

Abb. 3 gedeutet werden kann: Enolhaltiger Ester (40—98-proz.), im Hochvakuum sorgfältig entlüftet, befindet sich in einem Kölbchen aus Quarz an der Hochvakuumapparatur und wird auf 0° gehalten. Man beobachtet dann eine dauernde Kondensation des Esterdampfes an den Wandungen des Rohres, mit dem das Kölbchen an die Hochvakuumapparatur angeschlossen ist, so daß — wie an einem Rückflußkühler — ständig Tropfen in das Kölbchen tropfen, obwohl das „Rückflußrohr“ Zimmertemperatur, also eine um 20° höhere Temperatur aufweist als der Ester im Kölbchen. Dies röhrt daher, daß über dem flüssigen Ester mit einem Enolgehalt > 7% die Zusammensetzung des zunächst weggehenden Dampfes > 63% E ist und das Enol sich daher z. Tl. in Keton

umwandelt. Der dadurch übersättigte Dampf kondensiert sich als Gleichgewichtester, bis schließlich der gesamte, ursprünglich an Enol hochprozentige flüssige Ester durch einen Kreislaufprozeß über den Dampf in Gleichgewichtester umgewandelt ist, obwohl der flüssige Ester streng aseptisch ist.

Systematische weitere Untersuchungen über K-E-Umwandlungen im Gaszustand, insbesondere Messungen der Umwandlungsgeschwindigkeiten, der Aktivierungsenergien und der Wirkung verschiedener Katalysatoren in homogener Katalyse im Gas, konnten leider äußerer Umstände wegen vorerst nicht weitergeführt werden.

Zur Theorie der Massen-Häufigkeitsverteilung der Bruchstücke bei der spontanen Kernspaltung

Von ERICH BAGGE

Aus dem Max-Planck-Institut für Physik, Göttingen

(Z. Naturforschg. 2a, 565—568 [1947]; eingegangen am 28. Juli 1947)

Es wird gezeigt, daß bei der spontanen Kernspaltung die Teilung infolge des quantenmechanischen Tunneleffekts mit überwiegender Häufigkeit unsymmetrisch erfolgen muß. Hierbei erweist sich die Einführung der reduzierten Masse beider Bruchstücke in die Formel für die Durchlässigkeit des Gamow-Berges als entscheidend für das Auftreten des Häufigkeitsminimums bei symmetrischer Spaltung, während Spaltungen mit zu großer Verschiedenheit beider Massen nicht vorkommen können, weil dann beide Bruchstücke eine zu hohe Coulombsche Potentialschwelle zu durchsetzen haben. Das nach der Theorie zu erwartende Häufigkeitsmaximum der Spaltungen bei den Atomgewichten $A_1 = 95$ bzw. $A_2 = 140$ paßt genau zu den Beobachtungsergebnissen.

Bei den theoretischen Untersuchungen zur Uran-spaltung blieb bisher die Frage völlig ungeklärt, weshalb die Teilung des Kerns mit überwiegender Häufigkeit in unsymmetrischer Weise^{1—9} erfolgt. Diese Beobachtungstatsache war um so unverständlicher, als theoretische Abschätzungen von Flügge und v. Drost⁷, Meitner und Frisch⁸, Bohr und Wheeler⁹ ergaben, daß die bei symmetrischer Spaltung des Urankerns freiwerdende Energie am

¹ Bezüglich des experimentellen Materials verweisen wir auf die Arbeiten 2—9.

² O. Hahn u. W. Strassmann, Naturwiss. 30, 324 [1942]; Z. Physik 121, 729 [1943]. Dort weitere Literatur.

³ T. Yasaki, Sci. Pap. Inst. physic. chem. Res. 37, 457 [1940]; Y. Nishina, T. Yasaki, R. Kimura u. M. Ikawa, Physic. Rev. 58, 660 [1940]; Nature [London] 146, 24 [1940]; Z. Physik 119, 195 [1942].

größten ist, während sie mit zunehmender Unsymmetrie relativ stark abnimmt.

Man hätte danach zunächst erwartet, daß die energetisch begünstigte symmetrische Spaltung am häufigsten auftritt und daß sich, im ganzen gesehen, eine Massen-Häufigkeitsverteilung der Bruchstücke einstellt, welche bei den Massen in der Gegend von $A_1 = 118$ ein Maximum besitzt, und

⁴ W. Jentschke u. F. Prankl, Z. Physik 119, 696 [1942].

⁵ W. Bothe u. A. Flammersfeld, Naturwiss. 29, 194 [1941].

⁶ Veröff. d. Plutonium-Projekts. Rev. mod. Physics 18, 513 [1946] mit ausführl. Literatur-Verzeichnis.

⁷ S. Flügge u. G. v. Drost, Z. physik. Chem. (B) 42, 274 [1939].

⁸ L. Meitner u. O. R. Frisch, Nature [London] 143, 239 [1939].

⁹ N. Bohr u. I. A. Wheeler, Physic. Rev. 56, 426 [1939].

die dann nach größeren und kleineren Atomgewichten hin abfällt, bis man schließlich zu Teilungsverhältnissen gelangt, bei denen keine oder nur noch wenig Energie gewonnen wird.

Tatsächlich zeigen jedoch die Experimente von Hahn und Strassmann², daß bei thermischer Spaltung überhaupt nur solche Prozesse stattfinden, bei denen das kleinere Bruchstück eine Masse etwa zwischen $A_1 = 82$ bis $A_1 = 103$ besitzt. Symmetrische Spaltungen kommen in merklicher Häufigkeit hingegen überhaupt nur vor, wenn man die Urankerne mit Neutronen von mehreren MeV Energie beschießt³. Und unter Verhältnissen, wie sie in einem Uranmeiler herrschen, bei denen sicher sowohl die thermischen als auch die schnellen Neutronen Spaltprozesse auslösen, sind nach den veröffentlichten Angaben⁴ die unsymmetrischen Spaltungen so viel häufiger als die symmetrischen, daß die Massen-Häufigkeitsverteilung der Spaltprodukte in der Gegend von $A_1 = 118$ ein sehr tiefes Minimum besitzt.

Eine theoretische Untersuchung der Spaltvorgänge hat nun ergeben, daß man jedenfalls bei der *spontanen Kernspaltung*, bei der ganz besonders einfache und durchsichtige Verhältnisse vorliegen, eine ausgeprägte Bevorzugung der unsymmetrischen Teilungsvorgänge erwarten muß, wenn man die Wirkungen des Gamowschen Potentialwalles, welchen die Teilchen beim Ablauf des Spaltprozesses zu überwinden haben, in richtiger Weise berücksichtigt.

Die Durchsetzung einer solchen Schwelle kann nämlich bei gegebener Teilchenenergie aus zwei physikalisch unabhängigen Ursachen verhindert werden. Es ist dazu entweder nur nötig, daß eine zu große Höhe dieser Potentialwand die Durchdringungsfähigkeit auf Null herabmindert: dieser Fall tritt bei der Uranspaltung ein, wenn das Teilungsverhältnis sehr unsymmetrisch wird. Oder aber es kann selbst bei relativ niedriger Höhe des Potentialwalles ein Durchtritt der Partikel unterbunden oder zumindest sehr eingeschränkt werden, wenn ihre Massen zu groß sind. Dieser Effekt spielt bei der symmetrischen Spaltung eine entscheidende Rolle.

Beide zusammen bestimmen im wesentlichen die Größe des Massenbereichs der Spaltstücke und die zu den verschiedenen Atomgewichten gehörenden Häufigkeiten.

Die spontane Uranspaltung wird nun physikalisch in der Weise zustande kommen, daß infolge

der Nullpunktsbewegungen der Nukleonen im Kern ^{235}U sich gelegentlich bis zu einem gewissen Grade Abschnürungen größerer Kernbruchstücke vorbilden, welche zum Eintritt der *spontanen* Spaltung führen können. Die Größe dieser Teilbereiche liegt zunächst nicht fest. Sie ist rein kinematisch-statistisch bestimmt, und es ist ohne weitere Annahmen kein einziges Atomgewicht vor einem anderen ausgezeichnet. Man wird darum in einer gewissen Näherung annehmen dürfen, daß das Auftreten aller möglichen Atomgewichte A_1 der abgeschnürten Teilbereiche nahezu gleich wahrscheinlich ist. Die entsprechende Verteilungsfunktion hat die Gestalt:

$$W(A_1) dA_1 = C' dA_1; \quad (1)$$

hierbei möge C' eine von A_1 näherungsweise nicht abhängige Konstante darstellen.

Die Uranspaltung tritt nun ein, wenn die durch die Nullpunktsbewegungen vorgebildeten Teilchen in der Lage sind, den vor ihnen liegenden Gamow-Berg zu durchsetzen. Dies ist jedoch nur mit einer bestimmten Wahrscheinlichkeit W der Fall, welche durch den bekannten Gamow-Faktor gegeben ist:

$$W = 10^{21} e^{-\frac{\sqrt{2\mu\Delta E_C R}}{\hbar}} [\text{sec}^{-1}]. \quad (2)$$

Hierbei bedeuten μ die reduzierte Masse der beiden Uranbruchstücke

$$\frac{1}{\mu} = \frac{1}{m A_1} + \frac{1}{m A_2} \quad (3)$$

(m : Masse eines Nukleons; A_1 : Atomgewicht des kleineren, A_2 des größeren Bruchstücks), ΔE_C die Höhe des Gamow-Berges und R eine Länge, die so bestimmt wurde, daß sich die Zerfallszeit des Kerns ^{235}U für $A_1 = 95$ zu $\tau = 8,7 \cdot 10^{20} \text{ sec}$ ergibt¹⁰. Für ΔE_C wurde dabei ein weiter unten noch näher besprochener Wert von 27,6 MeV eingesetzt, für welchen sich dann der für R sehr plausible Wert von $1,12 \cdot 10^{-12} \text{ cm}$ ergab.

Die von uns verwendete Formel (2) unterscheidet sich von der Bohr-Wheeler-Formel⁹ für diesen Fall im wesentlichen nur durch die Einführung der reduzierten Masse μ , deren Verwendung jedoch für das Verständnis der stati-

¹⁰ Es sei bezügl. weiterer Einzelheiten hierzu auf S. Flügge, Z. Physik **121**, 298 [1943], verwiesen.

stisch bevorzugten unsymmetrischen Uranspalzung ganz wesentlich ist¹¹.

Als erwartete Häufigkeitsverteilung $H(A_1)dA_1$ folgt damit aus (1) und (2) schließlich:

$$H(A_1)dA_1 = \frac{C \cdot 10}{A \cdot 16,3} \sqrt{\frac{A_1}{A} \left(1 - \frac{A_1}{A}\right)} \frac{\Delta E_c}{\text{MeV}} \cdot dA_1, \quad (4)$$

$A = A_1 + A_2 = 235 \quad (\Delta E_c \text{ in [MeV]})$

Die Höhe der Potentialschwelle für das jeweilige A_1 ist uns nicht bekannt. Man weiß nur, daß der Mittelwert über alle in Wirklichkeit auftretenden Spaltprozesse etwa 5,6 MeV beträgt. Um nun zu theoretischen Werten für ΔE_c zu gelangen, welche auch die Abhängigkeit der Schwellenergie von A_1 erkennen lassen, betrachten wir ein sehr vereinfachtes Modell des Spaltvorgangs, das zwar sicher zu hohe Werte für ΔE_c liefert, welches aber immerhin so viel mit der Wirklichkeit zu tun hat, daß es den Gang von ΔE_c einigermaßen richtig erfassen wird.

Es werde also angenommen, daß die Abschnürung beim Teilungsprozeß immer erst bis zur Ausbildung zweier kugelförmiger Kernbruchstücke führe, welche sich gerade noch berühren, bevor die Trennung der beiden Partner einsetzt. Für diesen stark idealisierten Modellvorgang ist die maximale Coulomb-Energie, die dabei freiwerden könnte, gegeben durch den Ausdruck

$$E_c = \frac{Z_1 Z_2 e^2}{r_0 \left(\sqrt[3]{A_1} + \sqrt[3]{A_2} \right)}. \quad (5)$$

Ihr Zahlenwert ist in allen Fällen um etwa 25 bis 30 MeV größer, als der Energie ϵ entspricht, die nach der Massenenergiebilanz beim Spaltprozeß gewonnen werden kann. Die Teilchen haben also gewissermaßen einen Coulomb-Berg zu überwinden von der Größe

$$\Delta E_c = E_c - \epsilon.$$

¹¹ Anmerkung bei der Korrektur: Nach Einreichung dieser Arbeit erfuhren wir durch einen Besuch Prof. Heisenbergs bei Prof. Bohr in Kopenhagen Ende August 1947, daß J. Frenkel in einer Notiz der Sowjetischen Akademieberichte in den uns bisher unzugänglichen Kriegsjahrgängen schon auf die Bedeutung der reduzierten Masse in diesem Zusammenhang hingewiesen hat. Ob er auch die weiteren in unserer Arbeit besprochenen quantitativen Folgerungen gezogen hat, ist uns leider nicht bekannt.

¹² W. Jentschke, Z. Physik 120, 165 [1942].

Den Verlauf von ϵ entnehmen wir dabei unmittelbar den Messungen von Jentschke¹², welche in Abb. 1 dargestellt sind. Dort findet sich zugleich auch der Verlauf von E_c eingezeichnet, der erkennen läßt, daß der Abstand ΔE_c der beiden Kurven von einem Minimalwert bei $A_1 = 118$ zu immer höheren Werten bei kleineren Atomgewichten A_1 anwächst. Diese Vergrößerung von ΔE_c ist schließlich dafür verantwortlich, daß

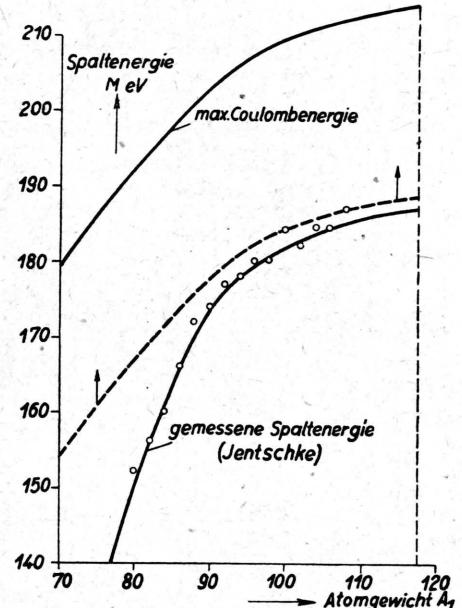


Abb. 1. Die Coulombsche Maximalenergie E_c des idealisierten Modellvorgangs bei der Spaltung und die experimentell bestimmte Spaltenergie ϵ für die verschiedenen Atomgewichte. \circ = Meßpunkte von Jentschke für die Spaltenergie von ^{235}U bei Auslösung durch thermische Neutronen. Zur deutlicheren Wiedergabe der gegenseitigen Abstandsverhältnisse beider Kurven ist der Verlauf von E_c (um 25 MeV zu kleineren Energien verschoben) gestrichelt nochmals eingezeichnet.

Bruchstücke unterhalb eines bestimmten A_1 -Wertes nicht mehr auftreten können, weil dann die Durchlässigkeit des Gamow-Berges zu stark herabgesetzt wird.

In Abb. 2 ist nun die theoretische Häufigkeitsverteilung der Spaltprodukte nach Formel (4) unter Verwendung der zuletzt besprochenen E_c -Werte eingezeichnet und zum Vergleich noch die nach den amerikanischen Angaben beim Uranmeiler beobachtete Häufigkeitsverteilung einge tragen.

Wie man sieht, stimmt die theoretische Kurve in zwei wesentlichen Punkten gut mit den experimentellen Angaben an künstlich erzeugten Spaltprozessen überein:

1. Das Maximum der Massen-Häufigkeitsverteilung der Kernbruchstücke liegt bei etwa $A_1 = 95$.

2. Bei A_1 -Werten > 100 fällt die Verteilungskurve wieder ab und erreicht ein Minimum für den Fall der symmetrischen Spaltung.

Dass die Häufigkeitsverteilung dabei für A_1 -Werte > 95 wieder absinkt, ist nach Formel (4) leicht verständlich. Es gibt ja nach dieser Glei-

Verlauf von $H(A_1)$. Der eine $[\Delta E_c > (\Delta E_c)_{\min}]$ erzwingt den Häufigkeitsabfall bei $A_1 < 95$, der andere $\left\{ \frac{A_1}{A} \left(1 - \frac{A_1}{A}\right) \approx \frac{1}{4} \right\}$ den Häufigkeitsabfall für $A_1 > 95$.

Nach unserer heutigen Kenntnis vom Gang der Massenhäufigkeitsverteilung als Funktion der Anregungsenergie des spaltenden Kerns (abnehmende Anregungsenergie entspricht einer Zunahme der Spaltungsunsymmetrie) kann nun kaum ein Zweifel darüber bestehen, dass die spontane Spaltung tatsächlich bevorzugt unsymmetrisch ablaufen wird. Und unsere theoretischen Betrachtungen zeigen, dass auch bei vorsichtiger, im Sinne des gewünschten Effekts eher übertrieben ungünstiger Extrapolation der Meßergebnisse von Jentschke sich dennoch deutlich eine Spaltungsunsymmetrie ergibt. Wir halten darum in diesem Falle die Zusammenhänge theoretisch für befriedigend geklärt. Dass dabei unsere Kurve mit der experimentellen vom Uran-Pile nicht genau zusammenfällt, ist beinahe selbstverständlich, da unsere Angaben eben nur für die spontane Spaltung richtig sind, während die experimentelle Kurve für die induzierte Spaltung durch thermische und schnelle (!) Neutronen gilt. Freilich waren wir bei der Herleitung unserer theoretischen Kurve nicht ganz konsequent, da wir als ϵ -Kurve für die Spaltenergie nicht die bisher unbekannte Kurve für die spontane Spaltung von ^{235}U , sondern die experimentelle Kurve von Jentschke für die mit thermischen Neutronen ausgelösten Prozesse zugrunde gelegt haben, wobei der Verlauf der letzteren für die Atomgewichte von $A_1 = 105$ bis $A_1 = 117$ nur durch eine ziemlich unsichere Extrapolation erschlossen werden kann. (Eine leichte, infolge des Mangels experimenteller Angaben bisher aber völlig willkürliche Abflachung der ϵ -Kurve könnte sofort ein zu den Experimenten viel besser passendes tiefes Minimum von $H(A_1)$ bei $A_1 = 117$ ergeben!) Man wird aber annehmen dürfen, dass die Kurve von Jentschke und die andere, welche für die spontane Spaltung in Wirklichkeit einzusetzen wäre, sich qualitativ und quantitativ nur wenig unterscheiden.

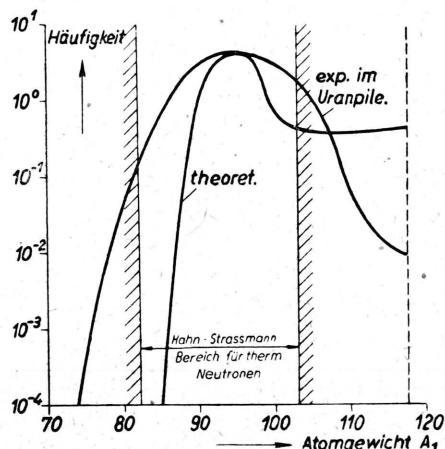


Abb. 2. Der theoretisch zu erwartende Kurvenverlauf für die Massen-Häufigkeitsverteilung der Spaltprodukte bei der spontanen Spaltung bei Verwendung der Kurve ϵ für die Spaltenergie und die experimentell ermittelte Häufigkeitsverteilung beim Uranmeiler.

Durch Schraffierung abgegrenzt: Hahn-Strassmann-Bereich der Spaltprodukte mit thermischen Neutronen.

chung zwei Möglichkeiten dafür, dass der dort auftretende Exponentiafaktor kleine Werte annimmt. Entweder nämlich ist ΔE_c relativ sehr groß, wie dies bei den Atomgewichten unterhalb von $A_1 = 95$ der Fall ist, oder der Ausdruck $\frac{A_1}{A} \left(1 - \frac{A_1}{A}\right)$ steigt verhältnismäßig rasch an, was für die Umgebung von $A_1 = \frac{A}{2}$ die Hauptrolle spielt. Beide Effekte zusammen bestimmen im wesentlichen den