Ansatzstutzen, S₀ verschiebbare Druckmeßsonde (4 mm Innendurchmesser), S 60 und S 180 einstufige Drehkolbenpumpen.

konstruiert, die auf den Ansatzstutzen S aufgesetzt wird. Die Ausführung gibt Abb. 3 wieder. Die Trovidursscheibe dient als Führung für das Edelstahlrohr (V2A, blankgezogen). In das Trennrohr selbst reicht nur die Sonde d. Aus strömungstechnischen Gründen durfte der Innendurchmesser der Sonde d nicht kleiner als 2,2 mm gemacht werden.

Die Stirnfläche C des Trennrohres ist eine plan- geschliffene Messingscheibe.

Der Trennrohrdurchmesser wird bei allen Versuchen konstant gehalten, die Trennrohlänge, der Düsen- und

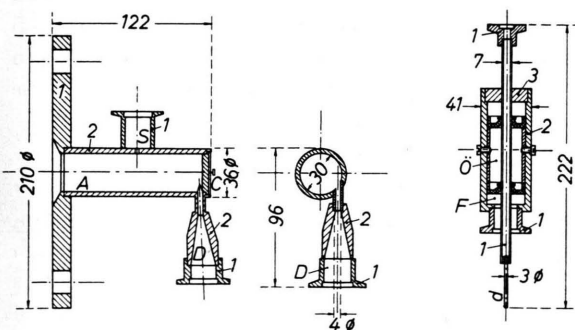


Abb. 3. Schnittzeichnungen des Trennrohres und der Druckmeß-Sonde. Bedeutung der Buchstaben wie in Abb. 2, ferner F Simmerringe, Ö Ölkammer, d Meß-Sonde aus Edelstahl (40 mm lang, 2,2 mm Innendurchmesser), Maße in Millimetern; die Zahlen in den schraffierten Flächen bedeuten: 1 = Stahl, 2 = Messing, 3 = Trovidur.

Schälrohrdurchmesser hingegen variiert. Das Schälrohr B kann bequem ausgewechselt werden (schraubbar). Seine Form erhielt es aus strömungstechnischen Gründen.

Die Strömungsquerschnitte wurden unter Berücksichtigung der Sauggeschwindigkeit so bemessen, daß das Gas mit Schallgeschwindigkeit einströmt und in der Nähe der Achse weiter expandiert und Überschallgeschwindigkeit erreicht.

Die Untersuchungen werden mit folgenden Gasgemischen durchgeführt: H₂-CO₂, Ar³⁶-Ar⁴⁰, H₂-HD. Das Gasgemisch H₂-CO₂ wird durch Messung der Wärmeleitfähigkeit analysiert. Die Wärmeleitfähigkeitszelle hat einen Inhalt von etwa 1 cm³. In ihr befindet sich eine 3 cm lange Wolframwendel (Glühlampenwendel), die an zwei Vacon-Drähten befestigt ist. Bei einem Heizstrom von 10 mA hat der Widerstand der Wendel einen Wert von etwa 200 Ohm, falls der Druck in der Zelle 10⁻⁵ Torr beträgt. Das Gasgemisch wird in der Meßzelle auf einen Druck von 50 bis 60 Torr komprimiert, so daß die Wärmeleitfähigkeit in erster Näherung nur von der Art des Gases abhängt. Bei einer Änderung der Gaszusammensetzung ändert sich die Temperatur der Wendel und damit der Widerstand. Dieser wird in einer WHEATSTONESCHEN Brückenschaltung mit einer Genauigkeit von 10⁻⁴ bestimmt. Die Akkumulatoren müssen der konstanten Spannung wegen wärmeisoliert aufgestellt werden. Die Meßzelle befindet sich in einem Kältebad von Trockeneis und Methylalkohol.

Das Häufigkeitsverhältnis der Argonisotope wird mit einem Spektrometer der Atlaswerke, Bremen (Typ CH 3-1957), das der Wasserstoffisotope mit einem HD-Gerät derselben Firma gemessen.

Meßergebnisse

1. Die Massenabhängigkeit

Abb. 4 zeigt die Abhängigkeit des Gesamtdurchsatzes \dot{G} [nl/min] von der mittleren Molekülmasse in verschiedenen Gasen. Der Ausgangsdruck P_D vor

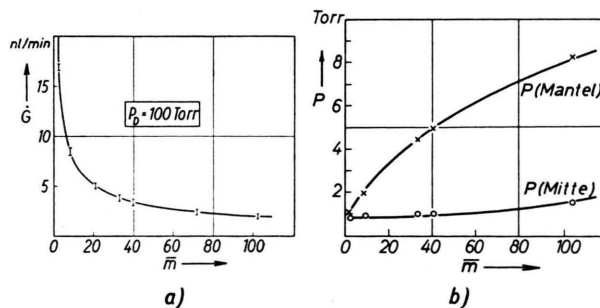


Abb. 4. Durchsatz \dot{G} bei Einlaßdruck $P_D=100$ Torr (vgl. m_1 in Abb. 2) und Druck für $r=1,5$ cm ($-x-$) und für $r=0$ ($-o-$) in Abhängigkeit von der mittleren Masse \bar{m} [G ca. 30 nl/min]. Düsendurchmesser: 2 mm, Abstand Sonde-Düse: 50 mm.

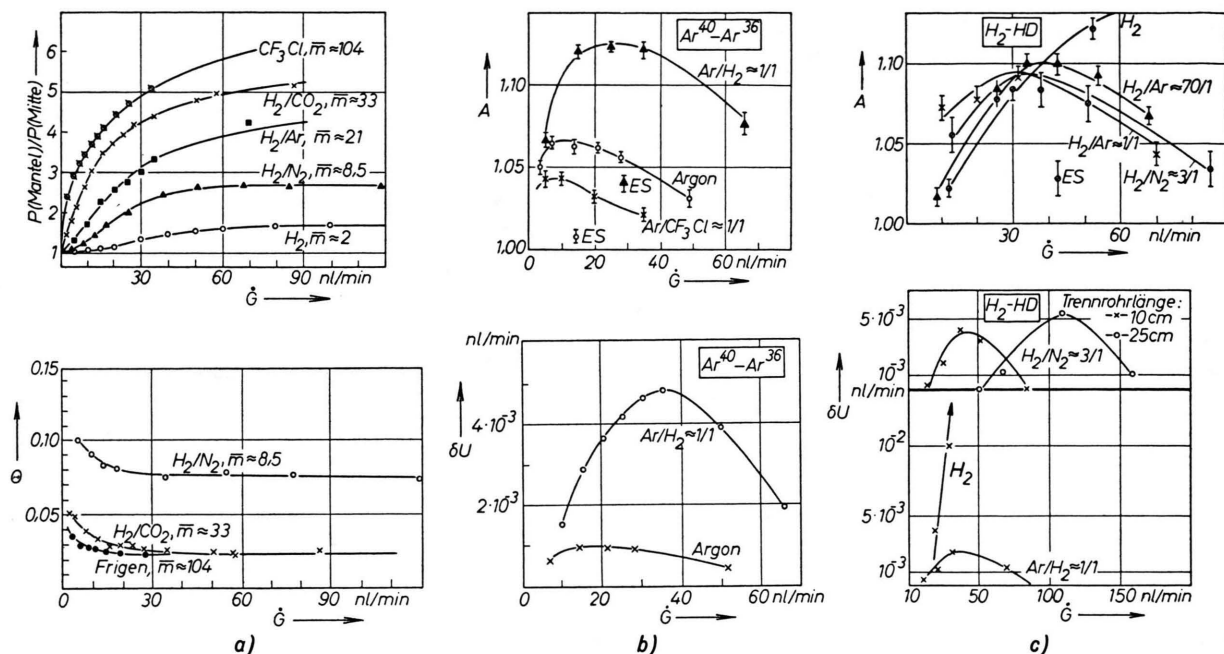


Abb. 5. Druckverhältnis $P(\text{Mantel})/P(\text{Mitte})$, Zapfverhältnis Θ , Trennfaktor A und Trennpotential δU in Abhängigkeit vom Durchsatz \dot{G} für verschiedene Gasgemische. Düsendurchmesser: 2 mm, Schälrohrdurchmesser: 10 mm, Trennrohlänge: 100 mm, Abstand Sonde—Düse: 50 mm (bei den Druckmessungen), ES Nulleffekt.

der Expansion wurde hierbei konstant auf 100 Torr gehalten. Außerdem ist die Abhängigkeit der Drücke am Rande des Trennrohres ($r = 1,5$ cm) und in der Achse ($r = 0$) von der mittleren Molekülmasse \bar{m} bei konstantem Durchsatz \dot{G} aufgetragen. Der Gesamtdurchsatz läßt sich durch die Stromdichte σ und durch den Querschnitt F^* an der engsten Stelle der Einlaßdüse ausdrücken⁸.

$$\dot{G} = F^* \sigma = F^* B \frac{P_D}{\sqrt{R T_D \bar{m}}} \sqrt{\kappa \left(\frac{2}{\kappa + 1} \right)^{(\kappa + 1)/(\kappa - 1)}} \quad (7)$$

B = Proportionalitätsfaktor,

P_D, T_D = Druck und Temperatur des Gases vor dem Eintritt in die Düse,

\bar{m} = mittleres Molekulargewicht,

κ = Adiabatenexponent.

Wenn man den Ausgangsdruck P_D bei Versuchen mit verschiedenen Gasen konstant hält, ist der Durchsatz proportional zu $1/\sqrt{\bar{m}}$. Die Abhängigkeit vom Adiabatenexponenten ist gering, weil sich der Ausdruck $\sqrt{\kappa \left(\frac{2}{\kappa + 1} \right)^{(\kappa + 1)/(\kappa - 1)}}$ nur um 28% ändert, wenn κ die Werte 1 (vielatomes Molekül) bzw. 1,67 (eiatomes Molekül) annimmt.

Abb. 5 a zeigt das Verhältnis der Drücke am Rande und in der Achse des Trennrohres sowie das Zapfverhältnis Θ (Zapfstrom der leichten Fraktion aus der Mitte des Trennrohres bezogen auf den Gesamtdurchsatz \dot{G}). Alle Kurven des Druckverhältnisses nähern sich dem Wert eins bei hinreichend kleinen \dot{G} -Werten. Das läßt sich durch den Einfluß der Reibung erklären, der besonders hoch bei kleinen Durchsätzen und damit kleinen Drücken im Trennrohr ist, während er bei großem \dot{G} praktisch verschwindet. Die Kurven für $\bar{m} = 2$ und $\bar{m} = 8,5$ erreichen daher Sättigungswerte. Weiter ergibt sich ein um so höheres Druckverhältnis, je größer die mittlere Masse ist.

Dies braucht nicht allgemein gültig zu sein. Der Adiabatenexponent, sowie die Voraussetzungen der jeweiligen Apparatur mit ihren Strömungswiderständen und Pumpgeschwindigkeiten werden vermutlich einen erheblichen Einfluß auf das rotierende Gas ausüben. Das Zapfverhältnis ist für $\dot{G} > 20$ nl/min praktisch konstant.

Um den Einfluß der mittleren Masse auf den Trennfaktor untersuchen zu können, wurden ver-

⁸ E. SCHMIDT, Thermodynamik, 4. Auflage, S. 266, Springer-Verlag, Berlin 1950.

schiedene Gemische von Argon und Wasserstoff und von Argon und Frigen (CF_3Cl) hergestellt⁹.

Bei der Trennung der Argonisotope Ar^{36} – Ar^{40} ergab sich ein um so größerer Trennfaktor, je leichter das Gemisch war (Abb. 5 b).

Dieses Ergebnis zeigt, daß der Gleichgewichtstrennfaktor meistens nicht erreicht wird [Gl. (6)], denn sonst müßte der Trennfaktor um so größer sein, je größer das Druckverhältnis und nach Abb. 4 die mittlere Masse sind. Durch das Beimischen von leichtem Wasserstoff wird der Diffusionskoeffizient vergrößert und dadurch die Annäherung an den Gleichgewichtstrennfaktor verbessert. Auch die Abhängigkeit des Trennfaktors vom Durchsatz zeigt, daß der Trennfaktor A meistens wesentlich kleiner als der Gleichgewichtstrennfaktor A_∞ ist. Jede Kurve hat ein Maximum bei einem bestimmten Durchsatz. Bei kleineren Durchsätzen wirkt sich das kleinere Druckverhältnis und das größere Zapfverhältnis aus. Mit zunehmendem Durchsatz und der damit einhergehenden Druckerhöhung steigt der Trennfaktor A an, weil der Reibungseinfluß geringer wird. Der Trennfaktor sinkt jedoch wieder bei weiterer Steigerung des Durchsatzes, verursacht durch den kleinen Diffusionskoeffizienten bei hohem Druck.

Abb. 5 c zeigt den Trennfaktor für das Gemisch H_2 – HD. Bei Durchsätzen $\dot{G} > 50$ nl/min ist auch hier der Trennfaktor um so größer, je kleiner die mittlere Masse ist. Die Kurven zeigen ein Maximum. (Bei dem Isotopengemisch H_2 – HD, $\bar{m} = 2$, fiel der Trennfaktor beim Durchsatz $\dot{G} = 200$ nl/min auf 1,02 ab.) Im Bereich kleiner Durchsätze ($\dot{G} < 30$ nl pro min) ist dagegen der Trennfaktor um so größer, je größer die mittlere Masse ist, wie man es auf Grund des größeren Druckverhältnisses (Abb. 5 a) erwarten sollte, wenn der Gleichgewichtstrennfaktor angenähert erreicht wird. Bei den hier benutzten leichten Mischungen ($\bar{m} = 2$ bis $\bar{m} = 21$) ist eine gute Annäherung an den Gleichgewichtstrennfaktor auch eher zu vermuten als bei den schwereren der Abb. 5 b ($\bar{m} = 21$ bis $\bar{m} = 72$). In den Abb. 5 b und 5 c sind auch die Trennpotentiale δU wiedergege-

ben. Nach COHEN¹⁰ ist das Trennpotential ein quantitatives Maß für die Trennleistung eines Trennelementes. Für $A - 1 \ll 1$ gilt¹¹:

$$\delta U = \frac{\Theta}{1 - \Theta} \frac{\dot{G}(A - 1)^2}{2}. \quad (8)$$

Bei der Messung der Trennfaktoren A ist ein Nulleffekt zu berücksichtigen (A_0), der auch ohne Zirkularströmung auftritt. Der Effekt wird gemessen, indem in das Trennrohr eine Störblende eingeführt wird. Dies ist eine Lochscheibe aus Messing, deren Außendurchmesser dem Innendurchmesser des Trennrohres entspricht. Sie wird so ins Trennrohr eingeführt, daß sich die Düse zwischen ihr und der Stirnfläche C (Abb. 3) befindet. Infolgedessen kann sich im Trennrohr keine Zirkulation ausbilden. Die auf diese Weise gemessene Konzentrationsverschiebung wird als Nulleffekt bezeichnet. Wenn das Gas durch den Ansatzstutzen S (vgl. Abb. 3) eingelassen wird, ergibt sich innerhalb der Meßgenauigkeit der gleiche Trennfaktor A_0 wie mit der Störblende.

In den Abbildungen ist der Nulleffekt mit „ELs“ bezeichnet, falls die Zirkulation durch die Blende gestört war, mit „ES“, falls das Gas durch den Ansatzstutzen S ins Trennrohr eintrat. Der Trennfaktor A ist das Produkt aus den Trennfaktoren der reinen Zirkularströmung A_{St} und der Pumpanordnung A_0 , d. h. $A = A_{\text{St}} A_0$.

Bei der Ausrechnung des Trennpotentials δU wird der Trennfaktor A_{St} verwendet.

2. Messungen in radialer Richtung

Zur Messung des Druckes und des Trennfaktors in Abhängigkeit vom radialen Abstand von der Achse wird eine bewegliche Meßsonde (vgl. Abb. 3) verwendet. Die Ergebnisse sind in Abb. 6 dargestellt.

Die Drücke fallen zur Achse hin steil ab (vgl. Abb. 6 a). Von $r = 9$ mm bis zur Achse ($r = 0$) ist der Druck bei kleinen Durchsätzen nahezu konstant. Daraus folgt, daß ein nicht rotierender Gaskern existiert, wie es die Gasdynamik fordert.

⁹ Untersuchungen mit dem natürlichen Quecksilberisotopengemisch in der Dampfphase ($m = 198, 199, 200, 201, 202$ und 204) ergaben bei einem Durchsatz $\dot{G} = (40 \pm 2)$ g/min (Kompressionsverhältnis 1 : 150) und einem Zapfverhältnis $\Theta = 0,034$ folgende Trennfaktoren:

$m_2 - m_1 = m - 198 = 1 ; 2 ; 3 ; 4 ; 6$
 $A = 1,0006 ; 1,0028 ; 1,0043 ; 1,0057 ; 1,0083$.

Der Meßfehler der einzelnen Meßreihe war kleiner als $\pm 0,0005$; die Reproduzierbarkeit jedoch lag in den Gren-

zen $\pm 0,0015$. — L. SCHOTTEN, Staatsexamensarbeit, Bonn 1961.

¹⁰ K. COHEN u. G. M. MURPHEY, The Theory of Isotope Separation, National Nuclear Energy Series, III-1 B, McGraw-Hill, New York 1951.

¹¹ Ausführliche Darstellung des unsymmetrischen Trennprozesses bei W. BULANG, W. GROTH, I. JORDAN, W. KOLBE, E. NANN und K. H. WELGE, Z. physik. Chem., N.F. **24**, 249 [1960].

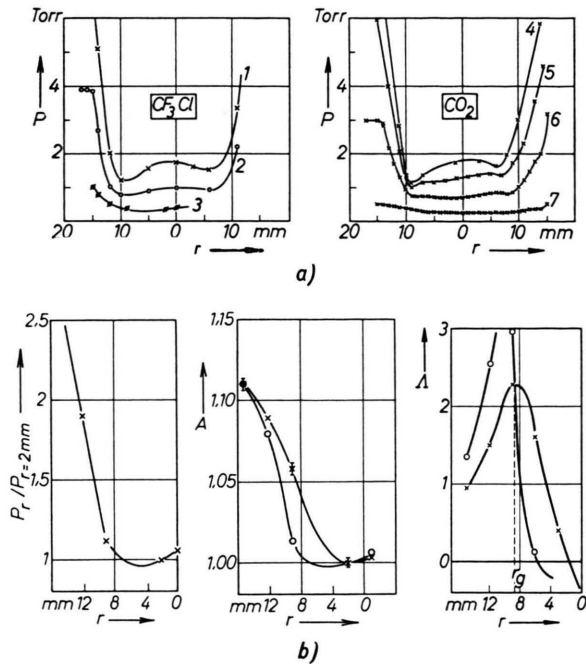


Abb. 6 a und b. Druck P bei Frigen und CO_2 sowie Druckverhältnis $P_r/P_{r=2\text{ mm}}$, Trennfaktor A und $\Delta = (A_{LS} - 1)/r_{LS}$ bei Argon in Abhängigkeit vom Trennradius r . Düsendurchmesser: 2 mm, Abstand Sonde—Düse: 50 mm (bei CF_3Cl und CO_2), 100 mm (bei Argon); Kurvenparameter Gesamtdurchsatz \dot{G} , oben: (1) ca. 31 nl/min, (2) ca. 15 nl/min, (3) ca. 4,5 nl/min, (4) ca. 55 nl/min, (5) ca. 40 nl/min, (6) ca. 20 nl/min, (7) ca. 4 nl/min, unten: $\dot{G} = 10$ nl/min. —x— experimentelle, —o— berechnete Kurve.

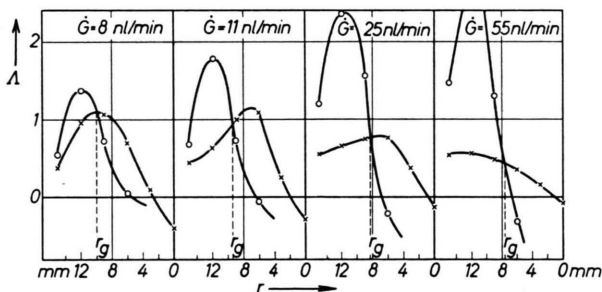


Abb. 6 c. $A = (A_{LS} - 1)/r_{LS}$ in Abhängigkeit vom Trennradius r für das Gasgemisch $\text{H}_2/\text{CO}_2 = 1/3$. Düsendurchmesser: 2 mm, Abstand Sonde—Düse: 100 mm, Gesamtdurchsatz \dot{G} als Parameter. —x— experimentelle, —o— berechnete Kurve.

Die Verschiebung des Konzentrationsverhältnisses ist in einer Entfernung von etwa 2 mm von der Rohrachse am stärksten. Diese Stelle wird als Bezugspunkt gewählt, d. h. an dieser Stelle werden der Trennfaktor und das Druckverhältnis willkürlich gleich 1 gesetzt. In Abb. 6 b sind außer den ge-

messenen Kurven auch berechnete dargestellt. Berechnet wurde der Gleichgewichtstrennfaktor A_∞ nach Gl. (6).

Ein Vergleich der gemessenen und der berechneten Kurve ermöglicht es, qualitative Aussagen über die Einstellung des Gleichgewichtes zu machen. Jedoch ist eine gewisse Willkür durch die Wahl des Bezugspunktes gegeben. Es ist nicht möglich, Aussagen über die Einstellung des Gleichgewichtes in Abhängigkeit von r zu machen. Daher wurde folgendes Auswertverfahren angewandt, das unabhängig von der Wahl eines willkürlichen Bezugspunktes ist und den Vergleich der gemessenen Konzentrationsverschiebung mit dem Gleichgewichtswert Punkt für Punkt ermöglicht:

Denkt man sich das Trennrrohr in Zylinder der Dicke r_{LS} (Anm. ¹²) mit dem äußeren Druck P_S und dem inneren Druck P_L unterteilt und betrachtet man die einzelne laminare Schicht, dann kann in dieser Schicht unter Anwendung von Gl. (6) der Trennfaktor

$$A_{LS\infty} = (P_S/P_L)^{\Delta m/m} \quad (9)$$

berechnet und mit dem experimentell gefundenen Trennfaktor

$$A_{LS} = \left(\frac{n_1}{n_2} \right)_L / \left(\frac{n_1}{n_2} \right)_S \quad (10)$$

verglichen werden. Der Vergleich $A_{LS\infty}$ und A_{LS} erlaubt eine Aussage über die Gleichgewichtseinstellung in jedem Teilzylinder.

Wenn $P_L \approx P_S$ und $r_{LS} \approx 0$, kann Gl. (9) an der Stelle P_L nach dem TAYLORSchen Satz entwickelt werden. Es ergibt sich daraus

$$A_\infty = \frac{dA_{LS\infty}}{dr} = \frac{A_{LS\infty} - 1}{r_{LS}} = \frac{\Delta m}{m} \frac{d(\ln P)}{dr}. \quad (11)$$

Analog folgt aus Gl. (10)

$$A = \frac{dA_{LS}}{dr} = \frac{A_{LS} - 1}{r_{LS}} = \frac{d(\ln n_1/n_2)}{dr}. \quad (12)$$

Eine einfache Umformung ergibt, daß die Größen A_∞ und A mit den in Abb. 6 b aufgetragenen Größen A_∞ und A , die aus dem Experiment folgten, in folgender Weise zusammenhängen:

$$A_\infty = \frac{A_{LS\infty} - 1}{r_{LS}} = \frac{1}{A_\infty} \frac{dA_\infty}{dr}, \quad (13)$$

$$A = \frac{A_{LS} - 1}{r_{LS}} = \frac{1}{A} \frac{dA}{dr}. \quad (14)$$

¹² Vgl. Abb. 1: r_{LS} = Differenz der Radien r_S , r_L , falls $r_S \approx r_L$.

Diese beiden Größen sind in Abb. 6 b und c dargestellt. Sie sind ein unmittelbares Maß für die Trennung in einer dünnen Schicht und die Annäherung an das Gleichgewicht an jeder Stelle.

Die Kurven (Abb. 6 c) weisen folgende Merkmale auf:

1. Sie besitzen Maxima.
2. Bei einem Radius r_g schneiden sich die Kurven A_∞ und A .
3. Die Differenz $A_\infty - A$ ist
im Bereich $r > r_g$ positiv und
im Bereich $r < r_g$ negativ.

Das Absinken von A_∞ am Rande erklärt sich durch den Einfluß der äußeren Reibung an der Rohrwand¹³.

In der Mitte des Rohres wirkt sich die innere Reibung infolge des niedrigen Druckes und des ruhenden Gaskernes aus.

Die Annäherung an das Diffusionsgleichgewicht erfordert eine endliche Zeit, die um so größer ist, je kleiner der Diffusionskoeffizient, d. h. je größer der Druck und die Masse sind. Deshalb wäre zu erwarten, daß der experimentell gefundene Trennfaktor stets kleiner als der Gleichgewichtstrennfaktor ist, wie es auch tatsächlich am Rande ($r > r_g$) beobachtet wird. Daß dies in der Mitte ($r < r_g$) nicht gilt, kann folgendermaßen erklärt werden:

Auf seinem Wege von der Einlaßdüse bis zur Meßstelle wird das Gas zunächst infolge der Expansion beschleunigt und dann durch den Einfluß der Reibung allmählich wieder abgebremst. Der Druckgradient bzw. das Druckverhältnis (Mantel- zu Achsdruck) nimmt dementsprechend zunächst große und später kleine Werte an (s. Abb. 10). In gleicher Weise verhält sich auch der aus dem Druckverhältnis berechnete Gleichgewichtstrennfaktor A_∞ [Gl. (6)]. Zunächst entsteht im Trennrohr auf Grund des großen Druckverhältnisses eine starke Anreicherung durch Druckdiffusion, auch wenn der Gleichgewichtswert nicht erreicht wird. Wenn das Gas im Rohr weiterströmt, werden das Druckverhältnis und der Gleichgewichtstrennfaktor kleiner. An einer bestimmten Stelle nimmt daher der Gleichgewichtstrennfaktor den Wert des gemessenen Trennfaktors und in noch größerer Entfernung vom Einlaß sogar

kleinere Werte an. Die beobachtete Konzentrationsverschiebung wird also durch einen Druckgradienten verursacht, der vor dem Zeitpunkt der Messung geherrscht hat. Das ist möglich, weil sich der Druck mit einer höheren Geschwindigkeit als die Diffusionsgeschwindigkeit – nämlich mit Schallgeschwindigkeit – ausbreitet.

Diese Retardierung der Konzentrationsverschiebung ist um so größer, je schneller das Gas abgebremst wird. Daher ist $A_\infty - A$ am Rande klein infolge Wandreibung und in der Mitte infolge der Reibung am ruhenden Kern. $A_\infty - A$ ist um so kleiner, je kleiner der Durchsatz und je kleiner die mittlere Masse und damit je größer der Reibungseinfluß sind. Das Gebiet besonders starker Retardierung, in dem $A_\infty - A < 1$, ist um so größer, je größer der Reibungseinfluß ist.

3. Abhängigkeit vom Schälrohrdurchmesser

Je größer der Schälrohrdurchmesser, desto größer ist das Zapfverhältnis und desto kleiner der Trennfaktor (s. Abb. 7). Das Trennpotential [Gl. (8)] weist bei einem bestimmten Durchmesser ein Maximum auf.

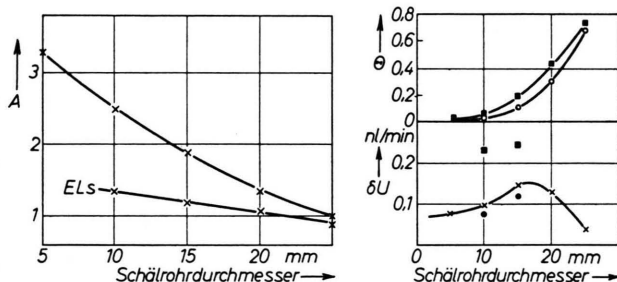


Abb. 7. Trennfaktor A [\dot{G} ca. 7,5 nl/min], Zapfverhältnis Θ und Trennpotential δU in Abhängigkeit vom Schälrohrdurchmesser für verschiedene Durchsätze; —■— 3 nl/min, —x— 4 nl/min, —●— 7,5 nl/min, —○— 10 nl/min. ELs = Null-Effekt, Düsendurchmesser: 2 mm, Trennrohlänge: 100 mm, Gasgemisch: $H_2/CO_2 = 1/3$.

4. Abhängigkeit vom Durchmesser der Einlaßdüse

Der Düsendurchmesser hat einen erheblichen Einfluß auf den Strömungsvorgang. Wenn z. B. der Düsendurchmesser (engster Querschnitt der Düse) um den Faktor 4 vergrößert wird (vgl. Abb. 8), ändert sich bei gleichem Durchsatz der Ausgangsdruck P_D um den Faktor 16. Dadurch werden das Expansionsverhältnis, die Geschwindigkeit und das Druckverhältnis kleiner.

¹³ Durch Rotation des Mantels (analog einer Ultrazentrifuge) ließe sich bei feststehender Düse die äußere Reibung weitgehend vermeiden, d. h. es wären weitaus größere Druckverhältnisse und Trennfaktoren zu erreichen.

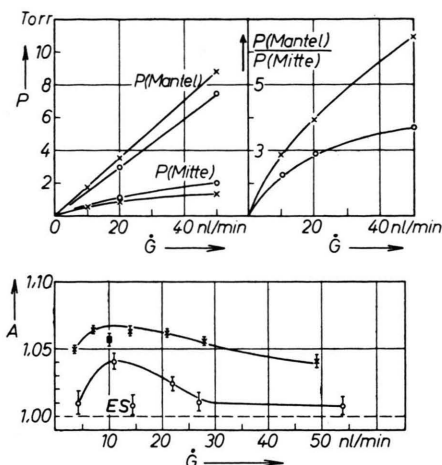


Abb. 8. Druck P , Druckverhältnis $P(\text{Mantel})/P(\text{Mitte})$ und Trennfaktor A in Abhängigkeit vom Durchsatz \dot{G} für verschiedene Düsendurchmesser bei Argon. Abstand Sonde—Düse: 50 mm, Trennrohlänge: 100 mm, Schälrohrdurchmesser: 10 mm, ES=Nulleffekt. —x— 2 mm, ■ 4 mm, —o— 8 mm Düsendurchmesser.

Je größer der Düsenquerschnitt ist, desto größer ist das Zapfverhältnis und desto kleiner der Trennfaktor.

Der Düsendurchmesser ist von Interesse, weil die Druck-Volumen-Arbeit, die beim Durchströmen der Düse geleistet wird, eine der spezifischen Aufwandgrößen des Trennelementes darstellt⁷.

Obwohl das maximale Trennpotential mit zunehmendem Düsendurchmesser abnimmt (Abb. 9), ist ein Trennrohr mit einer Düse von 4 mm Durchmesser im Hinblick auf den spezifischen Aufwand günstiger als ein solches mit einer Düse von 2 mm Durchmesser; denn es ergibt sich, daß die spezifische Kompressionsarbeit $[RT \int d(\ln P)/\delta U_{\max}]$ mit der Düse von 2 mm Durchmesser um den Faktor 1,12 größer ist als die mit der Düse von 4 mm Durchmesser.

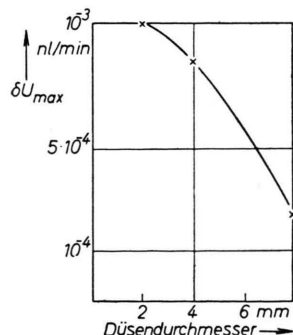


Abb. 9. Maximales Trennpotential δU_{\max} in Abhängigkeit vom Düsendurchmesser bei Argon. Trennrohlänge: 100 mm, Schälrohrdurchmesser: 10 mm.

¹⁴ L. PRANDTL, Führer durch die Strömungslehre, 4. Auflage, S. 102, Verlag Friedr. Vieweg u. Sohn, Braunschweig 1956.

5. Abhängigkeit von der Trennrohlänge

Abb. 10 zeigt den Trennfaktor, das Druckverhältnis und das Zapfverhältnis in Abhängigkeit von der Rohrlänge.

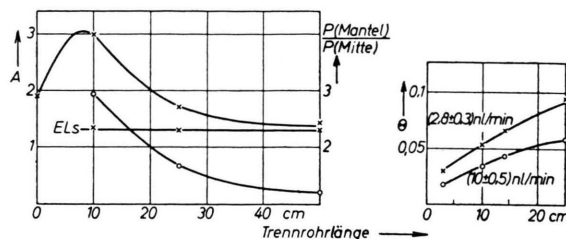


Abb. 10. Trennfaktor A (—x—), Druckverhältnis $P(\text{Mantel})/P(\text{Mitte})$ (—o—) [\dot{G} ca. 11 nl/min] und Zapfverhältnis θ in Abhängigkeit von der Trennrohlänge l bei dem Gemisch $\text{H}_2/\text{CO}_3=1/3$. Düsendurchmesser: 2 mm, Schälrohrdurchmesser: 10 mm, ELs=Nulleffekt.

Der Trennfaktor A für $l=0$ cm wurde so ermittelt, daß das Mantelgas wie üblich abgepumpt wurde, das Kerngas jedoch durch ein Loch von 10 mm Durchmesser, das sich in der Stirnfläche C befand (vgl. Abb. 3). Je länger das Rohr ist, desto länger verweilt das Gas im Rohr und desto besser kann sich das Diffusionsgleichgewicht einstellen. Folglich steigt der Trennfaktor zunächst an. In langen Rohren wird das Gas aber so stark abgebremst, daß das Druckverhältnis und der Trennfaktor sehr klein werden. Die Änderung des Druckverhältnisses mit der Trennrohlänge gibt ein anschauliches Maß für die Abbremsung des Gases¹³.

Mit zunehmender Rohrlänge steigt das Zapfverhältnis an, weil das Druckverhältnis kleiner wird.

In Abb. 11 wurde der Druck mit der Sonde d (s. Abb. 3) an drei verschiedenen Stellen gemessen, die 5, 10 bzw. 14 cm von der Düse entfernt sind.

Die durch Reibung entstehende Grenzschicht an der festen Wand des Trennrohres und an dem ruhenden Gaskern hat eine Dicke¹⁴

$$\delta \sim \sqrt{\frac{\nu x}{w}} \sim \sqrt{\frac{x}{P w}}, \quad (15)$$

ν = kinematische Zähigkeit, x = vom Gas zurückgelegter Weg, w = Geschwindigkeit.

Da der Druck P etwa proportional zu dem Durchsatz \dot{G} ansteigt, wäre für konstante Werte x/\dot{G} der gleiche Reibungseinfluß zu erwarten, d. h. ein konstanter Wert des Druckverhältnisses. Aus der Abhängigkeit des Druckverhältnisses vom Durchsatz \dot{G} folgt, daß dies im Bereich starker Reibung, d. h. kleiner Durchsätze, angenähert zutrifft, aber nicht

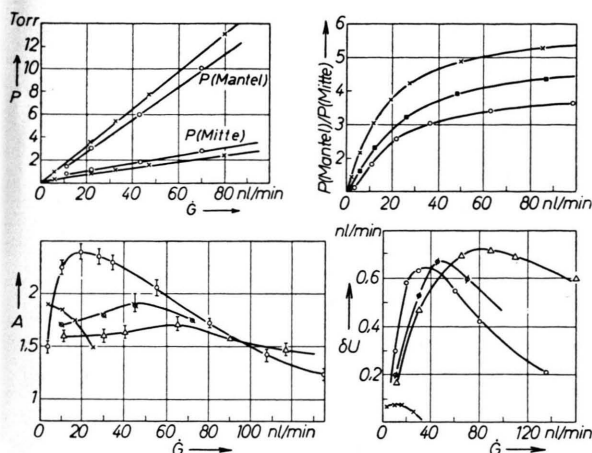


Abb. 11. Druck, Druckverhältnis $P(\text{Mantel})/P(\text{Mitte})$, Trennfaktor A und Trennpotential δU in Abhängigkeit vom Durchsatz \dot{G} für verschiedene Trennröhlängen beim Gemisch $\text{H}_2/\text{CO}_2=1/3$. Düsendurchmesser: 2 mm, Schälrohrdurchmesser: 10 mm. Kurvenparameter oben: Abstand Sonde—Düse (—x— 5 cm, —■— 10 cm, —○— 14 cm); unten: Trennröhlänge (—x— 3 cm, —○— 10 cm, —Δ— 14 cm, —△— 25 cm).

im Bereich großer Durchsätze. Deshalb ist anzunehmen, daß nicht nur die Reibung die Tangentialgeschwindigkeit herabsetzt, sondern daß auch ohne

Reibung die Tangentialgeschwindigkeit um so kleiner wird, je größer der Abstand vom Einlaß ist. Dies könnte z. B. durch eine Expansion des Gases und eine entsprechende Beschleunigung in Richtung der Rohrachse hervorgerufen werden.

Die maximalen Trennfaktoren werden bei um so höheren Durchsätzen gefunden, je länger das Trennröhr ist. Das Maximum des 10 cm langen Rohres ist am größten, die Maxima der längeren Rohre sind entsprechend den kleineren Druckverhältnissen kleiner.

In dem kurzen Rohr (3 cm) scheint die Zeit zur Annäherung an das Gleichgewicht zu klein zu sein.

Die nach Gl. (8) berechneten Trennpotentiale weisen entsprechende Höchstwerte auf, die jedoch zu größeren Durchsatzwerten verschoben sind, weil der Durchsatz selbst als Faktor in das Trennpotential eingeht.

Herrn Professor Dr. W. GROTH danken wir für wertvolle Diskussionen und die starke Förderung, die er dieser Arbeit in jeder Weise zuteil werden ließ. Die Arbeit wurde mit Mitteln durchgeführt, die von dem Ministerium für Wirtschaft und Verkehr des Landes Nordrhein-Westfalen dankenswerterweise zur Verfügung gestellt wurden.

Ein Verfahren zur Bestimmung von Halbwertszeiten kurzlebiger gasförmiger Radioisotope. Die Halbwertszeiten des Thorons (^{220}Rn) und Actinons (^{219}Rn)

VON HEINZ RODENBUSCH * und GÜNTER HERRMANN

Aus dem Institut für Anorganische Chemie und Kernchemie der Universität Mainz

(Z. Naturforsch. 16 a, 577—582 [1961]; eingegangen am 17. November 1960)

Es wird ein Verfahren zur indirekten Bestimmung von Halbwertszeiten kurzlebiger gasförmiger Radioisotope beschrieben. Das Verfahren beruht auf einem zuerst von MAKOWER und GEIGER benutzten Prinzip; Voraussetzung ist, daß aus den gasförmigen Radioisotopen positiv geladene, relativ langlebige Folgeprodukte entstehen. Die gasförmigen Isotope werden mit einem Trägergas durch ein Rohr getrieben, in dem negativ geladene Netzelektroden angebracht sind. Die Folgeprodukte scheiden sich auf den Elektroden ab. Nach der Exposition wird die Aktivität der Elektroden gemessen; sie nimmt mit wachsender Entfernung von der Quelle exponentiell ab. Aus der Abnahme und der Strömungsgeschwindigkeit ergibt sich die Halbwertszeit der gasförmigen Muttersubstanz. Das Verfahren wurde mit Thoron und Actinon geprüft und Halbwertszeiten von $56,6 \pm 0,8$ bzw. $4,01 \pm 0,06$ sec gefunden. Bei direkten Zerfallsmessungen ergaben sich übereinstimmende Werte von $56,3 \pm 0,2$ bzw. $4,00 \pm 0,05$ sec. Der Einfluß der Elektrodenspannung, des Trägergases und der Strömungsgeschwindigkeit auf die Abscheidung wurde untersucht. Bei hohen Elektroden- spannungen werden die Folgeprodukte im Mittelpunkt der Elektroden fokussiert.

Bei der Kernspaltung entstehen zahlreiche kurzlebige Radioisotope, deren Spaltausbeuten für die Aufklärung des Spaltungsprozesses besonders in-

teressant sind. Zur Ausbeutebestimmung müssen die wichtigsten Eigenschaften der Isotope, vor allem die Halbwertszeiten, bekannt sein. Der rasche Zerfall erschwert die Abtrennung und Untersuchung sehr. Deshalb liegt es nahe, Verfahren zu verwenden,

* Auszug aus einer Dissertation, Mainz 1960.