

KFK-142

KERNREAKTOR  
Bau- und Betriebs-Gesellschaft m. b. H.  
Verwaltung der Zentralbücherei  
2. Juli 1963

# KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE

Februar 1963

KFK 142

Institut für Kernverfahrenstechnik  
Trenndüsenentmischung der Uranisotope bei  
Verwendung leichter Zusatzgase  
E. W. Becker, K. Bier, W. Bier und R. Schütte



KERNREAKTOR  
BAU- UND BETRIEBS-GESELLSCHAFT M. B. H.  
KARLSRUHE

Trenndüsenentmischung der Uranisotope  
bei Verwendung leichter Zusatzgase

Von E. W. BECKER, K. BIER, W. BIER und R. SCHÜTTE

**KERNREAKTOR**  
Bau- und Betriebs-Gesellschaft m. b. H.  
Verwaltung der Zentralbücherei

2. Juli 1963

# Trenndüsenentmischung der Uranisotope bei Verwendung leichter Zusatzgase

VON E. W. BECKER, K. BIER, W. BIER UND R. SCHÜTTE

Aus dem Kernforschungszentrum Karlsruhe, Institut für Kernverfahrenstechnik  
der Technischen Hochschule

(Z. Naturforschg. 18 a, 246–250 [1963]; eingegangen am 21. Dezember 1962)

Herrn Professor Dr. KLAUS CLUSIUS zum 60. Geburtstag gewidmet

Bei der Entmischung der Uranisotope in einer mit freier Expansion arbeitenden schlitzförmigen Trenndüsenanordnung kann durch einen Zusatz von 400 Mol-Proz. He zum  $UF_6$  das spezifische Ansaugvolumen auf  $1/4$  und die spezifische Schlitzlänge auf  $1/5$  der mit reinem  $UF_6$  erreichten Optimalwerte gesenkt werden. Gleichzeitig steigt jedoch die spezifische Kompressionsarbeit auf das Vierfache des früheren Optimalwertes an.

Dagegen wird bei einem Trenndüsenystem, in dem der Strahl mechanisch um  $180^\circ$  umgelenkt wird, mit einem Gemisch aus 5 Mol-Proz.  $UF_6$  und 95 Mol-Proz. He dieselbe Verminderung des spezifischen Ansaugvolumens und eine Verminderung der spezifischen Schlitzlänge auf  $1/30$  erzielt, während die spezifische Kompressionsarbeit gleichzeitig nur um 20% ansteigt. Durch die bei dem Umlenkensystem erreichte starke Abnahme der für die Investitionskosten maßgeblichen spezifischen Aufwandsgrößen wird die wirtschaftliche Situation des Trenndüsenverfahrens erheblich verbessert. Dennoch dürfte das Trenndüsenverfahren im augenblicklichen Stand der Entwicklung gegenüber dem Diffusionsverfahren nur bei der Hochanreicherung von  $U^{235}$  Vorteile bieten, bei der die geringere Stufenzahl, der Fortfall der feinporigen Membranen und die zu erwartende kleinere Einstellzeit besonders stark ins Gewicht fallen.

In einer früheren Arbeit haben wir gezeigt, daß sich die Wirtschaftlichkeit des Trenndüsenverfahrens im Fall der Argonisotope durch ein leichtes Zusatzgas beträchtlich verbessern läßt<sup>1</sup>. Durch einen Zusatz von 400 Mol-Proz. Helium konnte beispielsweise das spezifische Ansaugvolumen der Kompressoren auf etwa  $1/4$ , die spezifische Schlitzlänge der Trennelemente auf etwa  $1/5$  und die spezifische Kompressionsarbeit auf etwa  $3/4$  der Werte für reines Argon gesenkt werden. Da das Trenndüsenverfahren hauptsächlich für die Anreicherung der Uranisotope von praktischem Interesse ist, interessiert die Frage, ob sich auch in diesem Fall durch leichte Zusatzgase wirtschaftliche Erfolge erzielen lassen.

Da das für die Uranisotopentrennung allein in Frage kommende Uranhexafluorid ein fast 9-mal so großes Molekulargewicht wie Argon hat, läßt sich beim Uran ein entsprechend größeres Verhältnis der Molekulargewichte von Isotopengemisch und leichtem Zusatzgas realisieren. Es war jedoch offen, ob eine Vergrößerung dieses Verhältnisses Vorteile bringt, da unter den interessierenden Bedingungen mit einer entsprechend stärkeren Trennung zwischen Isotopengemisch und leichtem Zusatzgas gerechnet werden muß.

Im folgenden werden daher in einer mit freier Expansion arbeitenden Schlitzdüsenanordnung zunächst die Wirkungen von Helium und Argon als Zusatzgase zum Uranhexafluorid bei der Entmischung der Uranisotope verglichen. Es zeigt sich, daß bei diesem Trennsystem Helium keine wesentlich besseren Ergebnisse liefert als Argon und daß mit beiden Zusatzgasen keine eindeutigen wirtschaftlichen Vorteile gegenüber dem Fall des reinen Uranhexafluorids zu erzielen sind.

Anschließend wird die Wirkung von Helium als Zusatz zum  $UF_6$  bei einer mit künstlicher Strahlumlenkung arbeitenden Trenndüsenanordnung untersucht, wie sie früher schon für reine Gase erprobt wurde<sup>2</sup>. Durch die Kombination von leichtem Zusatzgas und künstlicher Strahlumlenkung gelingt es, die Wirtschaftlichkeit des Trenndüsenverfahrens bei der Entmischung der Uranisotope erheblich zu verbessern.

## Apparatur und Auswertung der Versuche

Die Versuche wurden in der früher beschriebenen ausheizbaren Apparatur aus rostfreiem Stahl durchgeführt<sup>3</sup>, in der die beiden  $UF_6$ -Fraktionen auf Kühlfallen ausgefroren werden. Abb. 1 zeigt Schnitte durch

<sup>1</sup> E. W. BECKER, K. BIER u. W. BIER, Z. Naturforschg. 17 a, 778 [1962].

<sup>2</sup> E. W. BECKER, H. BURGHOF u. J. GSPANN, Z. Naturforschg. 16 a, 955 [1961].

<sup>3</sup> E. W. BECKER u. R. SCHÜTTE, Z. Naturforschg. 15 a, 336 [1960].

die verwendeten Trenndüsen-systeme. Bei der mit freier Expansion arbeitenden Anordnung a betrug die Mündungsweite der konvergenten Düse 0,05 mm. Der Abstand zwischen Düse und Abschäler war gleich der einfachen, die Weite des Abschälers gleich der doppelten Düsenweite. Bei dem mit 180° Umlenkung arbeitenden System b wurde eine LAVAL-Düse verwendet, deren Weite an der engsten Stelle 0,13 mm und an der Mündung 0,25 mm betrug. Das Umlenkprofil hatte einen Radius von 0,75 mm, der Abschäler war 0,13 mm weit. Die Trennsysteme hatten senkrecht zur Zeichenebene der Abb. 1 eine wirksame Länge von 5 bzw. 10 mm.

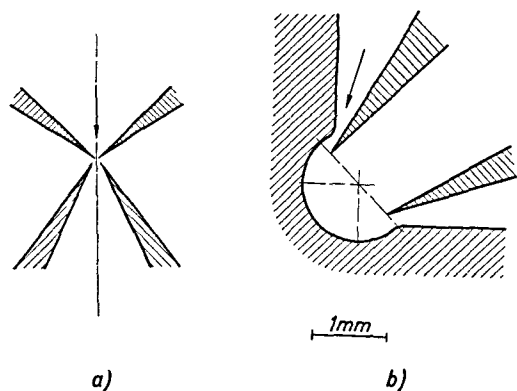


Abb. 1. Querschnitte durch die verwendeten Trenndüsen-systeme. a) Schlitzsystem für freie Strahlexpansion: Düsenweite 0,05 mm, Abschälerweite 0,1 mm, Abstand 0,05 mm, Schlitzlänge 5 mm. b) Schlitzsystem mit mechanischer Strahlumlenkung um 180°: engste Düsenweite 0,13 mm, Abschälerweite 0,13 mm, Krümmungsradius der Umlenk wand 0,75 mm, Schlitzlänge 10 mm.

Das Abschälverhältnis des  $UF_6$ -Anteils,  $\vartheta(UF_6)$ , wurde durch Auswiegen der beiden auf den Kühlfallen gesammelten und in Pipetten übergefrorenen Fraktionen gewonnen. Das Abschälverhältnis des Zusatzgases,  $\vartheta(Ar)$  bzw.  $\vartheta(He)$ , wurde auf der Druckseite der Vorpumpen volumetrisch bestimmt. Aus beiden Messungen ergibt sich als Abschälverhältnis des gesamten Strahl-gases beispielsweise

$$\vartheta = (1 - N_0) \vartheta(He) + N_0 \vartheta(UF_6)$$

( $N_0$  = Molenbruch des  $UF_6$  im Ausgangsgemisch). Das Isotopenmischungsverhältnis der Uranhexafluoridfraktionen wurde massenspektrometrisch bestimmt<sup>3</sup>.

Aus den Molenbrüchen  $n_M$  und  $n_K$  des leichten Uranisotops in der Mantel- bzw. Kerngasfraktion des  $UF_6$  wurde der Elementareffekt der Trennung

$$\varepsilon_A(UF_6) = \frac{n_M(1-n_K)}{(1-n_M)n_K} - 1$$

gebildet. Daneben wird noch der Trennfaktor zwischen Zusatzgas und  $UF_6$ , z. B.

$$A(He/UF_6) = \frac{\vartheta(He) [1 - \vartheta(UF_6)]}{[1 - \vartheta(He)] \vartheta(UF_6)}$$

angegeben. Die Gesamtdrucke in der Düsenzuleitung, im Mantel- und Kerngasraum werden mit  $p_0$ ,  $p_M$  und  $p_K$  bezeichnet.

Zur Beurteilung der wirtschaftlichen Auswirkungen der verschiedenen Maßnahmen werden mit den experimentell ermittelten Daten, wie in den früheren Arbeiten, die spezifische Kompressionsarbeit  $E_s$ , das spezifische Ansaugvolumen  $V_s$  und die spezifische Schlitzlänge  $l_s$  gebildet. Sie stellen Maße für den Energieverbrauch sowie die Investitionskosten der Kompressoren und Trennelemente dar. Wegen der Definition dieser Größen und der Voraussetzungen für ihre Verwendung im Fall der Zusatzgasmethode verweisen wir auf die in Anm. <sup>1</sup> zitierte Arbeit.

### Freie Expansion

In den Abb. 2 und 3 sind die bei freier Expansion mit Gemischen aus 20 Mol-Proz.  $UF_6$  und 80 Mol-Proz. Ar bzw. He erzielten experimentellen Ergebnisse dargestellt. Bei den Versuchen wurde der Einlaßdruck  $p_0$  und das Expansionsverhältnis  $p_0/p_K$  des Kern-gases variiert. Das Expansionsverhältnis  $p_0/p_M$  des Mantel-gases wurde auf Grund von Vorversuchen im Fall des Argons gleich 20 und im Fall des Heliums gleich 10 gewählt.

Aus den Abbildungen geht hervor, daß beim Übergang vom Argon zum Helium als Zusatzgas nur der Trennfaktor zwischen  $UF_6$  und Zusatzgas stark ansteigt. Die Elementareffekte der Trennung und die Abschälverhältnisse der Uranisotope stimmen dagegen für die beiden Zusatzgase unter vergleichbaren Bedingungen nahezu überein.

Die mit den verschiedenen Einlaßdrucken bei der Variation von  $p_K/p_0$  erzielten Minimalwerte der spezifischen Aufwandsgrößen für die Uranisotopen-trennung sind in Abb. 4 dargestellt. Bei Versuchen mit reinem  $UF_6$  wurden früher die Minimalwerte  $E_s = 3,35 \cdot 10^6$  RT,  $V_s = 0,55 \cdot 10^6$  RT/Torr und  $l_s = 1,05 \cdot 10^5$  mh/Mol erreicht<sup>4</sup>. Nach Abb. 4 ergibt

<sup>4</sup> Vgl. Tab. 3 der in Anm. <sup>3</sup> zitierten Arbeit. Zum Vergleich wurden die Optimalwerte für kleinstes Ansaugvolumen herangezogen, da die verhältnismäßig großen Investitionskosten für die Kompressoren bisher in wirtschaftlicher Hinsicht am kritischsten waren.

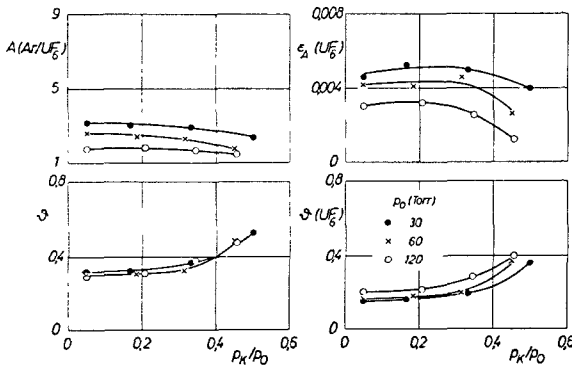


Abb. 2. Der Gemischtrennfaktor  $A(\text{Ar}/\text{UF}_6)$ , das Gesamtabschälverhältnis  $\vartheta$ , der Elementareffekt der Isotopentrennung  $\varepsilon_A(\text{UF}_6)$  und das  $\text{UF}_6$ -Abschälverhältnis  $\vartheta(\text{UF}_6)$  für verschiedene Einlaßdrücke  $p_0$  eines Gemisches mit 20 Mol-Proz.  $\text{UF}_6$  und 80 Mol-Proz. Ar in Abhängigkeit vom Druckverhältnis  $p_K/p_0$  bei dem mit freier Strahlexpansion arbeitenden Trenndüsenystem a. Das Expansionsverhältnis des Mantelgases,  $p_0/p_M$ , betrug bei diesen Versuchen 20.

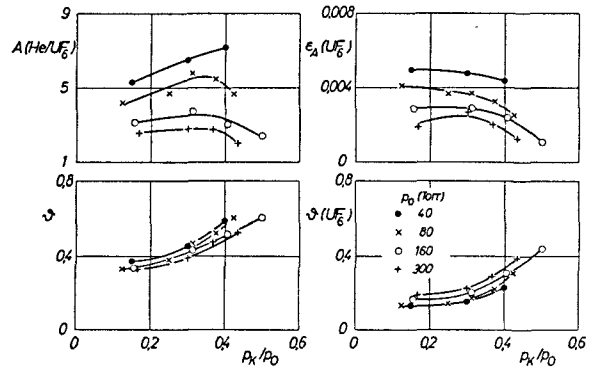


Abb. 3. Der Gemischtrennfaktor  $A(\text{He}/\text{UF}_6)$ , das Gesamtabschälverhältnis  $\vartheta$ , der Elementareffekt der Isotopentrennung  $\varepsilon_A(\text{UF}_6)$  und das  $\text{UF}_6$ -Abschälverhältnis  $\vartheta(\text{UF}_6)$  für verschiedene Einlaßdrücke  $p_0$  eines Gemisches mit 20 Mol-Proz.  $\text{UF}_6$  und 80 Mol-Proz. He in Abhängigkeit vom Druckverhältnis  $p_K/p_0$  bei dem mit freier Strahlexpansion arbeitenden Trenndüsenystem a. Das Expansionsverhältnis des Mantelgases,  $p_0/p_M$ , betrug bei diesen Versuchen 10.

sich bei dem höchsten untersuchten Einlaßdruck von 300 Torr mit dem Helium- $\text{UF}_6$ -Gemisch ein fast viermal kleineres spezifisches Ansaugvolumen und eine etwa fünfmal kleinere spezifische Schlitzlänge als beim reinen  $\text{UF}_6$  unter optimalen Bedingungen. Gleichzeitig beobachtet man jedoch eine etwa viermal höhere Kompressionsarbeit. Bei einer Verminderung des Einlaßdruckes nähern sich die spezifischen Kompressionsarbeiten für beide Gemische zwar dem Optimalwert für reines  $\text{UF}_6$ . Dabei gehen jedoch die Vorteile bezüglich  $V_s$  und  $l_s$  weitgehend verloren.

### Umgelenkter Strahl

Nach der für ein binäres Gemisch mit kleiner relativer Massendifferenz entwickelten gasdynamischen Theorie des Trenndüseneffektes nimmt die Entmischung stark mit der MACH-Zahl längs der zur Abschälerschneide führenden Stromfläche und mit dem gesamten Umlenkwinkel dieser Stromfläche im Raum zwischen Düse und Abschäler zu<sup>5</sup>. Die Hoffnung auf eine positive Wirkung des leichten Zusatzgases gründet sich vor allem darauf, daß bei einer

Verminderung des mittleren Molekulargewichtes des gesamten Gemisches die MACH-Zahl des Isotopenteils steigt<sup>6</sup>. Bei einer starken Trennung zwischen Isotopengemisch und leichtem Zusatzgas ergibt sich jedoch gleichzeitig eine Verminderung des Umlenkwinkels der zu einem bestimmten Abschälverhältnis des Isotopengemisches gehörenden Stromfläche<sup>7</sup>. Da der zweite Effekt den Entmischungsvorgang der Isotope beeinträchtigt, erschien es aussichtsreich, den fraglichen Winkel durch eine künstliche Umlenkung des Strahls im Raum zwischen Düse und Abschäler wieder zu vergrößern.

Beim reinen Argonisotopengemisch hatte die künstliche Strahlumlenkung keine eindeutigen wirtschaftlichen Vorteile gebracht<sup>2</sup>. Das kann damit erklärt werden, daß in diesem Fall die erreichbare relative Steigerung des Umlenkwinkels der Stromflächen verhältnismäßig gering, die relative Verminderung der MACH-Zahl durch die mit der Umlenkung verbundenen Entropie-erzeugenden Effekte dagegen verhältnismäßig stark ist.

Da beim  $\text{He}/\text{UF}_6$ -Gemisch im freien Strahl wegen der starken Trennung von He und  $\text{UF}_6$  nur ver-

<sup>5</sup> F. ZIGAN, Z. Naturforschg. 17 a, 772 [1962], Gl. (5).

<sup>6</sup> In der in Anm.<sup>1</sup> zitierten Arbeit haben wir die positive Wirkung des Zusatzgases durch die Vergrößerung der auf das gesamte Gemisch bezogenen relativen Massendifferenz der Isotope sowie die Vergrößerung des Produktes aus Teilchendichte und Diffusionskonstante beschrieben. Bei dieser, vor allem bei kleiner Trennung zwischen Zusatzgas und Isotopengemisch zweckmäßigen Betrachtungsweise hat man in der Gleichung für den Elementareffekt die MACH-Zahl

des gesamten Gemisches einzusetzen, die sich allenfalls auf Grund des Einflusses des Adiabatenexponenten von der des reinen Isotopengemisches unterscheidet. Bei der hier benutzten, im Fall einer starken Trennung von Isotopengemisch und Zusatzgas vorzuziehenden Beschreibung hat man dagegen die relative Massendifferenz und das Produkt aus Teilchendichte und Diffusionskonstante des Isotopenteils einzusetzen.

<sup>7</sup> Vgl. Abb. 1 und 2 der in Anm.<sup>1</sup> zitierten Arbeit.

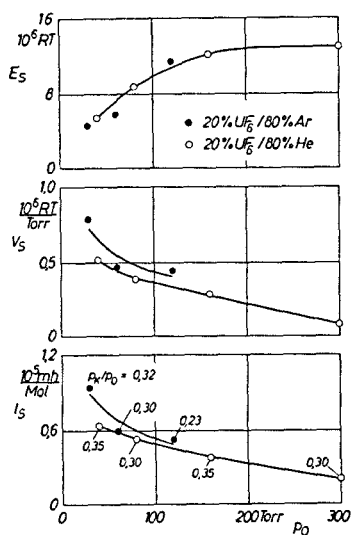


Abb. 4. Die aus den Abb. 2 und 3 für das Trenndüsen-system a folgende Abhängigkeit der spezifischen Aufwandsgrößen vom Einlaßdruck  $p_0$  bei konstantem Expansionsverhältnis des Mantelgases ( $p_0/p_M=20$  bzw. 10) und jeweils optimalem Druckverhältnis  $p_K/p_0$ . Die bei  $I_S$  angegebenen Werte von  $p_K/p_0$  gelten auch für die übrigen spezifischen Aufwandsgrößen.

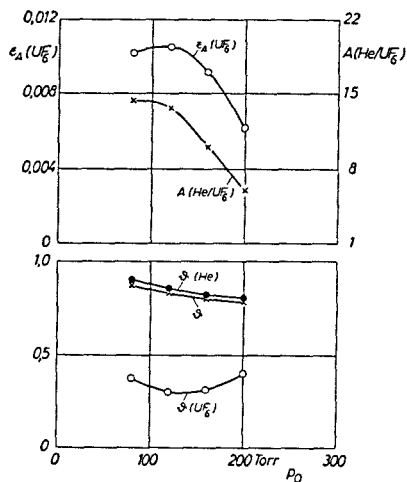


Abb. 5. Der Gemischtrennfaktor  $A$  ( $He/UF_6$ ), der Elementareffekt der Isotopentrennung  $\epsilon_A(UF_6)$ , sowie die Abschälverhältnisse des gesamten Strahlengases,  $\varphi$ , des Heliums,  $\varphi(He)$ , und des  $UF_6$ ,  $\varphi(UF_6)$ , für ein Gemisch mit 5 Mol-Proz.  $UF_6$  und 95 Mol-Proz. Helium in Abhängigkeit vom Einlaßdruck  $p_0$  bei dem mit mechanischer Strahlumlenkung arbeitenden Trenndüsen-system b. Die Expansionsverhältnisse des Mantel- und Kerngases  $p_0/p_M$  bzw.  $p_0/p_K$  betragen bei diesen Versuchen 10.

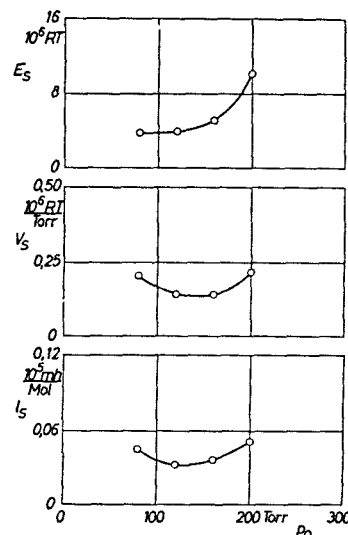


Abb. 6. Die aus Abb. 5 für das Trenndüsen-system b folgenden spezifischen Aufwandsgrößen in Abhängigkeit vom Einlaßdruck  $p_0$ .

hältnismäßig kleine Umlenkwinkel der interessierenden  $UF_6$ -Stromflächen auftreten, war in diesem Falle eine günstigere Wirkung der künstlichen Strahlumlenkung nicht ausgeschlossen.

Die bisher vorliegenden Versuche mit dem in Abb. 1 dargestellten Umlenk-system wurden mit einem Gemisch aus 5 Mol-Proz.  $UF_6$  und 95 Mol-Proz. He bei Expansionsverhältnissen  $p_0/p_M = p_0/p_K = 10$  unter Variation von  $p_0$  durchgeführt<sup>8</sup>. Abb. 5 zeigt die experimentellen Ergebnisse, Abb. 6 die daraus berechneten spezifischen Aufwandsgrößen.

Die günstigsten wirtschaftlichen Bedingungen ergeben sich nach Abb. 6 bei  $p_0 = 120$  Torr. Ein Vergleich mit den oben angegebenen Optimalwerten für reines  $UF_6$  ergibt, daß bei diesem Einlaßdruck durch die Kombination von leichtem Zusatzgas und künstlicher Strahlumlenkung die spezifische Schlitzlänge auf etwa 1/30 und das spezifische Ansaugvolumen

auf etwa 1/4 der mit reinem  $UF_6$  bei freier Strahl-expansion erzielten Optimalwerte sinkt. Trotz der Notwendigkeit zur Mitkompression des 19-fachen Heliumüberschusses steigt die spezifische Kompressionsarbeit gleichzeitig nur um etwa 20%.

Die mit reinem  $UF_6$  bei freier Strahl-expansion und mit dem Gemisch aus 5%  $UF_6$  und 95% He bei 180° Strahlumlenkung erzielten Aufwandsgrößen sind mit den zugehörigen Betriebsbedingungen in Tab. 1 gegenübergestellt<sup>9</sup>.

Setzt man die Einstellzeit der zur Vervielfachung des Elementareffektes erforderlichen Trennkaskade proportional zur spezifischen Schlitzlänge und zum mittleren Partialdruck des  $UF_6$ , so würde sich durch die Kombination von Zusatzgas und Strahlumlenkung eine Verminderung der Einstellzeit um mehr als 2 Größenordnungen ergeben. Da durch die neuen Maßnahmen der  $UF_6$ -Inhalt der Kompressoren und

<sup>8</sup> Mit reinem  $UF_6$  lieferte das Umlenk-system bei orientierenden Versuchen wesentlich schlechtere Ergebnisse als das mit freier Strahl-expansion arbeitende System.

<sup>9</sup> Bei dem Übergang von  $RT$  auf kWh/Mol und  $RT/Torr$  auf m<sup>3</sup>/Mol wurde eine mittlere Kompressortemperatur von

293 °K angenommen. Zur Ermittlung des tatsächlichen Energieverbrauches ist die spezifische Kompressionsarbeit durch den isothermen Wirkungsgrad des Kompressors zu teilen.

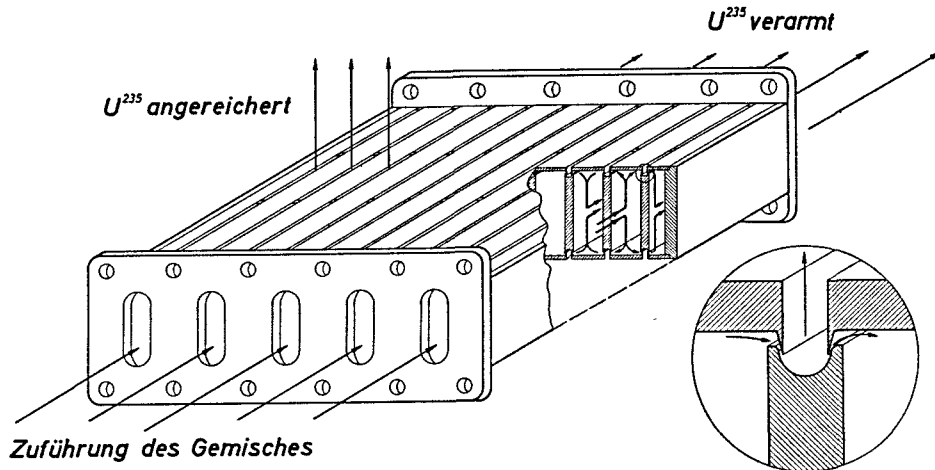


Abb. 7. Eine für halbertechnische Trennversuche geeignete Ausführungsform des mit  $180^\circ$  Strahlumlenkung arbeitenden Trenndüsen-systems. Bei einer Länge des Einzelschlitzes von 20 cm würde sich für das gesamte System bei den in Tab. 1 angegebenen Betriebsbedingungen ein  $\text{UF}_6$ -Durchsatz von etwa 38 kg pro Stunde ergeben.

	5% $\text{UF}_6$ 95% He 180° Um- lenkung	reines $\text{UF}_6$ freier Strahl
engste Düsenweite (mm)	0,13	0,05
Einlaßdruck $p_0$ (Torr)	120	30
Expansionsverhältnis für das Mantelgas $p_0/p_M$	10	30
für das Kerngas $p_0/p_K$	10	7
$\text{UF}_6$ -Abschälverhältnis $\vartheta$ ( $\text{UF}_6$ )	0,31	0,23
Gesamtabschälverhältnis $\vartheta$	0,83	—
Elementareffekt der Trennung $\varepsilon_A$ ( $\text{UF}_6$ ) $\cdot 10^3$	10,6	2,8
$\text{UF}_6$ -Durchsatz (Mol/h $\cdot$ m)	26,6	14,1
Gesamtdurchsatz (Mol/h $\cdot$ m)	530	—
spezif. Kompressions- arbeit $E_s$ ( $10^2$ kWh/Mol)	26,6	22,7
spezif. Ansaugvolumen $V_s$ ( $10^6$ m <sup>3</sup> /Mol)	2,61	10,0
spezif. Schlitzlänge $l_s$ ( $10^4$ mh/Mol)	0,32	10,5

Tab. 1. Die mit Helium als Zusatzgas bei künstlicher Strahlumlenkung erreichten spezifischen Aufwandsgrößen für die Entmischung der Uranisotope im Vergleich zu den früher für reines  $\text{UF}_6$  ohne Strahlumlenkung unter der Forderung nach kleinstem spezifischem Ansaugvolumen ermittelten Minimalwerten<sup>4</sup> (Mol = Gramm Mol, h = Stunde, m = Meter).

Rohrleitungen jedoch weniger stark abnimmt als der der Trennelemente, wird der erreichbare Fortschritt in Wirklichkeit geringer sein. Es dürfte sich jedoch eine Verminderung der Einstellzeit um mindestens eine Größenordnung erzielen lassen.

Durch die erreichte starke Verminderung des spezifischen Ansaugvolumens und der spezifischen Schlitzlänge wird die wirtschaftliche Situation des Trenndüsenverfahrens erheblich verbessert. Dennoch dürfte das Trenndüsenverfahren im augenblicklichen Stand der Entwicklung gegenüber dem Diffusionsverfahren nur bei der Hochanreicherung von  $\text{U}^{235}$  Vorteile bieten, bei der die geringere Stufenzahl, der Fortfall der feinporigen Membranen und die zu erwartende kleinere Einstellzeit besonders stark ins Gewicht fallen.

Eine für halbertechnische Trennversuche geeignete Ausführungsform des mit  $180^\circ$  Strahlumlenkung arbeitenden Trenndüsen-systems ist in Abb. 7 dargestellt.

Für die Hilfe bei der Durchführung der Versuche und bei den massenspektrometrischen Messungen danken wir Fräulein B. GEBAUER, Herrn Dipl.-Phys. P. KIRCH und Herrn G. SCHÜLER.