

Verbindung	Q_{Kation}	$Q_{\text{Sauerstoff}}$	Q_{Edelgas}	$2 Q_{\text{EVD}}$	Ref.			
Al_2O_3	(180)	57, 152	70	65	23	24	*	18
TiO_2	—	73	22	20	—	25	*	19
Fe_2O_3	112	146	45	42	26	24	*	20
Cr_2O_3	100	—	—	50	27	—	—	18
UO_2	110	30	55 (Rn)	80, 43	28	22	*	21, 22
UO_2	88	65	72, 48 (Xe)	22	22	22, 8	—	—
			70, 48 (Kr)	—	—	29, 30	—	—

* = vorliegende Arbeit.

Tab. 1. Aktivierungsenergien (in kcal Mol⁻¹) für Diffusion in Oxyden.

2. Die Übereinstimmung der Aktivierungsenergien für Gasdiffusion, ermittelt durch direkte Messung nach Rückstoßindizierung bzw. aus dem Diffusionsanteil des Emanievermögens nach FLÜGGE und ZIMEN ist befriedigend, wenn auch die Absolutwerte gemäß der ersten Methode meistens tiefer liegen.

3. Die hier beschriebene Methode, durch α -Rückstoß ein Edelgas (ohne nennenswerten Strahlenschaden) in Festkörper einzuführen, ist offenbar geeignet, die übliche Ausgangsbedingung zur Messung

der Diffusion herzustellen. Eine analoge Indizierung mit Radioisotopen von Krypton und Xenon ist zu verwirklichen durch Vermischung der entsprechenden Substanz mit einer Uranverbindung und folgender Neutronenbestrahlung. Neon und Argon können analog durch Rückstoß, etwa durch (n, p)-Reaktionen oder Spallation eingeführt werden.

Wir danken dem Schwedischen Rat für Atomforschung für Unterstützung, Frl. G. Lowzow (Kjeller) für Bestimmungen der spezifischen Oberfläche der Oxydpulver mit der BET-Methode.

²³ R. CHANG, J. Nucl. Mat. **1**, 174 [1959].

²⁴ W. D. KINGERY, Vortrag gehalten beim IV. Int. Symp. Reactivity of Solids, Amsterdam 1960.

²⁵ R. HAUL, Vortrag gehalten beim IV. Int. Symp. Reactivity of Solids, Amsterdam 1960.

²⁶ R. LINDNER, Ark. Kemi **4**, 26 [1952].

²⁷ R. LINDNER u. Å. ÅKERSTRÖM, Z. phys. Chem. N.F. **6**, 162 [1956].

²⁸ R. LINDNER, H.J. MATZKE u. F. SCHMITZ, Z. Elektrochem. Ber. Bunsenges. physik. Chem. **64**, im Druck.

²⁹ A. B. AUSKERN, WAPD-TM-185 [1960].

³⁰ R. LINDNER u. H.J. MATZKE, Z. Naturforschg. **14a**, 1074 [1959].

Zur Chemie bei Kernprozessen

I. Die Szilard-Chalmers Reaktion an Di-benzol-chrom (0)

Von F. BAUMGÄRTNER

Institut für Radiochemie der Technischen Hochschule München

U. ZAHN und J. SEEHOLZER

Anorganisch Chemisches Institut der Universität München

(Z. Naturforsch. **15 a**, 1086—1090 [1960]; eingegangen am 10. Juli 1960)

In the (n, γ)-reaction in crystalline dibenzene chromium(0) the retention is 11,8%. This value increases to 19,4% if the irradiated sample is sublimated or if it is heated for about 30 minutes to 110 °C. It is shown, that the increase of the retention by annealing is not caused only by a reaction of electrons on the skeleton of dibenzene chromium. Beside this, benzene, added as a solvens, cannot replace the recombination-components of ⁵¹Cr in the post irradiation process. From these facts and from the independence of the annealing effect of the irradiation-dose can be concluded, that the mechanism of the fast annealing is not a recombination of separated fragments, but taken place between reaction-components, which are correlated from the very beginning.

Di-benzol-chrom(0), $\text{Cr}(\text{C}_6\text{H}_6)_2$, hat seit seiner Entdeckung¹ aus bindungstheoretischen Gründen besondere Aufmerksamkeit gefunden². Darüber

hinaus bietet es aber, zusammen mit anderen π -Komplexen, auch für radiochemische Untersuchungen auf dem Gebiet der „heißen“ Atome interes-

¹ E. O. FISCHER u. W. HAFNER, Z. Naturforschg. **10b**, 665 [1955]; Z. anorg. allg. Chem. **286**, 146 [1956].

² Vgl. E. O. FISCHER, H. P. FRITZ, Compounds of Aromatic

Ring Systems and Metals, in: Advances in Inorganic Chemistry and Radiochemistry. Vol. I, 55—115; Academic Press Inc., New York 1959.



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.

This work has been digitized 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.

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.

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.

sante Möglichkeiten. „Heiße“ Atome entstehen bei Kernprozessen. Dadurch sind sie meistens radioaktiv markiert und können gut beobachtet werden. Obwohl diese „heißen“ Atome primär ihr Molekül sehr wahrscheinlich verlassen, findet man einen Teil, der als Retention bezeichnet wird, in der Ausgangsverbindung wieder. Die Retentionsmechanismen³ ins Detail zu erforschen ist sehr schwierig, weil im allgemeinen die dabei beteiligten Molekülbruchstücke wenig definiert sind; anders ist es aber bei Komplexverbindungen zwischen Metallen und stabilen organischen Molekülen. Es wurde deshalb von uns zunächst festes Di-benzol-chrom(0) untersucht. Bei dieser Verbindung ist zu erwarten, daß die an der Retentionsbildung beteiligten Molekülbruchstücke wiederum Benzolstruktur haben, wenn es nicht überhaupt die normalen, sehr strahlungsstabilen Benzolmoleküle selbst sind, die mit den radioaktiven ⁵¹Cr-Atomen Di-benzol-chrom(0) zurückbilden. Es ist jedenfalls nicht damit zu rechnen, daß sich ⁵¹Cr(C₆H₆)₂ aus Bruchstücken des Benzolringes bildet.

Praktische Durchführung

1. Darstellung und Handhabung des Di-benzol-chrom(0)

Das verwendete Di-benzol-chrom(0) wurde über das Di-benzol-chrom(I)-kation aus CrCl₃, AlCl₃ und C₆H₆ hergestellt⁴, wobei das Kation durch Reduktion in alkalischer Lösung mit Na₂S₂O₄ in ungeladenes Di-benzol-chrom(0) übergeführt wurde. Da die Substanz luftempfindlich ist, wurden alle Operationen einschließlich der Bestrahlung und Aufarbeitung der bestrahlten Proben entweder im Hochvakuum (HV) oder unter reiner N₂-Atmosphäre ausgeführt. Um zu prüfen, ob auch nicht geringfügige Oxydation eingetreten war, wurde in einem Versuch Di-benzol-chrom(0) nach der Bestrahlung auf der magnetischen Waage gewogen. Da sich das diamagnetische Di-benzol-chrom(0) zum paramagnetischen Di-benzol-chrom(I)-kation bzw. zum Cr(III) oxydiert, ist auf diese Weise eine Oxydation von mehr als 0,5% noch sehr deutlich nachzuweisen. Es wurde aber keine Abweichung vom Diamagnetismus festgestellt⁵.

2. Bestrahlung und Meßtechnik

Zur Bestrahlung kamen Substanzmengen zwischen 100 mg und einigen Gramm, die entweder in Quarz oder in Polyäthylen unter N₂ eingeschmolzen waren. Bestrahl wurde im Forschungsreaktor München, einem

swimming-pool-Reaktor. Die Neutronenflußdichte war an thermischen Neutronen ca. 8 · 10¹² n/cm² sec, an Resonanzneutronen 1,5 · 10¹¹ n/cm² sec log Energieintervall, die Dosisleistung der ionisierenden Strahlung betrug ca. 6 · 10⁷ r/h, die Bestrahlungszeit gewöhnlich 10 Minuten. Die Temperatur am Bestrahlungsort lag nicht über 50 °C.

Als Detektor für die Aktivitätsmessungen diente ein 1 1/4 × 2" NaJ(Tl)-Bohrlochkristall. Gemessen wurde die 0,32 MeV-γ-Strahlung des 27 d Isotops ⁵¹Cr. Die 3,5-Min.-Aktivität des ⁵¹Cr war zu den Meßzeiten bereits immer abgeklungen, so daß ein möglicher Isotopeneinfluß auf die Retention nicht in Erscheinung trat.

3. Bestimmung der Retention und ihre Temperatur- und Zeitabhängigkeit

Zur Bestimmung der Retentionswerte wurde jede Bestrahlungsprobe unterteilt. In einem Teil wurde die insgesamt erzeugte, spezifische Aktivität ermittelt. In den anderen Teilen wurde nach den verschiedenen Abtrennungen und Reinigungsverfahren die spezifische Aktivität des reinen Cr(C₆H₆)₂ bestimmt und aus den Meßwerten dann die Retention errechnet. Die Bestimmung der spezifischen Aktivitäten machte unabhängig von quantitativen Trennungen. Zur Trennung des Di-benzol-chrom(0) von den Zersetzungsprodukten wurden zwei Wege eingeschlagen. Die Proben wurden entweder sofort nach Bestrahlungsende absublimiert oder erst unter reiner N₂-Atmosphäre in einem organischen Lösungsmittel gelöst, durch eine G₄-Fritte filtriert, über eine gekühlte Falle am HV getrocknet und dann sublimiert. Als letzter Schritt wurde immer eine Sublimation durchgeführt, weil dadurch Di-benzol-chrom(0) in reinster Form erhalten wird. Die Sublimation bei 110–120 °C im HV dauerte 30–60 Min. und erfolgte durch eine 5 cm lange Säule aus Glaswolle und Glasperlen, um das Mitreißen staubförmiger Verunreinigungen zu verhindern. Der Unterschied der beiden Verfahren bestand darin, daß durch das vorausgehende Auflösen etwa rekombinationsfähige Molekülfragmente in irreversibler Weise voneinander getrennt wurden, während bei der direkten Sublimation die Fragmente vermutlich leichter die Ausgangsverbindung zurückbilden und damit die Retention erhöhen konnten. Die Ergebnisse nach den beiden Trennmethoden sind in Tab. 1 dargestellt:

% Retention beim Lösen	% Retention beim Sublimieren	% Teilretention durch Tempern
11,8 ± 2,1	19,4 ± 1,8	7–8

Tab. 1. Die ⁵¹Cr(C₆H₆)₂-Retentionen beim Auflösen unter N₂-Atmosphäre in organischen Lösungsmitteln und beim Sublimieren im HV. Die Schwankungsbreiten sind die beobachteten Maximalabweichungen von den Mittelwerten bei 8 bzw. 15 Bestimmungen.

⁴ E. O. FISCHER u. W. HAFNER, Z. anorg. allg. Chem. **286**, 145 [1956], J. Seeholzer, Diss. Univ. München 1960.

⁵ Die Messungen wurden freundlicherweise im Physikalischen Institut der TH München ausgeführt. Wir danken dafür Herrn Dipl.-Phys. H. G. Olf.

³ Vgl. G. HARBOTTLE u. N. SUTIN, Szilard-Chalmers-Reaction in Solids, in: Advances in Inorganic Chemistry and Radiochemistry. Vol. I, 268; Academic Press Inc., New York 1959.

Um zu prüfen, ob die 7–8% betragende Retentionssteigerung beim Sublimieren tatsächlich auf der Temperaturerhöhung während der Sublimation beruht, wurde während einer Sublimation eine zweite Probe unter N_2 -Atmosphäre zusammen mit dem Sublimationsgefäß erhitzt aber nicht sublimiert, sondern anschließend aufgelöst, gereinigt und analysiert. Der dabei erhaltene Retentionswert war innerhalb der Versuchsgenauigkeit gleich dem Wert aus der sublimierten Probe (s. Tab. 2).

% Retention beim Lösen	% Retention beim Sublimieren	% Retention beim Lösen nach vorhergehendem Erhitzen
11,8	20,2	19,3

Tab. 2. Die um 7–8% erhöhte Retention bei der Sublimation beruht auf der erhöhten Temperatur.

Der Unterschied in den Retentionen beruht demnach auf der Temperaturerhöhung bei der Sublimation und ist vermutlich mit dem ersten, schnell verlaufenden Temperungsvorgang zu vergleichen, der auch bei anderen kristallinen Stoffen beobachtet werden kann⁶. Weiterhin wurde der Einfluß der Erhitzungszeit und der Lagerungszeit auf die Retention geprüft. Das Ergebnis ist in Abb. 1 und Abb. 2 dargestellt.

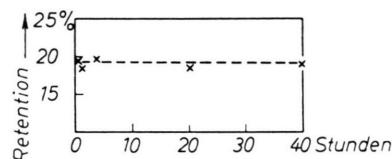


Abb. 1. Die Retention nach verschiedenen langen Erhitzungszeiten bei der Sublimationstemperatur von 110–120 °C.

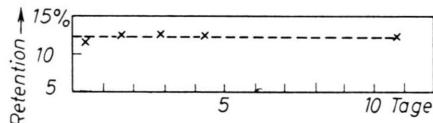


Abb. 2. Die Retention nach verschiedenen langen Lagerzeiten bei Raumtemperatur.

Bei einer Verlängerung der Erhitzungsdauer oder bei einer längeren Lagerzeit beobachtet man im Rahmen der Versuchsgenauigkeit über 40 Stunden bzw. 10 Tage keine Retentionssteigerung mehr. Man bewegt sich vermutlich, in Analogie zu anderen Verbindungen, auf einem sehr flach verlaufenden „Pseudoplateau“⁶ der Retention. Eine genauere Untersuchung durch längere Erhitzungsdauer war wegen der Zersetzung des Di-benzol-chrom(0) nicht durchzuführen.

4. Der Einfluß der Strahlungsdosis

Um den Einfluß der Strahlungsdosis auf die Retention zu prüfen, wurden einzelne Proben verschie-

den lange bestrahlt und die Retention sowohl in der getemperten, als auch in der ungetemperten Verbindung bestimmt. Das Ergebnis ist in Abb. 3 dargestellt. Mit der Strahlungsdosis steigt demnach auch die Retention an. Es ergibt sich aber, daß im untersuchten Bereich die nachträgliche, thermische Teilretention von der Strahlungsdosis nicht beeinflußt wird. Der Temperungseffekt ist offenbar unabhängig von der Zahl der durch ionisierende Strahlung erzeugten Zersetzungspunkte.

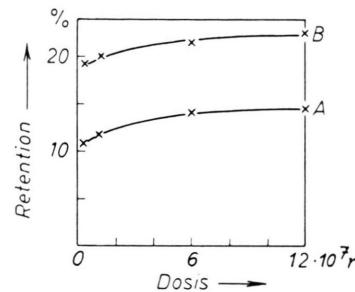


Abb. 3. Die Retention und die zusätzlich erreichbare Retentionssteigerung durch Tempern in Abhängigkeit von der Strahlungsdosis. A ungetemperte, B getemperte Proben.

5. Die Bestimmung des Di-benzol-chrom(I)-kations

Da außer dem Di-benzol-chrom(0) auch ein stabiles, luftbeständiges Di-benzol-chrom(I)-kation existiert¹, mußte damit gerechnet werden, daß nach der Bestrahlung ein Teil der aktiven Cr-Atome auch in dieser nichtsublimierbaren Form vorliegen und dann möglicherweise bei der Temperung eine Rolle spielen würde. Um eine derartige Beteiligung des Kations beim Temperungsvorgang zu klären, wurde zusätzlich die ^{54}Cr -Retention in dieser Verbindung ermittelt.

Dazu wurde einerseits Di-benzol-chrom(0) allein und andererseits die Summe von Di-benzol-chrom(0) und Di-benzol-chrom(I)-kation bestimmt. Die Differenz ergab den Kationengehalt. Für die Summenbestimmung wurde die Probe mit Aceton und Wasser angefeuchtet und an der Luft mit einem Glasstab verrieben. Dabei oxydiert sich, wenn der pH alkalisch bleibt, das $\text{Cr}(\text{C}_6\text{H}_6)_2$ nur zum Di-benzol-chrom(I)-kation. Die wässrige Lösung wurde dann über eine 50 cm lange, basische Al_2O_3 -Säule (Al_2O_3 Fa. Woelm) chromatographiert. Im Eluat wurde der Aktivitätsanteil in der Di-benzol-chrom(I)-fraktion bestimmt. Er war innerhalb der Meßgenauigkeit gleich der Di-benzol-chrom(0)-aktivität, die nach dem Auflösen eines aliquoten Teils bestimmt worden war (s. Tab. 3).

⁶ A. G. MADDOCK u. H. MÜLLER, Trans. Faraday Soc., **56**, 509 [1960].

	Versuch 1 %	Versuch 2 %	Versuch 3 %
Cr(C ₆ H ₆) ₂ extrahiert	11,0	9,0	—
Cr(C ₆ H ₆) ₂ und Cr(C ₆ H ₆) ⁺	12,7	9,2	10,3
Cr(C ₆ H ₆) ₂ sublimiert	19,4	17,6	18,5

Tab. 3. Untersuchung des Gehalts an Cr(C₆H₆)₂⁺, das ein Elektron aufnehmen und sublimierbares Cr(C₆H₆)₂ bilden könnte.

Soweit es also mit der angegebenen Genauigkeit feststellbar ist, gibt es in der bestrahlten Di-benzol-chrom(0)-Probe kein radioaktives Di-benzol-chrom(I)-kation, aus dem bei der Temperung das ungeladene Di-benzol-chrom(0) entstehen könnte! [Als weitere Fraktionen auf der Al₂O₃-Säule traten ⁵¹Cr(III) und ⁵¹Cr(VI) auf.]

6. Der Einfluß des Lösungsmittels auf die Retention

Da aus dem Fehlen von Cr(C₆H₆)₂⁺ zu schließen war, daß die Teilretention bei der Temperung nicht ein reiner Elektronenvorgang sein konnte, sondern auf einem Wiederaufbau des Molekülgerüsts beruhen mußte, war zu prüfen, ob unangeregte Molekülreste, d. h. Benzolmoleküle an diesem Rekombinationsvorgang beteiligt sind. Das geschilderte Auflösen vor der Sublimation wurde deshalb in gleicher Weise mit dem „indifferenten“ Cyclohexan und mit dem „Molekülrest“ Benzol durchgeführt. Innerhalb der Meßgenauigkeit war die Di-benzol-chrom(0)-Retention bei beiden Lösungsmitteln dieselbe (vgl. Tab. 4).

	Versuch 1 %	Versuch 2 %
Cyclohexan-Extraktion	9,8	13,0
Benzol-Extraktion	9,7	12,7

Tab. 4. Der „Molekülrest“ Benzol als Solvens zu noch rekombinationsfähigem Di-Benzol-chrom(0) zugesetzt, bringt keine Erhöhung der Retention. Freie, unangeregte Benzolmoleküle sind demnach bei der thermischen Rekombination nicht beteiligt.

Zusammenfassung und Diskussion der Ergebnisse

1. Die Retentionswerte

In kristallinem Di-benzol-chrom(0) beträgt die Retention bei einer ionisierenden Strahlendosis von ca. 10⁷ r und beim Lösen der Probe bei Raumtemperatur unabhängig vom Lösungsmittel 11,8 ± 2,1%. Der Retentionswert steigt an auf 19,4 ± 1,8%, wenn man die Probe sublimiert oder ca. 30 Min. auf

110 °C erhitzt. Die Teilretention infolge Temperaturhöhung beträgt 7 – 8%⁷.

Eine Verlängerung der Temperungszeit auf 40 Stunden verändert die Retention nicht mehr. Ebenso bleibt der Retentionswert der ungetemperten Probe bei Raumtemperatur mindestens über einen Zeitraum von 10 Tagen unverändert.

2. Retentionssteigerung bei höherer Strahlungsdosis

Eine Steigerung der Strahlendosis um das 60-fache durch eine entsprechende Verlängerung der Bestrahlungszeit von 2 auf 120 Min. bringt bei unseren Bestrahlungsbedingungen sowohl für die getemperte wie für die ungetemperte Probe in gleicher Weise eine Retentionssteigerung um 3 – 4%. HARBOTTLE und SUTIN haben für Molekülrückbildungen, die direkt unter dem Einfluß der Bestrahlung ablaufen, drei Möglichkeiten in Betracht gezogen³.

Die Ergebnisse über die Unabhängigkeit der thermischen Teilretention von der Strahlungsdosis einerseits und des Fehlens von Di-benzol-chrom(I)-kation andererseits deuten jedoch darauf hin, daß es sich weder um die Rückbildung des Ausgangsmoleküls durch Überlagerung von thermischen Störbereichen handelt, noch um eine Rückbildung durch Redoxreaktionen. Als dritte Möglichkeit wird die Rekombination des Rückstoßatoms mit Molekülfragmenten diskutiert, die durch die hohe Dosis ionisierender Strahlung entstehen. In diesem Punkt lassen unsere Versuche jedoch noch keine sichere Entscheidung zu.

3. Der Retentionsmechanismus beim Tempern

In bestrahltem, ungetempertem Di-benzol-chrom(0) ist kein Di-benzol-chrom(I)-kation vorhanden⁸. Ein

⁷ Es sei darauf hingewiesen, daß Di-benzol-chrom(0) die gleichen Retentionswerte besitzt und daß es ein ähnliches Verhalten beim Tempern und bei höherer Strahlungsdosis zeigt, wie das strukturverwandte Ferrocen, Di-cyclopentadienyl-eisen (II), vgl. N. SUTIN u. R. W. DODSON, J. Inorg. Nucl. Chem. 6, 91 [1958].

⁸ Damit ist aber die Entstehung des Kations während der Bestrahlung nicht ausgeschlossen. Auf Grund von Austauschversuchen an den ähnlichen Systemen

Fe(C₅H₅)₂/Fe(C₅H₅)⁺ (s. Anm. ⁹)
und Co(C₅H₅)₂/Cg(C₅H₅)⁺ (s. Anm. ¹⁰),

bei denen sich schon in Lösung das Austauschgleichgewicht in Bruchteilen einer Sekunde einstellt, muß vielmehr vermutet werden, daß der Elektronenübergang zwischen Kation und Di-benzol-chrom(0) sehr rasch abläuft. Da wegen der geringen Menge der radioaktiven Atome und mithin des entstandenen Kations das Austauschgleichgewicht vollständig auf der Seite der ungeladenen Verbindung liegt, ist kein Kation nachweisbar.

reiner Elektronenvorgang ohne Bewegung von Molekülfragmenten scheidet deshalb als Mechanismus des Temperungseffektes aus. Eine Rekombination mit beliebigen, auch weiter entfernt liegenden Bruchstücken läßt sich aber ebenfalls ausschließen, da dann mit Erhöhung der absorbierten Strahlendosis und einer damit verbundenen Erhöhung der Konzentration an Zersetzungprodukten im Kristall eine Zunahme des Temperungseffektes hätte erwartet werden dürfen. In der Tat ist aber die thermische Teilretention im untersuchten Bereich konstant und unabhängig von der Strahlungsdosis. Das deutet darauf hin, daß sich der Temperungseffekt nur in einer begrenzten Zone um den Entstehungsort der Fragmente abspielt. Aus Konstitutionsgründen kommen für die Rekombination nur Benzolstrukturen in Frage, denn es ist nicht damit zu rechnen, daß sich Di-benzol-chrom(0) aus Bruchstücken des Benzolringes zurückbildet. Das ungela-dene und besonders strahlenstabile Benzolmolekül dürfte in erster Linie als Rekombinationspartner zu diskutieren sein. Wenn man aber die Kristalle in einem Überschuß des „Molekülfragments“ Benzol auflöst, erreicht man keine Steigerung der Retention, obwohl retentionsfähige ^{51}Cr -Komponenten vorhan-

⁹ S. DANTON, G. S. LAURENCE, W. SCHNEIDER, D. R. STRANKS u. M. S. VAIDYA, Int. Conf. Radioisot. Sci. Res., Paris 1957, Bericht Nr. 211.

den sind. Der Temperungsmechanismus scheint dem-nach eine Reaktion zu sein, die von einem aktivier-ten Zustand der Partner ausgeht, wenn nicht von vornherein schon eine Wechselbeziehung zwischen den Reaktionspartnern besteht¹¹, worauf besonders auch die lokale Begrenzung des Temperungseffektes hinweist. Man kann diesen zur Molekülbildung fähigen Zustand auch als eine „eingefrorene, chemische Reaktion“ bezeichnen¹². Es würde dann der „akti-vierte Komplex“ im thermischen Störbereich des Kristallgitters „konserviert“ sein und sich je nach den äußereren Bedingungen zu getrennten Molekü-fragmenten oder zu einem stabilen Molekül weiter-entwickeln. Mit dieser Deutung ließe sich das Ver-halten des bestrahlten Di-benzol-chrom(0) ohne Widersprüche verstehen.

Wir danken Herrn Prof. Dr. H. J. BORN für seine freundliche Förderung, wodurch diese Untersuchungen erst ermöglicht wurden. Ebenso danken wir Herrn Prof. Dr. E. O. FISCHER für seine Unterstützung und seine zahlreichen Ratschläge. Auch Herrn J. GORTER sei für seine tatkräftige Mithilfe gedankt. Außerdem danken wir der Betriebsgruppe des FRM für die ausgeführten Bestrahlungen. Dem Bundesministerium für Atomkern-energie und Wasserwirtschaft sind wir für großzügige Gewährung von Personal- und Sachmitteln verpflichtet.

¹⁰ S. KATZ, J. WEIHER u. A. F. VOIGT, US AEC-Report ISC-1096 (1958).

¹¹ Vgl. G. HARBOTTLE u. N. SUTIN, Zusammenfassg. loc. cit. ³.

¹² G. HARBOTTLE u. N. SUTIN, J. Chem. Phys. **62**, 1344 [1958].

Zur Kleinwinkeltheorie der Vielfachstreuung

Von HANS FLEISCHMANN

Aus dem Laboratorium für Technische Physik der Technischen Hochschule München
(Z. Naturforsch. **15 a**, 1090—1096 [1960]; eingegangen am 8. September 1960)

Die vorliegende Arbeit gibt zuerst eine Untersuchung der von MOLIÈRE bei der Ableitung seines Einzelstreuquerschnittes gemachten Näherungen, aus der aber im wesentlichen nur eine relativistische Korrektur der Vielfachstreuung folgt. Eine Formel hierfür wird angegeben. Die Diskrepanz mit den Ergebnissen von HANSON und Mitarb. bei Beryllium wird auf Einflüsse der chemischen Bindung zurückgeführt. Für kleine Schichtdicken (Stoßzahl $\Omega \lesssim 100$) ergeben sich weiterhin aus der Ab-weichung der von MOLIÈRE seiner Theorie zugrunde gelegten Abschirmfunktion $q(\chi)$ von der berech-neten Änderungen in der Gesamtstreuverteilung, die sich für $10 \lesssim \Omega \lesssim 100$ in erster Näherung durch eine Vergrößerung des MOLIÈRESchen Parameters B erfassen lassen. Diese hängt von der Steil-heit von $q(\chi)$ in der Umgebung des Abschirmwinkels χ_a ab. Für den Fall großer Werte des Entwick-lungsparameters $\alpha = z Z/137 \beta$ wird eine Abschätzung dieser Vergrößerung von B gegeben. Im Mehr-fach- und Einzelstreugebiet liefert die so korrigierte MOLIÈRE-Verteilung allerdings etwas zu große Streuintensitäten.

Nach einigen Versuchen anderer hat zuerst MOLIÈRE¹ eine brauchbare Kleinwinkelnäherung für die Theorie der Vielfachstreuung geladener

Teilchen gegeben, deren Ergebnisse später von BETHE² in einer besser durchsichtigen Weise ab-geleitet wurden. Nach Berücksichtigung der inelasti-

¹ G. MOLIÈRE, Z. Naturforsch. **2 a**, 133 [1947] und **3 a**, 78 [1948]. — Gleichungen daraus im folgenden zitiert mit (Mo I ..) und (Mo II ..).

² H. A. BETHE, Phys. Rev. **89**, 1256 [1953]; Gln. daraus im folgenden zitiert mit (B ..).