

- <sup>1</sup> H. Kopfermann, Nuclear Moments, Academic Press, New York 1958.
- <sup>2</sup> H. Bucka, J. Phys. Radium **30**, Suppl. C 1–3 [1969].
- <sup>3</sup> G. v. Oppen u. H. W. Popp, Physica **63**, 104 [1973].
- <sup>4</sup> F. Bloch, Phys. Rev. **70**, 460 [1946].
- <sup>5</sup> I. I. Rabi, Phys. Rev. **49**, 324 [1936] und **51**, 652 [1937].
- <sup>6</sup> S. Millman, Phys. Rev. **55**, 628 [1939].
- <sup>7</sup> G. v. Oppen, Z. Physik **227**, 207 [1969].
- <sup>8</sup> H. H. Stroke, G. Fulop, S. Kelpner u. O. Redi, Phys. Rev. Letters **21**, 61 [1968].
- <sup>9</sup> J. C. Lehmann, Phys. Rev. **178**, 207 [1969].
- <sup>10</sup> J. P. Barrat, Proc. Roy. Soc. London A **263**, 371 [1961].
- <sup>11</sup> C. Cohen-Tannoudji, Ann. Phys. (Paris) **7**, 423 [1962].
- <sup>12</sup> E. Purcell, H. Torrey u. R. Pound, Phys. Rev. **69**, 37 [1946].
- <sup>13</sup> G. Breit, Rev. Mod. Phys. **2**, 91 [1933].
- <sup>14</sup> G. v. Oppen, Physica **63**, 95 [1973].

## Die physikalischen Grundlagen der Uran<sup>235</sup>-Anreicherung nach dem Trenndüsenverfahren

### II. Vergleich der leichten Zusatzgase H<sub>2</sub>, He und D<sub>2</sub>

W. Bier, G. Eisenbeiß und G. Heeschen

Institut für Kernverfahrenstechnik der Universität und des Kernforschungszentrums Karlsruhe

(Z. Naturforsch. **28 a**, 1267–1272 [1973]; eingegangen am 18. April 1973)

*The Physics of Uranium<sup>235</sup>-Enrichment in the Separation Nozzle Process*  
II. A comparison of the added light gases H<sub>2</sub>, He, and D<sub>2</sub>

The effects of the added light gases H<sub>2</sub>, He, and D<sub>2</sub> on the separation of the uranium isotopes in the separation nozzle process are compared experimentally. The superiority of H<sub>2</sub> under economically optimum conditions turns out to be caused essentially by its less dissipative nozzle flow characterized by a higher Reynolds number. This advantage is decreased if differences in the flow velocity lose their effects on isotope separation, e. g. at higher expansion ratios. Thus, with He added, the isotope separation effects can get closer to those observed with H<sub>2</sub>; D<sub>2</sub> even can get better than H<sub>2</sub>, because He and D<sub>2</sub> prevent more efficiently UF<sub>6</sub> from concentrating rapidly at the outer nozzle wall.

### I. Einleitung

Bei der Trennung der Uranisotope nach dem Trenndüsenverfahren wird als Verfahrensgas ein Gemisch aus Uranhexafluorid (UF<sub>6</sub>) und einem leichten Zusatzgas verwendet<sup>1</sup>. Dabei übt, wie die theoretische Analyse des Trennvorganges gezeigt hat, das leichte Zusatzgas in zweifacher Hinsicht einen positiven Einfluß auf die Isotopentrennung aus<sup>2</sup>: erstens wird durch die Verminderung der mittleren Masse des Verfahrensgases die Strömungsgeschwindigkeit in der Düse und damit die entmischende Zentrifugalkraft gesteigert, und zweitens verzögert das Zusatzgas die Einstellung der barometrischen Dichteverteilung des UF<sub>6</sub>, wodurch die der Entmischung entgegenwirkende Konzentrationsdiffusion kleiner wird.

Die bisherigen Untersuchungen wurden weitgehend mit Helium oder Wasserstoff als Zusatzgas durchgeführt. Dabei zeigte es sich, daß unter den

zur Zeit als optimal geltenden Betriebsbedingungen Wasserstoff zu deutlich günstigeren spezifischen Aufwandsgrößen führt als Helium<sup>3</sup>. Andererseits bedingt die chemische Reaktionsfähigkeit des Wasserstoffs und seine stärkere Abtrennung vom UF<sub>6</sub> technische Nachteile, die den aus den Aufwandsgrößen ablesbaren Vorzug des Wasserstoffs gegenüber Helium teilweise kompensieren können. Insbesondere bei wesentlichen Veränderungen des Trennsystems, wie sie bei der Weiterentwicklung des Trenndüsenverfahrens in Erwägung zu ziehen sind, muß daher damit gerechnet werden, daß Helium auch zu wirtschaftlich günstigeren Ergebnissen führen kann. Man ist aus diesem Grund an einer möglichst genauen Kenntnis der unter verschiedenen Betriebsbedingungen zu erwartenden Unterschiede der Wirkung der leichten Zusatzgase interessiert.

Um die empirischen Kenntnisse der unterschiedlichen Wirkung der Zusatzgase zu erweitern, wurden für die vorliegende Arbeit systematische Trennversuche nicht nur mit den Zusatzgasen Wasserstoff und Helium, sondern auch mit Deuterium durchgeführt. Durch Vergleich dieser Ergebnisse mit den

Sonderdruckanforderungen an das Institut für Kernverfahrenstechnik der Kernforschungszentrums Karlsruhe, D-7500 Karlsruhe, Postfach 3640.



Dieses Werk wurde im Jahr 2013 vom Verlag Zeitschrift für Naturforschung in Zusammenarbeit mit der Max-Planck-Gesellschaft zur Förderung der Wissenschaften e.V. digitalisiert und unter folgender Lizenz veröffentlicht: Creative Commons Namensnennung-Keine Bearbeitung 3.0 Deutschland Lizenz.

Zum 01.01.2015 ist eine Anpassung der Lizenzbedingungen (Entfall der Creative Commons Lizenzbedingung „Keine Bearbeitung“) beabsichtigt, um eine Nachnutzung auch im Rahmen zukünftiger wissenschaftlicher Nutzungsformen zu ermöglichen.

This work has been digitalized and published in 2013 by Verlag Zeitschrift für Naturforschung in cooperation with the Max Planck Society for the Advancement of Science under a Creative Commons Attribution-NoDerivs 3.0 Germany License.

On 01.01.2015 it is planned to change the License Conditions (the removal of the Creative Commons License condition "no derivative works"). This is to allow reuse in the area of future scientific usage.

Aussagen der vorliegenden Theorie werden Anhaltspunkte für das voraussichtliche Verhalten der verschiedenen Gemische unter bisher nicht untersuchten Bedingungen gewonnen. Dabei erweist sich die Einbeziehung des Deuteriums als Zusatzgas in die experimentelle Untersuchung nicht nur als wesentlich für die Interpretation der unterschiedlichen Verhaltensweisen der Zusatzgase Wasserstoff und Helium, sondern sie zeigt, daß die Verwendung von Deuterium als Alternative zum leichten Wasserstoff auch unter wirtschaftlichen Gesichtspunkten interessant sein kann.

Aus den Experimenten und ihrer Interpretation geht hervor, daß der Vorteil des leichten Wasserstoffs gegenüber Helium und Deuterium im wesentlichen durch den geringeren Reibungseinfluß bei der Ausbildung der Strömung in der Trenndüse hervorgerufen wird. Dieser Vorteil des Wasserstoffs wird jedoch abgebaut, wenn die Unterschiede in der Strömungsgeschwindigkeit z. B. bei hohen Expansionsverhältnissen an Einfluß auf die Isotopentrennung verlieren und dadurch das bessere Verhalten von Helium und Deuterium hinsichtlich des in <sup>2</sup> beschriebenen Verzögerungseffektes an Bedeutung gewinnt.

## 2. Verwendetes Trenndüsen-System und Definition der Meßgrößen

Abbildung 1 zeigt das Schnittbild und die Abmessungen des verwendeten Trennsystems (Laborsystem XIII)<sup>4</sup>. Es besteht aus dem Düsenblech, der Umlenkwand und dem Abschälerblech. Das Düsenblech ist so geformt, daß es zusammen mit der Umlenkwand eine gekrümmte, schlitzförmige Düse mit der engsten Düsenweite  $a$  bildet. Dieser Düse wird das Gemisch aus  $\text{UF}_6$  und einem der drei Zusatzgase  $\text{H}_2$ ,  $\text{He}$  oder  $\text{D}_2$  mit dem Volumenstrom  $L$  unter dem Einlaßdruck  $p_0$  zugeführt. Der durch die Umlenkwand gekrümmte Strahl, in dem sich die Komponenten teilweise entmischen, wird durch das Abschälerblech in die leichte und schwere Fraktion aufgeteilt. Die in diesen beiden Fraktionen herrschenden Absaugdrücke werden mit  $p_M$  und  $p_K$  bezeichnet. Sie sind bei den im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Versuchen stets gleich.

Das Aufteilungsverhältnis der beiden Fraktionen, auch Abschälverhältnis  $\vartheta$  genannt, ist für eine Komponente „i“ des Verfahrensgases wie folgt definiert:

$$\vartheta_i = \frac{\text{Strom } L_i^M \text{ der Komponente „i“ in der leichten Fraktion}}{\text{Gesamteinstrom } L_i \text{ der Komponente „i“}}$$

Die in der Trenndüse erfolgte partielle Abtrennung des Zusatzgases vom Uran sowie des Urans-235 vom Uran-238 wird wie üblich durch den Logarithmus des Gemischtrennfaktors  $A_G$  und den Elementareffekt der Isotopentrennung  $\varepsilon_A$  beschrieben.  $A_G$  selbst läßt sich durch die Abschälverhältnisse  $\vartheta_u$  des

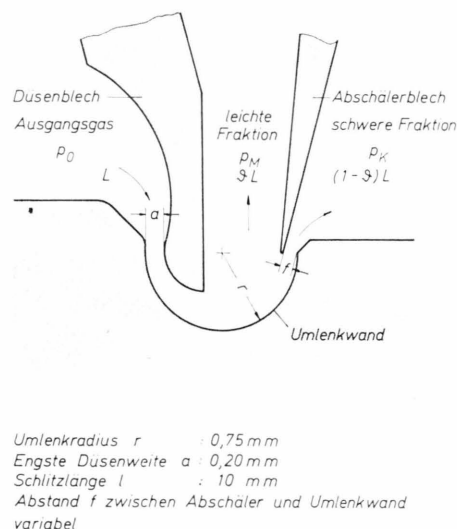


Abb. 1. Schnitt durch das verwendete Trenndüsen-System (System XIII)<sup>4</sup>.

Urans und  $\vartheta_z$  des Zusatzgases in der folgenden Weise berechnen:

$$A_G = \vartheta_z(1 - \vartheta_u) / \vartheta_u(1 - \vartheta_z)$$

Der Elementareffekt  $\varepsilon_A$  wird mit den Molenbrüchen  $n_M$  und  $n_K$  des leichten Uranisotops in der leichten bzw. schweren Fraktion des  $\text{UF}_6$  gebildet:

$$\varepsilon_A = n_M(1 - n_K) / n_K(1 - n_M) - 1$$

Für die Bestimmung der Molenbruchverhältnisse  $n/(1 - n)$  der beiden  $\text{UF}_6$ -Fraktionen stand ein Massenspektrometer vom Typ 21-220A der Consolidated Electrodynamics Corporation, Pasadena/USA, zur Verfügung. Der „Memory-Effekt“ beim Vergleich von 2 Meßproben wurde wie üblich durch Messungen an Isotopenstandards eliminiert<sup>6</sup>.

Der Vergleich der verschiedenen Zusatzgase erfolgt in dieser Arbeit durch Gegenüberstellung der erzielten Elementareffekte und Gemischtrennfaktoren beim Uranabschälverhältnis  $\vartheta_u = 1/3$  und einer  $\text{UF}_6$ -Molkonzentration von 5%, da diese Werte für eine Trenndüsenkaskade voraussichtlich wirtschaftlich optimal sind<sup>1</sup>.

### 3. Ergebnisse

#### 3.1. Isotopentrennung

Abbildung 2 zeigt den Einfluß des Einlaßdruckes  $p_0$  auf den Elementareffekt  $\varepsilon_A$  für das Uranabschälverhältnis  $\vartheta_U = 1/3$  bei verschiedenen Expansionsverhältnissen  $p_0/p_M$ . Neben der bekannten Zunahme der Maximalentmischung mit dem Expansionsver-

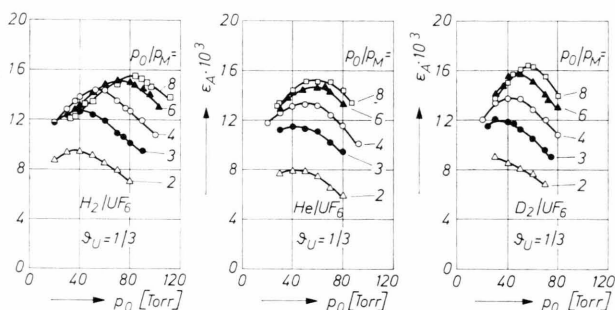


Abb. 2. Der Elementareffekt der Isotopentrennung  $\varepsilon_A$  beim Uranabschälverhältnis  $\vartheta_U = 1/3$  in Abhängigkeit vom Einlaßdruck  $p_0$  für verschiedene Expansionsverhältnisse  $p_0/p_M$  (Gemische mit 5 Mol-%  $UF_6$ ).

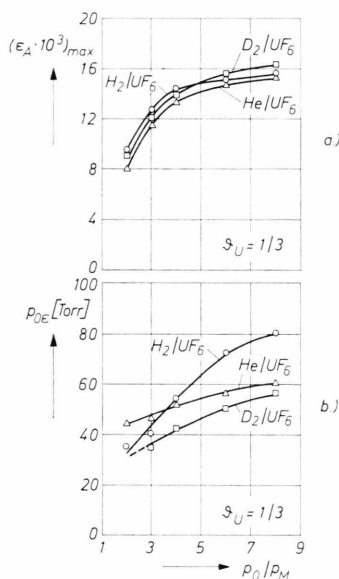


Abb. 3. Die aus Abb. 2 folgenden Maximalwerte der Isotopentrennung  $\varepsilon_{A \max}$  (a) sowie die zugehörigen Einlaßdrücke  $p_{0\varepsilon}$  (b) in Abhängigkeit vom Expansionsverhältnis  $p_0/p_M$ .

hältnis fällt auf, daß der Unterschied in den  $\varepsilon_A$ -Werten von  $H_2/UF_6$  und  $He/UF_6$  mit steigendem Expansionsverhältnis kleiner wird, und daß bei hohen Expansionsverhältnissen die zu  $D_2/UF_6$  gehörende Kurve über der von  $H_2/UF_6$  liegt (Abbildung 3 a).

Bemerkenswert ist ferner, daß der zur maximalen Isotopentrennung  $\varepsilon_{A, \max}$  gehörende Einlaßdruck  $p_{0\varepsilon}$  mit dem Expansionsverhältnis bei allen 3 Gemischen ansteigt (Abbildung 3 b). Durch Vergleich der Kurven in Abb. 3 b erkennt man, daß der Anstieg von  $p_{0\varepsilon}$  mit steigendem Expansionsverhältnis  $p_0/p_M$  bei  $H_2/UF_6$  stärker ist als bei den beiden anderen Gemischen.

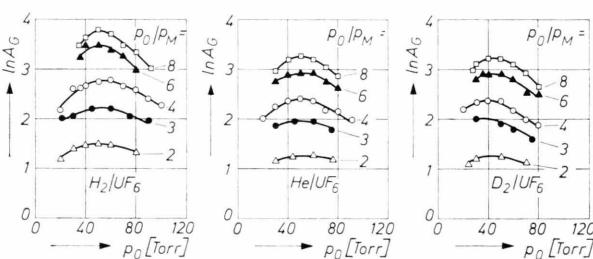


Abb. 4. Der Logarithmus des Gemischtrennfaktors  $A_G$  beim Uranabschälverhältnis  $\vartheta_U = 1/3$  in Abhängigkeit vom Einlaßdruck  $p_0$  für verschiedene Expansionsverhältnisse  $p_0/p_M$  (Gemische mit 5 Mol-%  $UF_6$ ).

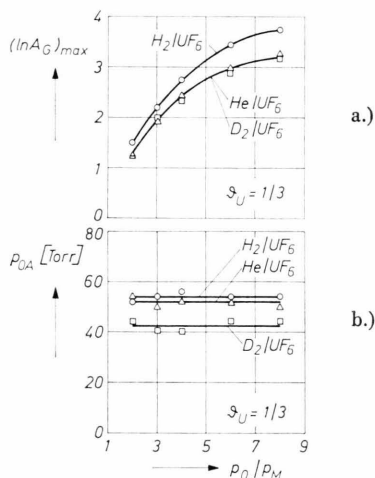


Abb. 5. Die aus Abb. 4 folgenden Maximalwerte der Gemischtrennung  $(\ln A_G)_{\max}$  (a) sowie die zugehörigen Einlaßdrücke  $p_{0A}$  (b) in Abhängigkeit vom Expansionsverhältnis  $p_0/p_M$ .

#### 3.2. Gemischtrennung

Abbildung 4 zeigt die zu Abb. 2 analoge Auftragung des Logarithmus des Gemischtrennfaktors  $A_G$ . Nach Abb. 5 a stimmen die maximalen Gemischtrennfaktoren von  $He/UF_6$  und  $D_2/UF_6$  im gesamten untersuchten Bereich des Expansionsverhältnisses innerhalb der Fehlergrenze überein, während die entsprechenden Ergebnisse für  $H_2/UF_6$  deutlich höher liegen. Aus Abb. 5 b geht hervor, daß die zu den

Maximalwerten von  $\ln A_G$  gehörenden Einlaßdrücke  $p_{0A}$  nicht merklich vom Expansionsverhältnis abhängen und für die 3 Gemische in der Reihenfolge  $D_2/UF_6$ ,  $He/UF_6$ ,  $H_2/UF_6$  ansteigen.

### 3.3. Durchsatz

Bei der Diskussion der Meßergebnisse wird es von Bedeutung sein, den Einfluß der Reibung auf die Trenndüsenströmung der 3 Gemische anhand der Reynolds-Zahl  $Re$  zu beurteilen, die durch die folgende Beziehung definiert ist:

$$Re = \frac{\text{mittlere Masse} \times \text{Teilchendurchsatz pro cm Schlitzlänge}}{\text{Zähigkeit}}$$

Abbildung 6 zeigt den durch Ausgleichsrechnung über eine Vielzahl von Messungen gewonnenen Zusammenhang zwischen Teilchendurchsatz und Einlaßdruck  $p_0$ . Dieser Zusammenhang hat sich für Expansionsverhältnisse  $p_0/p_M \geq 3$  als unabhängig von  $p_0/p_M$  erwiesen.

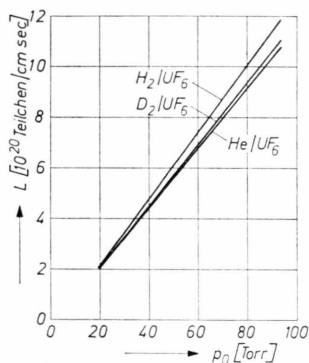


Abb. 6. Der auf 1 cm Schlitzlänge bezogene Teilchendurchsatz  $L$  der untersuchten Gemische in Abhängigkeit vom Einlaßdruck  $p_0$  (Düsenweite  $a=0,20$  mm; Gemische mit 5 Mol-%  $UF_6$ ).

## 4. Diskussion der Ergebnisse

Bei der Diskussion der Ergebnisse kann man davon ausgehen, daß für die experimentell festgestellten Unterschiede der drei verwendeten Gemische sowohl Unterschiede im Strömungsverhalten als auch im Diffusionsverhalten maßgeblich sind<sup>2</sup>.

Die Gemisch- bzw. Isotopentrennung in dem Zentrifugalfeld der Trenndüse hängen von dem erreichten Geschwindigkeitsverhältnis  $S_{Gem}$  des Gemisches bzw.  $S_u$  des  $UF_6$  ab<sup>7, 2</sup>. Bei der Diskussion darüber, mit welchem der Gemische das höhere Geschwindig-

keitsverhältnis erzielt wird, ist zu beachten, daß die Strömungsgeschwindigkeit  $v$  und die Temperaturen  $T$  um so stärker von den Werten für eine gasdynamische, isentrope Expansion abweichen, je größer der Reibungseinfluß, d. h., je kleiner die Reynolds-Zahl der Strömung ist. Daneben sind Unterschiede in den mittleren Massen der Gemische und in den Werten des Adiabatenexponenten  $\alpha$  in die Betrachtungen einzubeziehen.

Tab. 1. Stoffwerte der verwendeten Gemische mit 5 Mol-%  $UF_6$ .

	$H_2/UF_6$	$He/UF_6$	$D_2/UF_6$
$\bar{m} = N_0 \cdot m_u + (1 - N_0) m_z^a$	19,5	21,4	21,4
$\alpha = C_p/C_v$	1,32	1,46	1,32
$\eta [10^{-6} \text{ Poise}]^b$	150	240	168
$\nu_{DG} \left[ 10^{18} \frac{\text{Teilchen}}{\text{cm sec}} \right]^c$	8,49	7,38	6,00
bei 20 °C			
$\nu_{DT} \left[ 10^{18} \frac{\text{Teilchen}}{\text{cm sec}} \right]^d$	4,22	3,94	3,53
bei 20 °C			
$D_T/D_G$	0,50	0,53	0,59

Erläuterungen zu Tab. 1:

<sup>a</sup>  $m_u$  und  $m_z$  sind die Molekulargewichte des  $UF_6$  bzw. des leichten Zusatzgases.

<sup>b</sup> Für die Berechnung der Zähigkeitskoeffizienten  $\eta$  wurde eine von L. Waldmann im Handbuch der Physik XII, S. 447 angegebene, für binäre Gemische gültige Formel verwendet. Es wurde ein Lennard-Jones-6,12-Potential für die Molekülwechselwirkung zugrundegelegt. Werte für die Potentialparameter wurden entnommen aus: NASA-Report R-132, Lewis Research Center, Cleveland (Ohio), 1961.

<sup>c</sup> S. Ljunggren, Ark. Kemi **24**, 1 [1965]. Diese Arbeit enthält die mit der Teilchendichte  $\nu$  multiplizierten Werte des Gemischdiffusionskoeffizienten  $D_G$  für  $H_2/UF_6$  und  $He/UF_6$  bei 5 Mol-%  $UF_6$ . Der Diffusionskoeffizient für  $D_2/UF_6$  wurde aus dem Wert für  $H_2/UF_6$  durch Umrechnung über die Massen gewonnen.

<sup>d</sup> Der ternäre Isotopendifusionskoeffizient  $D_T$  hängt mit dem binären Gemischdiffusionskoeffizienten  $D_G$  und dem  $UF_6$ -Isotopendifusionskoeffizienten  $D_u$  wie folgt zusammen<sup>2</sup>:

$$D_T = [(1 - N_0)/D_G + N_0/D_u]^{-1}$$

$\nu \cdot D_u = 0,4 \cdot 10^{18} \frac{\text{Teilchen}}{\text{cm sec}}$  nach E. P. Ney u. F. C. Armistead, Phys. Rev. **71**, 14 [1947].

Die Berechnung der zum Maximum der Isotopentrennung gehörenden optimalen Reynolds-Zahl mit Hilfe der gemessenen Durchsätze (Abb. 6) und der in Tab. 1 aufgeführten Zähigkeitskoeffizienten  $\eta$  liefert bei allen untersuchten Expansionsverhältnissen im Fall  $H_2/UF_6$  höhere Werte als bei den anderen Gemischen. So ergibt sich z. B. bei  $p_0/p_M = 4$  die

optimale Reynolds-Zahl zu  $Re_{opt} = 143$  bei  $H_2/UF_6$ , zu  $Re_{opt} = 100$  bei  $D_2/UF_6$  und zu  $Re_{opt} = 88$  bei  $He/UF_6$ .

Aufgrund der höheren optimalen Reynolds-Zahl wird das bei gleichem Expansionsverhältnis erzielte Geschwindigkeitsverhältnis bei Wasserstoff als Zusatzgas höher sein als bei Deuterium- oder Heliumzusatz. Ein weiterer Vorteil des  $H_2/UF_6$ -Gemisches gegenüber den beiden anderen Gemischen besteht in der kleineren mittleren Masse (Tab. 1), die selbst dann dem  $H_2/UF_6$  ein höheres, für die Isotopentrennung maßgebliches  $UF_6$ -Geschwindigkeitsverhältnis  $S_{II}$  verleiht, wenn die Gemischgeschwindigkeitsverhältnisse  $S_{Gem}$  gleich sind<sup>7</sup>. Zusätzlich ist bei Vergleich von Helium mit Wasserstoff bzw. mit Deuterium als Zusatzgas zu beachten, daß die Adiabatenexponenten  $\kappa$  (vgl. Tab. 1) verschieden sind. Der Einfluß dieses Unterschiedes wird – verglichen mit dem Einfluß der unterschiedlichen Reibung – von untergeordneter Bedeutung sein, da sogar unter gasdynamischen Bedingungen im Fall  $He/UF_6$  wegen des  $\kappa$ -Vorteils nur geringfügig höhere Geschwindigkeitsverhältnisse zu erwarten sind als im Fall  $H_2/UF_6$  oder  $D_2/UF_6$  (ca. 3% bei  $p_0/p_M = 4$ ).

Die Reihenfolge der Gemische bezüglich der Größe der optimalen Reynolds-Zahl bzw. der Höhe der  $UF_6$ -Geschwindigkeitsverhältnisse stimmt im Bereich kleiner Expansionsverhältnisse ( $p_0/p_M \leq 4$ ) überein mit der Reihenfolge bezüglich maximaler Isotopentrennung (vgl. Abbildung 3 a). Es ist daher anzunehmen, daß hier die Unterschiede in der Isotopentrennung vorwiegend auf die Unterschiede im Strömungsverhalten zurückzuführen sind.

Der Verzögerungseffekt des Zusatzgases bei der Einstellung der barometrischen Dichteverteilung des  $UF_6$  trägt nach<sup>2</sup> um so stärker zur Isotopentrennung bei, je schneller die Isotopentrennung im Vergleich zur Gemischtrennung abläuft, d. h. je größer das Verhältnis der für Isotopen- und Gemischtrennung zuständigen Diffusionskoeffizienten  $D_T$  und  $D_G$  ist. Dieses Verhältnis ist nach Tab. 1 bei Deuterium deutlich größer als bei Wasserstoff und Helium. Der Vorteil des Deuteriums liegt darin begründet, daß es gegenüber Wasserstoff wegen seiner größeren Masse und gegenüber Helium wegen seines größeren Wirkungsquerschnittes das  $UF_6$  wirksamer an der Einstellung der barometrischen Dichteverteilung hindert. Vergleicht man in dieser Beziehung Helium und Wasserstoff, so wird der von der Masse herführende Vorteil des Heliums durch den Nachteil

des kleineren Wirkungsquerschnittes teilweise kompensiert.

Aus der Abhängigkeit der jeweils maximalen Elementareffekte  $\varepsilon_{A, max}$  vom Expansionsverhältnis  $p_0/p_M$  (Abb. 3 a) geht hervor, daß der durch die Reynolds-Zahl erfaßte Unterschied im Strömungsverhalten mit steigendem  $p_0/p_M$  an Einfluß verliert. Der Abstand der Werte von  $\varepsilon_{A, max}$  bei Helium und Wasserstoff als Zusatzgas nimmt daher aufgrund des besseren Verzögerungseffektes im Fall Helium mit zunehmendem Expansionsverhältnis ab. Aus dem gleichen Grund ermöglicht Deuteriumzusatz von  $p_0/p_M = 5$  an sogar eine höhere Isotopentrennung als Wasserstoffzusatz.

Aus dem deutlichen, mit dem Expansionsverhältnis zunehmenden Unterschied der maximalen Elementareffekte bei Helium- und Deuteriumzusatz folgt zudem wegen der kaum verschiedenen Reynolds-Zahlen, daß der Verzögerungseffekt schon bei niedrigen Expansionsverhältnissen bereits wesentlich mitwirkt und auch dort die durch Reibung bedingten Vorteile des Wasserstoffs teilweise kompensiert.

Der mit steigendem Expansionsverhältnis abnehmende Einfluß des Geschwindigkeitsverhältnisses auf den maximalen Elementareffekt  $\varepsilon_{A, max}$ , der sich bei der Interpretation der unterschiedlichen Isotopentrennungen der Gemische als wesentlich erwiesen hat, ist auch Ursache der Verschiebungen der optimalen Einlaßdrücke  $p_{0\epsilon}$  (vgl. Abb. 3 b). Da mit der Steigerung des Expansionsverhältnisses eine Erhöhung des Geschwindigkeitsverhältnisses verbunden ist<sup>8</sup>, nimmt einerseits in der gesamten Trenndüse der entmischende Druckdiffusionsstrom zu. Andererseits zeigen die Experimente (Abb. 3 a) bei hohen Expansionsverhältnissen nur noch eine geringe Zunahme der maximalen Elementareffekte mit dem Expansionsverhältnis. Diese Maximalwerte der Isotopentrennung, die ungefähr der in<sup>2</sup> diskutierten oberen Grenze des Gleichgewichts von Druck- und Konzentrationsdiffusion entsprechen, werden also bei konstantem Einlaßdruck  $p_0$  und steigendem Expansionsverhältnis  $p_0/p_M$  bei immer kleineren Umlenk winkeln erreicht als den zur Verfügung stehenden  $180^\circ$ . Nach der in<sup>2</sup> benutzten reziproken Beziehung zwischen Einlaßdruck und Umlenk winkel ist dies bei voller Nutzung der  $180^\circ$ -Umlenkung gleichbedeutend mit einer Erhöhung des Einlaßdruckes  $p_{0\epsilon}$ .

Bei der Gemischtrennung hängen nach Abb. 5 a die Maximalwerte der Trennfaktoren  $A_G$  bei hohen



Expansionsverhältnissen wesentlich stärker von  $p_0/p_M$  ab als bei der Isotopentrennung. In Übereinstimmung mit der oben erläuterten Interpretation zeigt sich bei allen 3 Gemischen praktisch keine Verschiebung der zum Maximum der Gemischtrennung gehörenden Einlaßdrücke  $p_{0A}$  (Abb. 5), woraus zu schließen ist, daß in diesem Fall die in <sup>2</sup> diskutierte obere Grenze der Gleichgewichtsentmischung noch nicht erreicht ist.

Da der mit dem Verhältnis  $D_T/D_G$  verbundene Verzögerungseffekt nur bei der Isotopentrennung vorhanden ist, beobachtet man bei der Gemischtrennung keinen Auf- oder Überholeffekt von Helium bzw. Deuterium gegenüber Wasserstoff, sondern bei allen Expansionsverhältnissen lediglich den Einfluß des Geschwindigkeitsverhältnisses und der relativen Massendifferenz  $\Delta m/\bar{m}$  auf die Maximalentmischung. Der Ablauf der Gemischtrennung und damit auch der Einlaßdruck bei Maximalentmischung hängen dabei wesentlich von der Größe des binären Diffusionskoeffizienten  $D_G$  ab, woraus verständlich wird, daß der geringere binäre Diffusionskoeffizient  $D_G$  im Fall Deuterium auch zu einem geringeren Einlaß-

druck  $p_{0A}$  führt als im Fall Wasserstoff. — Aus den Experimenten und ihrer vergleichenden Diskussion folgt also, daß aus den günstigeren optimalen Reynolds-Zahlen keineswegs in allen Fällen auf eine Überlegenheit des leichten Wasserstoffs gegenüber anderen Zusatzgasen zum  $UF_6$  geschlossen werden darf. Vielmehr verlieren bei steigendem Expansionsverhältnis eventuelle Unterschiede in den Geschwindigkeitsverhältnissen der Gemische ihren Einfluß auf die Isotopentrennung, so daß nicht nur Helium seinen Nachteil gegenüber Wasserstoff verringert, sondern Deuterium sogar den Wasserstoff überholt.

Bei zukünftigen Entwicklungen ist also zu erwarten, daß der Wasserstoffvorsprung immer dann abnehmen wird, wenn durch entsprechende Maßnahmen die durch Reibung verursachten Unterschiede in den Geschwindigkeitsverhältnissen selbst oder ihr Einfluß auf die Isotopentrennung verringert werden.

Herrn Prof. Dr. E. W. Becker danken wir für die Anregung zu dieser Arbeit und für wertvolle Diskussionen, Herrn G. Schüler für die Unterstützung bei der Durchführung der Versuche.

<sup>1</sup> E. W. Becker, K. Bier, W. Bier, R. Schütte u. D. Seidel, *Angew. Chemie, Intern. Edition* **6**, 507 [1967]. Diese Arbeit enthält eine Zusammenstellung der früheren Veröffentlichungen über das Trenndüsenverfahren.

<sup>2</sup> E. W. Becker, W. Bier, W. Ehrfeld u. G. Eisenbeiß, *Z. Naturforsch.* **26a**, 1377 ff [1971]; G. Eisenbeiß, Dissertation Karlsruhe 1971.

<sup>3</sup> E. W. Becker, *Atomenergie en Haar Toepassingen* **11**, 272 [1969].

<sup>4</sup> Die kritischen Abmessungen des Laborsystems XIII sind um den Faktor 7,5 größer als die derjenigen Trennelemente, deren Einsatz bei der technischen Realisierung des Trenndüsenverfahrens vorgesehen ist <sup>5</sup>. Durch die Verwendung eines vergrößerten Trennelements wird die Einstellung und Konstanthaltung der kritischen Maße wesentlich erleichtert. Unter Berücksichtigung des bekannten reziproken Zusammenhangs zwischen den kritischen Abmessungen und den Betriebsdrücken der Trennelemente <sup>1</sup> sind die im folgenden erläuterten Ergebnisse auch auf technische Trennelemente übertragbar.

<sup>5</sup> E. W. Becker, W. Bier, W. Ehrfeld, G. Eisenbeiß, G. Frey, H. Geppert, P. Happe, G. Heeschen, R. Lücke, D. Plesch, K.

Schubert, R. Schütte, D. Seidel, U. Sieber, H. Völcker u. F. Weis, Vortrag auf der 4. Internat. Konferenz der UN über die friedliche Nutzung der Kernenergie, Genf 1971, paper 383.

<sup>6</sup> W. Bier u. F. Weis, *Kerntechnik* **14**, 3, 105 [1972]. Diese Arbeit enthält eine Beschreibung der Versuchsanordnung, an der auch die Versuche zur vorliegenden Arbeit durchgeführt wurden.

<sup>7</sup> Das Geschwindigkeitsverhältnis  $S$  ist definiert als das Verhältnis von Strömungsgeschwindigkeit  $v$  zur wahrscheinlichsten thermischen Geschwindigkeit  $1/2 R T/m$  ( $R$  = allgemeine Gaskonstante,  $T$  = absolute Temperatur). Im thermischen Gleichgewicht stehen Gemischgeschwindigkeitsverhältnis  $S_{Gem}$  und  $UF_6$ -Geschwindigkeitsverhältnis  $S_u$  in folgender Beziehung zueinander:

$$S_u = \sqrt{m_u/\bar{m}} S_{Gem}$$

( $m_u$  = mittleres Molekulargewicht der  $UF_6$ -Isotope;  $\bar{m}$  = mittleres Molekulargewicht des Gemisches).

<sup>8</sup> K. Bier, H. Brandtstädter, U. Ehrfeld u. W. Ehrfeld, KFK-Bericht 1440, Kernforschungszentrum Karlsruhe, (1971) — H. Brandtstädter, Dissertation, Karlsruhe 1971.