

# Quantitative Isotopenanreicherung im Thermodiffusionstrennrohr

R. Kretner und G. Dickel

Physikalisch-Chemisches Institut der Universität München

Z. Naturforsch. **33a**, 353–357 (1978); eingegangen am 22. Dezember 1977

*Quantitative Isotope Enrichment in Thermal Diffusion Separation Column*

In applying the theory of the thermal diffusion separation column with containers at both ends to quantitative isotope enrichment, the volume of the column has not yet been exactly accounted for. A formula is derived which describes the effective volume as a function of the characteristic values of the enrichment apparatus. An iteration method for calculation of the effective volume is presented. The theoretical values are compared with experimental results in the case of time dependent enrichment of two isotopes ( $^{13}\text{CH}_4$ ,  $^{14}\text{CH}_4$ ) and three different ways of enrichment. Agreement within the experimental limits of error of  $\pm 6\%$  was found.

## 1. Einleitung

Die Entwicklung des Thermodiffusionstrennrohres durch Clusius und Dickel [1, 2] 1938 führte zu einem bedeutenden Fortschritt bei der Isotopentrennung. In den letzten Jahren wurde das Problem der quantitativen Anreicherung, besonders in bezug auf die Anreicherung von  $^{14}\text{C}$  zur Erweiterung der Grenzen der  $^{14}\text{C}$ -Altersbestimmung, von verschiedenen Autoren [3–13] wieder aufgenommen. Die wesentliche Schwierigkeit liegt dabei in der experimentellen Bestimmung oder Berechnung des Anreicherungs-faktors mit genügender Genauigkeit.

Die Theorie der Thermodiffusion [14, 15] liefert den Trennfaktor im Endgleichgewicht als Funktion der charakteristischen Größen eines Trennrohres. Jedoch werden diese Werte i. allg. experimentell nicht erreicht und lassen sich nur schwer reproduzieren [7, 16–18].

Deshalb wurden Methoden entwickelt, die Anreicherung mittels eines Leitisotops zu bestimmen [11–13]. Wir dagegen versuchten die Anreicherung mittels der Trennrohrtheorie zu berechnen. Nachdem wir uns anfangs auf den Bereich beschränkten, in dem die Konzentration linear mit der Zeit ansteigt [3], wurde die Anreicherung in unserer vorhergehenden Arbeit [7] auf den nichtlinearen Bereich ausgedehnt. Dazu wurde eine Theorie entwickelt, die den Anreicherungs-faktor als Funktion der Zeit im gesamten Bereich beschreibt und Kriterien für die Dimensionierung einer Trennanlage liefert. Noch nicht befriedigend gelöst wurde dabei die Berücksichtigung des Trennrohrvolumens, das gegen die Volumina der Endbehälter nicht vernach-

lässigt werden kann, wie es noch in [15] gemacht wird. Der Grund liegt darin, daß der für die Anreicherungszeit entscheidende Anfangstransport proportional zum Rohrquerschnitt ist und der Trennfaktor exponentiell von der Rohrlänge abhängt. Bisher haben wir uns mit einer einfachen Näherung, die auch in [13] gemacht wird, begnügt [7]. Da dies jedoch für die quantitative Anreicherung nicht ausreicht, soll das Trennrohrvolumen exakt berücksichtigt und die Berechnung experimentell überprüft werden.

## 2. Theorie

### 2a) Der Anreicherungs-faktor

In unserer vorhergehenden Arbeit [7] haben wir ausgehend von der Theorie des Trennrohres mit zwei endseitigen Behältern [15] eine Formel für die quantitative Anreicherung im Sammelbehälter  $A_b$  entwickelt.

$$A_b(t) \equiv \frac{c_b(t)}{c_0} = \frac{n(q_e - 1)}{n + q_e} (1 - e^{-t/T}) + 1 \quad (1)$$

mit der charakteristischen Zeit  $T$

$$T = \frac{q_b V_b + k q_{Tr} V_{Tr}}{\tau_a^*} \frac{n(q_e - 1)}{n + q_e} \quad (2)$$

und dem Massenverhältnis  $n$

$$n = \frac{q_t V_t}{q_b V_b + k q_{Tr} V_{Tr}} \quad (3a)$$

( $t$  Zeit,  $c_b(t)$ ,  $c_0$  Molenbruch der anzureichernden Komponente zur Zeit  $t$  und  $t=0$ ,  $q_e$  Trennfaktor im Endgleichgewicht [7],  $q_t$ ,  $q_b$ ,  $q_{Tr}$  Dichte im Vorrats-, Sammelbehälter und im Trennrohr,  $V_t$ ,  $V_b$ ,  $V_{Tr}$  Volumen von Vorrats-, Sammelbehälter und Trennrohr,  $k$  Reduktionsfaktor,  $\tau_a^*$  Anfangstransport in g/sec).

Sonderdruckanforderung an Dr. R. Kretner, jetzt Gesellschaft für Strahlen- und Umweltforschung, Institut für Strahlenschutz, 8042 Neuherberg bei München.



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.

Differenziert man (1) und entwickelt in eine Reihe, so ergibt sich, daß die Anreicherung für  $t \ll T$  linear mit der Zeit ansteigt.

$$t \ll T, \quad \frac{dA}{dt} = m = \frac{\tau_a^*}{\varrho_b V_b + k \varrho_{Tr} V_{Tr}}. \quad (4)$$

Für  $t \gg T$  erhält man die Anreicherung im Endgleichgewicht  $A_{be}$ .

$$t \gg T, \quad A_{be} = q_e(n+1)/(q_e+n). \quad (5)$$

Setzt man (4) und (5) in (1) ein, so ergibt sich:

$$(A_b - 1) = (A_{be} - 1)(1 - e^{-t/T}). \quad (6)$$

Der Zusammenhang zwischen der Anreicherung im Sammelbehälter  $A_b(t)$  und der im Vorratsbehälter  $A_t(t) \equiv c_t(t)/c_0$  ergibt sich aus dem Massenerhaltungsgesetz:

$$\begin{aligned} c_0(\varrho_b V_b + \varrho_{Tr} V_{Tr} + \varrho_t V_t) \\ = c_b(t)(\varrho_b V_b + k \varrho_{Tr} V_{Tr}) \\ + c_t(t) \varrho_t V_t. \end{aligned} \quad (7)$$

Durch Umformung und Beachtung der Definitionen von  $A_b(t)$ ,  $A_t(t)$  und  $n$  (3a) ergibt sich:

$$A_b(t) = n + \frac{\varrho_b V_b + \varrho_{Tr} V_{Tr}}{\varrho_b V_b + k \varrho_{Tr} V_{Tr}} - n A_t(t). \quad (8a)$$

Betrachten wir die mittlere Anreicherung im Trennrohr und Sammelbehälter  $\bar{A}(t) \equiv c(t)/c_0$  und die mittlere Anreicherung im Trennrohr *ohne* Verwendung eines Sammelbehälters ( $V_b = 0$ )  $\bar{A}_{Tr}(t) \equiv \bar{c}_{Tr}(t)/c_0$  so ergeben sich aus (7) mit  $k=1$  Beziehungen zur Anreicherung im Vorratsbehälter  $A_t(t)$ .

$$\bar{A}(t) = \bar{n} + 1 - \bar{n} A_t(t) \quad (8b)$$

mit

$$\bar{n} = \varrho_t V_t / (\varrho_b V_b + \varrho_{Tr} V_{Tr}), \quad (3b)$$

$$\bar{A}_{Tr}(t) = \bar{n}_{Tr} + 1 - \bar{n}_{Tr} A_t(t) \quad (8c)$$

mit

$$\bar{n}_{Tr} = \varrho_t V_t / \varrho_{Tr} V_{Tr}. \quad (3c)$$

Eliminiert man  $A_t(t)$  aus (8a) und (8b), so erhält man

$$\bar{A}(t) = \frac{\varrho_b V_b + k \varrho_{Tr} V_{Tr}}{\varrho_b V_b + \varrho_{Tr} V_{Tr}} A_b(t) = \frac{\bar{n}}{n} A_b(t). \quad (9)$$

## 2b) Der Reduktionsfaktor

In der ursprünglichen Theorie [15] des Trennrohres mit zwei endseitigen Behältern wird das

Trennrohrvolumen gegenüber den Endbehältern vernachlässigt. Bei der Isotopenanreicherung ist dies jedoch i.allg. nicht möglich, da die Rohrlänge durch den Trennfaktor und der Rohrquerschnitt durch den Anfangstransport bestimmt werden [7]. In [7] haben wir den Einfluß des Trennrohres durch eine scheinbare Vergrößerung des Volumens der Sammelbehälter durch ein reduziertes Volumen des Trennrohres  $V'_{Tr} = k V_{Tr}$  berücksichtigt, wobei gilt:

$$k := (\bar{A}_{Tr} - 1)/(A_{be} - 1) \quad (10)$$

mit

$$\bar{A}_{Tr} = \left( \int_0^L c(z) dz \right) / c_0 L \quad (11)$$

( $z$  Koordinate parallel zur Trennrohrachse,  $L$  Rohrlänge).

In der vorhergehenden Arbeit [7] haben wir in erster Näherung einen Wert  $k=1/2$ , entsprechend einem linearen Konzentrationsanstieg im Trennrohr verwendet, was eine scheinbar gute Übereinstimmung mit unseren Meßergebnissen ergab.

In dieser Arbeit wollen wir den exakten Wert von  $k$  aus der Konzentrationsverteilung im Trennrohr im Endgleichgewicht berechnen, die sich aus Formel (3) in Lit. [7] für  $\tau(t)=0$  ergibt.

$$c(z) = c_{te} \exp\{\tau_a^* z/K\} \quad (12)$$

( $K$  = Rückmischungskoeffizient).

(12) in (11) eingesetzt ergibt:

$$\bar{A}_{Tr} = \frac{c_{te}}{c_0 L} \int_0^L \exp\left\{\frac{\tau_a^* z}{K}\right\} dz. \quad (13)$$

Unter Beachtung des Trennfaktors im Endgleichgewicht  $q_e$  für  $c \ll 1$

$$\frac{c_{be}}{c_{te}} = q_e = \exp\left\{\frac{\tau_a^*}{K} L\right\} \quad (14)$$

ergibt die Integration von (13):

$$\bar{A}_{Tr} = \frac{c_{te}}{c_0} \frac{q_e - 1}{\ln q_e}. \quad (15)$$

Mit  $A_{be} = c_{be}/c_0$  und (14) folgt:

$$\bar{A}_{Tr} = \frac{A_{be}}{q_e} \frac{q_e - 1}{\ln q_e}. \quad (16)$$

Zur Berechnung von  $k$  nach (10, 16) benötigt man den Wert von  $q_e$  und den nach (5) aus  $q_e$  und  $n$  zu berechnenden Wert von  $A_{be}$ .

Da jedoch  $n$  nach (3a) bereits von  $k$  abhängt, berechnen wir die Werte für  $\bar{A}_{Tr}$ ,  $k$ ,  $n$  (3a) und  $A_{be}$  (5) iterativ, wobei wir mit dem Spezialfall eines unendlich großen Vorratsbehälters entsprechend

$$A_{be} = q_e \quad \text{und} \quad n = \infty$$

beginnen.

Mit den damit erhaltenen Werten von  $\bar{A}_{Tr}$  (16) und  $k$  (10) erhalten wir die Werte von  $n$  (3a) und  $A_{be}$  (5). Setzen wir diesen Wert von  $A_{be}$  in (16) und (10) ein, so erhalten wir den nächsten Wert von  $k$  usw.

Das Verfahren konvergiert so gut, daß sich der zweite Wert von  $k$  nur um weniger als 0,5% vom wahren Wert unterscheidet (Tabelle 1).

Tabelle 1. Iterative Berechnung des mittleren Anreicherungs-faktors im Trennrohr  $\bar{A}_{Tr}$ , des Reduktionsfaktors  $k$ , des Mengenverhältnisses  $n$  und des Anreicherungs-faktors im Sammelbehälter im Endgleichgewicht  $A_{be}$  für den Trennfaktor  $q_e = e^4 = 54,6$ .

$\bar{A}_{Tr}$ (16)	$k$ (10)	$n$ (3a)	$A_{be}$ (5)
—	—	—	54,6
13,4	0,231	74,3	31,9
7,83	0,221	75,7	32,1
7,88	0,221	75,7	32,1
7,88	0,221	75,7	32,1

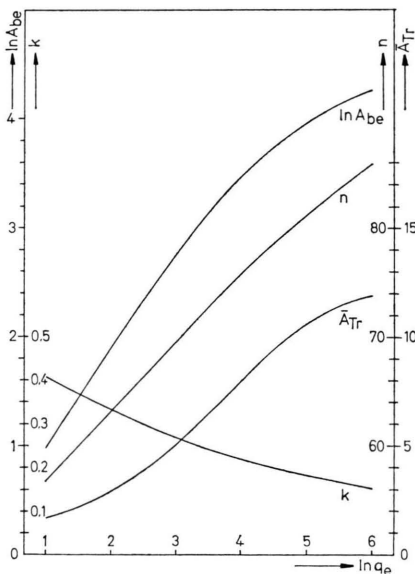


Abb. 1 Logarithmus des Anreicherungs-faktors im Sammelbehälter  $A_{be}$ , Reduktionsfaktor  $k$ , Massenverhältnis  $n$ , mittlerer Anreicherungs-faktor im Trennrohr  $\bar{A}_{Tr}$  als Funktion des Logarithmus des Trennfaktors  $q_e$

Wegen der Diskrepanz zwischen berechneten und gemessenen Werten von  $q_e$  geht man in der Praxis folgendermaßen vor. Man berechnet die Werte von  $A_{be}$ ,  $\bar{A}_{Tr}$ ,  $k$ ,  $n$  für verschiedene  $q_e$  und trägt sie gegen  $\ln q_e$  graphisch auf (Abbildung 1). Da  $A_{be}$  nur asymptotisch für  $t \gg T$  erreicht wird, bestimmt man experimentell den tatsächlich erreichten Wert mit Hilfe der von uns in [7] angegebenen Linearisierung von  $A(t)$  und entnimmt Abb. 1 die zugehörigen Werte.

Der wesentliche Unterschied zu der von uns früher verwendeten Näherung  $k = 1/2$  und  $n = \text{konstant}$  besteht darin, daß  $k$  und damit  $n$  von  $q_e$  abhängen wie Abb. 1 zeigt. Damit ergeben sich folgende Möglichkeiten, die beiden Fälle zu unterscheiden.

1. In dem von uns untersuchten Druckbereich liegen die Werte für  $k$  wesentlich unter  $k = 1/2$  (Abbildung 1). Dies kann durch die Messung des Anstiegs im linearen Bereich nach (4) überprüft werden.
2. Die Werte für  $n$  liegen wesentlich höher als  $n$  für  $k = 1/2$ . Dies kann mit Formel (9) überprüft werden. Gleichung (5) ist dazu nicht geeignet, da der tatsächliche erreichte Wert von  $q_e$  nicht bekannt ist.
3. Für einen von  $q_e$  unabhängigen Wert von  $k$  folgt aus (4) mit  $\tau_a^* \sim \rho^2$ , daß die Steigung des linearen Teils der Anreicherung  $m$  linear proportional zur Dichte  $\rho$  bzw.  $m/\rho = \text{konstant}$  ist. Da für ein gegebenes Trennrohr  $q_e$  von der Dichte abhängt [7], hat  $m/\rho$  nach (4) seinen maximalen Wert, wenn  $k$  seinen minimalen Wert annimmt. Dies ist erfüllt bei der in bezug auf den Trennfaktor  $q_e$  optimalen Dichte\*.

### 3. Apparat

Eine genaue Beschreibung der von uns entwickelten Anreicherungsanlage (Rohrlänge 11 m, Innendurchmesser 45 mm, Wandabstand 5 mm,  $V_t = 250$  l,  $V_b = 2$  l); der Meßtechnik und der Zählapparatur befindet sich in [6, 7]. Aus den Dimensionen der Anlage, den durch das verwendete Gas ( $\text{CH}_4$ ) und den experimentell festgelegten Werten ergeben sich beim in bezug auf den Trennfaktor optimalen Druck von

\* Im Gegensatz zu [15], Gl. (70) beträgt der optimale Wert der Umlaufgröße  $u$  (ohne Berücksichtigung der Umrechnungsfaktoren  $\chi$ ,  $\psi$  und des parasitären Korrekturfaktors  $P_k$  [6]) nicht  $u = \sqrt{5}$ , sondern  $u = \sqrt{10}$ .

0,986 bar folgende Werte. Anfangstransport

$$\tau_a^* = (5,14 \pm 0,25) \cdot 10^{-2} \text{ g/h für } ^{13}\text{CH}_4$$

und

$$\tau_a^* = (9,97 \pm 0,5) \cdot 10^{-2} \text{ g/h für } ^{14}\text{CH}_4,$$

mittlere Umlaufgeschwindigkeit  $w = 2,36 \text{ cm/sec}$ , Umlaufgröße  $u = 2,78$ , Trennstufenzahl  $s = 735$ , Trennlänge  $L^* = 2,72 \text{ m}$  für  $^{13}\text{CH}_4$  und  $L^* = 1,39$  für  $^{14}\text{CH}_4$ , Trennfaktor  $q_e = 50,1$  für  $^{13}\text{CH}_4$  und  $q_e = 1975$  für  $^{14}\text{CH}_4$ . Da die Werte für  $q_e$  experimentell nicht annähernd erreicht werden [7], müssen sie ebenso wie alle von  $q_e$  abhängigen Größen mit Hilfe des experimentell ermittelten Wertes von  $A_{be}$  aus Abb. 1 bestimmt werden.

#### 4. Messungen und Vergleich mit der Theorie

##### 4a) Anfangstransport

Zur Überprüfung des Anfangstransports wurde die mittlere Anreicherung von  $^{14}\text{CH}_4$  im Trennrohr  $\bar{A}_{Tr}$  ohne Verwendung eines Sammelbehälters herangezogen, da in diesem Fall die Steigung des linearen Teils der Anreicherung  $m$  nach (17) den Faktor  $k$  nicht enthält. Die Werte von  $\bar{A}_{Tr}$  (Abb. 2) wurden nach (8c) aus der Anreicherung im Vorratsbehälter  $A_t$  bestimmt, da  $\bar{A}_{Tr}$  nur nach Homogenisieren des Trennrohrinhalts direkt gemessen werden kann. Aus (4) folgt mit  $V_b = 0$  und  $k = 1$

$$m = \tau_a^* / \varrho_{Tr} V_{Tr}. \quad (17)$$

Der gemessene Wert  $m = (1,98 \pm 0,08) \cdot 10^{-2} \text{ h}^{-1}$  liegt um einen Faktor  $1,26 \pm 0,07$  unter dem berechneten  $m = (2,51 \pm 0,12) \cdot 10^{-2} \text{ h}^{-1}$ . Diese Dis-

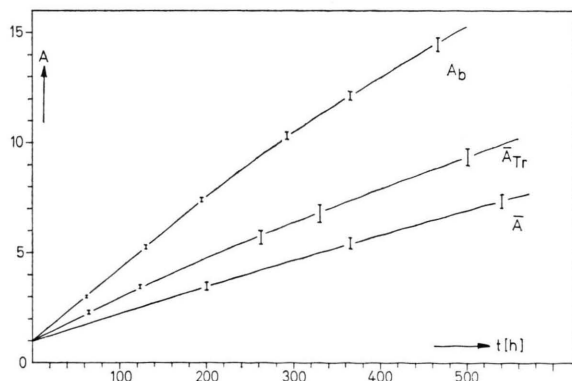


Abb 2 Anreicherungsfaktor im Sammelbehälter  $A_b$ , im Sammelbehälter und Trennrohr  $\bar{A}$ , im Trennrohr ohne Sammelbehälter  $\bar{A}_{Tr}$  als Funktion der Zeit  $t$

krepanz läßt sich durch thermische und besonders geometrische Inhomogenitäten erklären, die sich bei dem 11 m langen Trennrohr, außer durch einen sehr hohen Konstruktionsaufwand, kaum vermeiden lassen. So führen bereits die wegen der thermischen Ausdehnung des Innenrohres erforderlichen Toleranzen im ungünstigsten Fall zu einer Abweichung des Trennabstandes von  $-6\%$  und  $+12\%$  [6, 7].

##### 4b) Reduktionsfaktor $k$

Zur Überprüfung des Wertes von  $k$  eignen sich die Gleichung (4, 9). Deshalb wurde erneut der Anreicherungsfaktor von  $^{14}\text{CH}_4$  im Sammelbehälter  $A_b$  und der mittlere Anreicherungsfaktor im Sammelbehälter und Trennrohr  $\bar{A}$  gemessen (Abbildung 2). Für die Steigung im linearen Teil der Anreicherung ergibt sich in Übereinstimmung mit früheren Messungen [7] ein Wert von  $m = (3,44 \pm 0,08) \cdot 10^{-2} \text{ h}^{-1}$ . Korrigiert man diesen Wert mit dem Faktor 1,26 aus 4a, so ergibt sich ein Wert von  $m = (4,34 \pm 0,26) \cdot 10^{-2} \text{ h}^{-1}$ , der gut mit dem theoretischen Wert von  $m = (4,39 \pm 0,2) \cdot 10^{-2} \text{ h}^{-1}$  übereinstimmt. Bei der Berechnung nach (4) wurde, ausgehend von dem in [7] bestimmten Wert  $A_{be} = 27 \pm 1$  aus Abb. 1, ein  $k = 0,23$  verwendet.

Auch ohne Korrektur des Anfangstransportes nach 4a läßt sich der Wert von  $k$  durch drei von einander unabhängigen Beziehungen überprüfen:

Nach (4) gilt für das Verhältnis der Steigungen des linearen Teils der Anreicherung im Sammelbehälter  $m_b$  und der mittleren Anreicherung im Trennrohr  $m_{Tr}$ :

$$v = \frac{m_b}{m_{Tr}} = \frac{\varrho_{Tr} V_{Tr}}{\varrho_b V_b + k \varrho_{Tr} V_{Tr}}. \quad (18)$$

Experimentell ergibt sich mit den in Abb. 2 dargestellten Anreicherungs faktoren ein  $v = 1,74$ , während aus (18) mit  $k = 0,23$  ein  $v = 1,75$  folgt. Dagegen folgt aus (18) mit  $k = 0,5$  ein Wert von  $v = 1,2$ .

Da für den Anfangstransport  $\tau_a^* \sim \alpha$  ( $\alpha$  Thermodiffusionsfaktor) gilt, so ergibt sich aus (4) für die Anreicherung von  $^{14}\text{CH}_4$  ( $m_{14}$ ) und  $^{13}\text{CH}_4$  ( $m_{13}$ ) bei gleichen Meßbedingungen:

$$r = \frac{m_{14}}{m_{13}} = \frac{\alpha_{14}}{\alpha_{13}} \frac{\varrho_b V_b + k_{13} \varrho_{Tr} V_{Tr}}{\varrho_b V_b + k_{14} \varrho_{Tr} V_{Tr}}. \quad (19)$$

Experimentell ergibt sich mit den in [7] gemessenen Werten für  $^{13}\text{CH}_4$  und den in Abb. 2 dargestellten Werten von  $^{14}\text{CH}_4$  ein Wert für  $r = 2,4$ . Mit  $k_{13} =$



0,32 (aus  $A_{be}=8$ ) und  $k_{14}=0,23$  (aus  $A_{be}=27$ ) beträgt  $r$  nach (19)  $r=2,24$ . Dagegen folgt mit  $k_{14}=k_{13}=0,5$  aus (19) ein  $r=1,94$ .

Eine weitere Möglichkeit zur Bestimmung von  $k$  ergibt sich aus der aus dem Massenerhaltungsgesetz abgeleiteten Beziehung (9) zwischen dem Anreicherungsfaktor im Sammelbehälter  $A_b$  und dem mittleren Anreicherungsfaktor im Sammelbehälter und Trennrohr  $\bar{A}$ . Für die Zeit  $t=365$  h erhält man aus (9) ein  $k=0,25$  und für  $t=465$  h ein  $k=0,26$  die gut mit dem theoretischen Wert von  $k=0,23$  übereinstimmen.

## 5. Diskussion

Felber und Pak [10] kommen auf anderem Weg zu den gleichen theoretischen Ergebnissen wie wir, die sie jedoch nicht experimentell überprüfen. Dazu sind das von uns angegebene Iterationsverfahren und die von uns in [7] beschriebene Methode zur indirekten Bestimmung von  $A_{be}$  erforderlich. Die in dieser Arbeit und in [7] durchgeführten Messungen liefern aus der Anreicherung von zwei verschiedenen Isotopen ( $^{13}\text{CH}_4$ ,  $^{14}\text{CH}_4$ ) und drei verschiedenen Anreicherungsformen ( $A_b$ ,  $\bar{A}$ ,  $\bar{A}_{Tr}$ , s. Abb. 2) vier unabhängige Beziehungen zur Überprüfung des

Wertes von  $k$  (siehe 4b). Diese zeigen eindeutig, daß eine Übereinstimmung mit der Theorie nur mit den iterativ berechneten Werten von  $k$  möglich ist. Die Annahme eines linearen Konzentrationsgradienten im Trennrohr entsprechend einem  $k=0,5$ , wie sie in [13] und von uns in [7] für  $t \ll T$  gemacht wurde, ist experimentell auch für kleine Anreicherungszeiten nicht erfüllt.

Die in [7] Teil 6b, Abb. 4 gefundene scheinbare Übereinstimmung des Wertes von  $m/q$  unter Verwendung eines in bezug auf  $q_e$  konstanten Wertes von  $k=0,5$ , beruht darauf, daß sich zufällig zwei Fehler kompensieren. Der gemessene Anfangstransport ist um den gleichen Faktor kleiner (siehe 4a) wie  $m/q$ , wenn man den richtigen Wert von  $k=0,285$  durch  $k=0,5$  ersetzt. In [7], Abb. 4, gilt  $m \sim q$  im Widerspruch zu 2b, 3. Jedoch sind diese Werte innerhalb der Meßfehlergrenzen auch mit den neu berechneten Werten von  $m/q$  verträglich, da diese Werte im Druckbereich von 0,5 bis 2 bar in bezug auf den größten Wert von  $m/q$  nur um maximal 17% abnehmen.

Der Deutschen Forschungsgemeinschaft danken wir für die finanzielle Unterstützung zur Durchführung dieser Arbeit.

- [1] K. Clusius u. G. Dickel, Naturwiss. **27**, 148 (1938).
- [2] K. Clusius u. G. Dickel, Z. Phys. Chem. Leipzig **B44**, 397 (1939).
- [3] G. Dickel, Proc. Int. Symp. on Isotope Separation, Amsterdam 1958, 433.
- [4] R. Kretner, Z. Phys. Chem. N.F. **87**, 284 (1973).
- [5] G. Dickel u. R. Kretner, Proc. Int. Meeting on Isotope Effects in Phys. and Chem. Processes, Cluj/Romania 1973.
- [6] R. Kretner, Dissertation Universität München 1973.
- [7] R. Kretner u. G. Dickel, Z. Naturforsch. **30a**, 554 (1975).
- [8] H. Erlenkeuser, Z. Naturforsch. **26a**, 1365 (1971).
- [9] H. Felber u. E. Pak, Sitzungsberichte der Österreichischen Akademie der Wissensch., Math. Naturw. Klasse, Abt. II, 180 Bd. 8 bis 10 Heft, 299 (1972).
- [10] H. Felber u. E. Pak, Appl. Phys. **5**, 147 (1974).
- [11] A. Haring, A. E. u. H. de Vries, Science **128**, 472 (1958).
- [12] A. E. de Vries u. A. Haring, Peaceful Uses of Atomic Energie **2**, 249 (1958).
- [13] P. M. Grootes, W. G. Mook, J. C. Vogel, A. E. de Vries, A. Haring u. J. Kistemaker, Z. Naturforsch. **30a**, 1 (1975).
- [14] R. C. Jones u. W. H. Furry, Reviews of Modern Phys. **18**, 151 (1946).
- [15] G. Dickel, Separation of Gases and Liquids by Thermal Diffusion, Physical Methods of Chemical Analysis. 2. ed. by W. Berl, Vol. IV, Academic Press, New York 1961.
- [16] G. Dickel, Z. Naturforsch. **16a**, 755 (1961).
- [17] G. Dickel u. A. Bürkholz, Z. Naturforsch. **16a**, 760 (1961).
- [18] D. Schildknecht, Diplomarbeit Universität München 1960.