

Der quadratische Term kann vernachlässigt werden, solange  $p - p_0 \ll S_+$  (A5) ist.

Das Intervall, in dem (A5) erfüllt ist, läßt sich leicht abschätzen: Als Beispiel betrachten wir den oben erwähnten Rubinlaser mit FABRY-PEROT-Resonator. Der Verlustfaktor dieses Lasers ist  $v_0 = 0,81$ , die Verstärkung beträgt folglich  $a_{\perp} = 1/v_0 = 1,23$  und  $\ln a_{\perp} \cong 0,2$ . Außerdem sind der Absorptionskoeffizient des nicht angeregten Mediums  $\sigma_{\perp} N_0 = 0,24 \text{ cm}^{-1}$  und die Länge  $L = 7,5 \text{ cm}$  bekannt. Daraus ergibt sich mit Hilfe von (A3) und (A2)

$$p_0 \cong A_{21} \quad \text{und} \quad S_+ \cong 2 p_0 \cong 2 A_{21}. \quad (\text{A6})$$

Bedingung (A5) wird damit zu  $p/p_0 \ll 3$  (A5'), läßt also eine verhältnismäßig große Änderung von  $p$  zu. Die linearisierte Form der Gl. (A4) kann auf eine anschauliche Form gebracht werden. Wir ersetzen  $N$  in (A4) mit Hilfe von (A2) durch  $\ln a_{\perp}$  und führen zwei

ausgezeichnete Pumpraten ein:  $p = p_0$  sei der Schwellwert im ungestörten Resonator mit den Verlusten  $\gamma_0/2$ ,  $p = p_i$  die Pumprate zur Erzeugung der Inversion  $N = 0$ , d. h. der Gleichbesetzung der beiden Laserniveaus. (A4) wird damit zu

$$\begin{aligned} \ln a_{\perp} &= \ln a_{\perp 0} \cdot (p - p_i) / (p_0 - p_i) \\ &= \ln a_{\perp 0} \cdot (P - P_i) / (P_0 - P_i). \end{aligned} \quad (\text{A7})$$

Wegen der Schwellwertbedingung  $\frac{1}{2} \gamma = \ln a_{\perp}$  (4b) gilt auch

$$\begin{aligned} \frac{1}{2} \gamma &= \frac{1}{2} \gamma_0 (p - p_i) / (p_0 - p_i) \\ &= \frac{1}{2} \gamma_0 (P - P_i) / (P_0 - P_i). \end{aligned} \quad (\text{A8})$$

$P_0$  ist unmittelbar meßbar,  $P_i$  kann aus dem Schwellwert  $P_{45}$  für  $\varepsilon = 45^\circ$  ermittelt werden:  $\ln a_{\perp 45} = 2 \ln a_{\perp 0}$  in (A7) eingesetzt ergibt

$$p_i = 2 p_0 - p_{45} \quad \text{und} \quad P_i = 2 P_0 - P_{45}. \quad (\text{A9})$$

## Zur Diffusion von Xenon in neutronenbestrahlten Cs-Halogeniden

### 34. Mitteilung „Edelgase in Festkörpern“

F. W. FELIX und K. MEIER

Hahn-Meitner-Institut für Kernforschung Berlin, Sektor Kernchemie

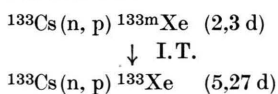
(Z. Naturforschg. 22 a, 2075—2077 [1967]; eingegangen am 9. August 1967)

The release of Xenon-133 m and Xe-133 from neutron-irradiated single crystals of Cs-halides was measured in function of temperature and neutron dose. This release could be expressed in terms of volume diffusion. The temperature dependence in CsF, CsBr and CsI can be described by the activation energies  $\leq 2, 1.45$  and  $1.14 \text{ eV}$  and the frequency factors  $\leq 1 \times 10^{12}, 1 \times 10^{12}$  and  $2.0 \text{ cm}^2/\text{sec}$  in the temperature regions  $450-600, 260-580$  and  $200-500^\circ \text{C}$  respectively. Increasing neutron doses decrease diffusion coefficients in CsBr and CsI.

Im Rahmen der systematischen Untersuchungen über die Beweglichkeit der Edelgase in Festkörpern wurde die Xenondiffusion in neutronenbestrahlten CsF-, CsBr- und CsI-Einkristallen untersucht.

### Versuchsdurchführungen

In Cs-Halogenid-Einkristallen (Dr. K. Korth, Kiel) wurde durch die Reaktionen



radioaktives Xenon im BER (integrierter schneller Fluß,  $E > 10 \text{ keV}$ :  $1,6 \cdot 10^{12} \text{ n/cm}^2 \text{ sec}$ ; max.  $80^\circ \text{C}$ ) erzeugt und nach der Bestrahlung in isothermen Versuchen die Kinetik der Edelgasabgabe bestimmt. Dazu wurden die Kristalle in Quarzgefäßen unter Luft bei Atmosphärendruck erhitzt und in geeigneten Zeitabständen ausdiffundiertes Xenon mitsamt der Luftfüllung in evakuierte Meßkammern gesaugt. Die Radioaktivität dieser Proben wurde am Pro-

portionalzählrohr gemessen. Aus mitbestrahlten Vergleichsproben wurde durch Aufschmelzen die insgesamt gebildete Gasmenge freigesetzt. Damit konnte der zu jedem Zeitpunkt ausdiffundierte Bruchteil des Edelgases und daraus schließlich nach<sup>2</sup> der Diffusionskoeffizient berechnet werden.

### Ergebnisse

Die ermittelten Temperaturabhängigkeiten für die Diffusionskoeffizienten sind in Tab. 1 zusammengestellt.

Bei hohen Temperaturen wurde in allen Systemen die Gesetzmäßigkeit für reine Volumendiffusion befolgt. Unterhalb  $450$  bzw.  $300^\circ \text{C}$  zeigten CsBr bzw. CsI bei Versuchsbeginn eine erhöhte Gasabgaberate. In diesen Versuchen wurde zur Bestimmung von  $D$  das Abklingen dieses noch nicht näher untersuchten Anlaufvorganges abgewartet.

<sup>1</sup> F. W. FELIX u. H. SEELIG, Nukleonik 8, 389 [1967].

<sup>2</sup> T. LAGERWALL u. K. E. ZIMEN, EUR 1372e [1964].



	$\Phi \times t$ ( $E > 10$ keV) n/cm <sup>2</sup>	Temp.- Bereich °C	$D_0$ cm <sup>2</sup> /sec	$D_{MP}$ cm <sup>2</sup> /sec	$\Delta H$ eV	MP °C
CsF	$3,5 \cdot 10^{16}$	450–600	$\leq 1 \cdot 10^2$	$\leq 1 \cdot 10^{-8}$	$\leq 2$	684
CsBr	$5,8 \cdot 10^{16}$	260–580	$1 \cdot 10^2$	$8 \cdot 10^{-7}$	1,45	636
CsI	$5,8 \cdot 10^{16}$	200–550	2,0	$8,0 \cdot 10^{-7}$	1,14	621

Tab. 1. Zusammenstellung der Ergebnisse.

CsF gibt ähnlich wie die Systeme KF/Ar und RbF/Ar<sup>3</sup> bei Versuchsbeginn praktisch momentan etwas Xenon ab. Dieses Verhalten läßt sich als Abgabe aus einer durch die Hygroskopizität der Fluoride veränderten Oberflächenschicht erklären. Im übrigen tritt CsF aus der Alkalifluoridreihe durch besonders starke Sublimation hervor. Bei Vorversuchen im Vakuum wurde festgestellt, daß schon mit Beginn meßbarer Gasabgabe eine reine Sublimationskinetik vorliegt (abgegebener Gasbruchteil proportional  $t$ , statt  $t^{1/2}$ ). Versuche unter trockener Luft bei Normaldruck und Zugabe von inaktiven CsF-Kriställchen lassen dagegen die Diffusionskinetik hervortreten.

	$\Delta H_{\text{Subl}}$ eV	$\Delta H_{\text{Diff}}$ eV
KF	2,51 <sup>5</sup>	1,8 <sup>4</sup>
RbF	2,38 <sup>5</sup>	1,4 <sup>3</sup>
CsF	2,12 <sup>5</sup>	$\leq 2$ [diese Arbeit]

Tab. 2. Sublimation und Edelgasdiffusion der Fluoride.

Tabelle 2 zeigt, daß sich CsF durch den geringsten Spielraum zwischen den Aktivierungsenthalpien für Sublimation und Diffusion auszeichnet, nach <sup>6</sup> ist deshalb ein sehr frühes Überholen der Diffusionsfront durch die sublimierende Probenoberfläche zu erwarten. Bei KF und RbF war dagegen auch im Vakuum eine sichere Bestimmung von  $D$  auch bei hoher Sublimationsrate möglich.

In Tabelle 3 ist schließlich der Einfluß der Neutronendosis auf die Diffusion in CsI zusammen mit Literaturwerten angegeben.

Eine Dosiserhöhung um eine Größenordnung bewirkte eine Verringerung im Diffusionskoeffizienten

Dosis n/cm <sup>2</sup>	$D_0$ cm <sup>2</sup> /sec	$\Delta H$ eV	$D_{MP}$ cm <sup>2</sup> /sec	Ref.
$10^{14}$	$5 \cdot 10^{-1}$	1,0	$1 \cdot 10^{-6}$	<sup>8</sup>
$5,8 \cdot 10^{16}$	2,0	1,14	$8,0 \cdot 10^{-7}$	diese
$5,8 \cdot 10^{17}$	$6,5 \cdot 10^{-1}$	1,14	$2,5 \cdot 10^{-7}$	Arbeit
$5 \cdot 10^{18}$	$1 \cdot 10^{-5}$	0,8	$5 \cdot 10^{-10}$	<sup>7</sup>

Tab. 3. Dosisabhängigkeit im System CsI/Xe.

$D$  bei gleichbleibender Aktivierungsenthalpie  $\Delta H$ . Die Werte von KALBITZER<sup>7</sup> zeigen bei einer nochmals um eine Größenordnung erhöhten Dosis eine sehr markante Erniedrigung. Versuche bei weiter erniedrigter Neutronendosis (die niedrigste Dosis liegt bei  $5 \cdot 10^{14}$  n/cm<sup>2</sup> bedingt durch die Nachweisbarkeit der Xenonaktivität) führten nur noch zu einer geringfügigen Erhöhung der Diffusionskoeffizienten. Diese Ergebnisse stehen in Übereinstimmung mit <sup>8</sup>. (In <sup>8</sup> wurden die Kristalle aus einer mit J-133 markierten Schmelze gewonnen. Xe-133 kann dadurch ohne Neutronenbestrahlung erzeugt werden, indem der Zerfall von J-133 abgewartet wird.)

### Vergleich zu anderen Transportvorgängen

Die  $D$ -Werte für Xe liegen bei entsprechenden Temperaturen höher als die Selbstdiffusionskoeffizienten beider Ionen <sup>9,10</sup>, während die Aktivierungsenthalpie für Xe-Beweglichkeit über derjenigen für Fehlstellenbildung liegt<sup>10</sup>. Ein Vergleich der Edelgasdiffusion in den Alkalihalogeniden zeigt: K-, Rb- und Cs-Fluoride weisen alle eine einheitliche ARRHENIUS-Gerade mit ähnlichen  $D_0$ - und  $\Delta H$ -Werten auf. Ebenso wird bei CsBr und CsI eine einzige Aktivierungsenthalpie gefunden. Der bei allen K-

<sup>3</sup> F. W. FELIX, unveröffentlicht.

<sup>4</sup> F. W. FELIX, Proc. Brit. Ceram. Soc. **9**, 273, [1967].

<sup>5</sup> A. C. P. PUGH u. R. F. BARROW, Trans. Faraday Soc. **54**, 671 [1958].

<sup>6</sup> F. W. FELIX, T. LAGERWALL, P. SCHMELING u. K. E. ZIMEN, Proc. 3rd U.N. Conf. Peaceful Uses Atomic Energy, Geneva 1964, Vol. 11, p. 363 [1965].

<sup>7</sup> S. KALBITZER, Z. Naturforschg. **17a**, 1071 [1962].

<sup>8</sup> T. S. ELLEMAN, ORO-3508-1 [1966].

<sup>9</sup> J.-F. LAURENT u. J. BÉNARD, J. Phys. Chem. Solids **3**, 7 [1957].

<sup>10</sup> D. W. LYNCH, Phys. Rev. **118**, 468 [1960].

und Rb-Halogeniden (außer Fluoriden) beobachtete, typische Übergang zu sehr niedrigen Aktivierungsenthalpien bei hohen Temperaturen tritt also nicht auf<sup>3,4</sup>. Andererseits werden am Schmelzpunkt bei CsBr und CsI gegenüber anderen Alkalihalogeniden um 1 bis 2 Größenordnungen niedrigere Diffusionskoeffizienten gemessen.

Diese vorläufigen Ergebnisse lassen noch keine Angaben über den atomaren Mechanismus zu. Die

gegenüber den übrigen Alkalihalogeniden veränderten geometrischen Verhältnisse (großer Edelgasradius, anderer Gittertyp) scheinen aber eine wichtige Rolle zu spielen.

Es ist beabsichtigt, noch weitere Messungen zur n-Dosisabhängigkeit durchzuführen und ergänzend die Transporteigenschaften in CsCl mit seinem Phasenübergang zu untersuchen.

## Interdiffusion of $^6\text{Li}$ and $^7\text{Li}$ in Isotopically Nearly Pure Lithium Metal Melts

L. LÖWENBERG and A. LODDING

Physics Department, Chalmers University of Technology, Gothenburg, Sweden

(Z. Naturforschg. **22 a**, 2077—2080 [1967]; received 23 August 1967)

A capillary-reservoir technique has been used to investigate the interdiffusion of  $^6\text{Li}$  and  $^7\text{Li}$  in nearly pure (ca. 94%)  $^6\text{Li}$ , as well as in nearly pure  $^7\text{Li}$ . At the melting point the ratio of these diffusion coefficients is about 1.30. Extrapolation to tracer concentrations gives good qualitative agreement with the ratio of the viscosities of  $^7\text{Li}$  and  $^6\text{Li}$ . The interdiffusion coefficient ratio of the melts decreases with rising temperature, also in agreement with viscosity results. Quantum effects are likely to be responsible for the strong dependence on isotope mass.

Careful measurements by BAN, RANDALL and MONTGOMERY<sup>1</sup> have shown that there is a very considerable difference in viscosity between isotopically pure liquid  $^6\text{Li}$  and  $^7\text{Li}$ . The ratio of the viscosity of  $^7\text{Li}$  to that of  $^6\text{Li}$  was found to be 1.44 at the melting point (about 180 °C), decreasing to 1.33 at 286 °C. This result, in striking contrast with the root-of-mass relationship expected on simple arguments, has hitherto not received a fully acceptable theoretical explanation. The surprising nature of the results of viscosity measurements motivates the inquiry, whether a similar isotope mass difference can be detected also in other transport properties.

The interdiffusion of the two Li-isotopes in liquid lithium of about natural composition has recently been measured between 196 and 440 °C<sup>2</sup>, and it has been shown that a modified Stokes-Einstein formula, correlating self-diffusion with viscosity, is well obeyed. The purpose of the present work is to make a similar measurement in liquid lithium of reversed isotopic composition, i.e. to compare the results in nearly pure  $^6\text{Li}$  with those in nearly pure  $^7\text{Li}$ .

The capillary-reservoir arrangement described in ref.<sup>2</sup> was used also for the present investigation. Two slight modifications were made: a) the open capillary ends were turned upwards instead of downwards, thus reducing the risk of clogging the orifices with "skin" impurity in the reservoir; b) thermocouples were placed at several points of the bath and holder, permitting a more exact extrapolation to the temperature of the metal in the capillary and making sure of the absence of gravitational convection. The capillary diameter was 0.6 mm throughout.

For the  $^6\text{Li}$ -rich metal a series of measurements was made at three different temperatures. Another series, at two temperatures, was made for the metal with natural composition, the reason being that it was not considered as sufficiently safe from systematic error to use the results of ref.<sup>2</sup> for the comparison, in view of the above-mentioned modifications. In this way both compositions were investigated under identical experimental conditions. Also, the earlier results could now be checked and the influence of the modifications assessed.

<sup>1</sup> N. T. BAN, C. M. RANDALL, and D. J. MONTGOMERY, Phys. Rev. **123**, 6 [1962].

<sup>2</sup> A. OTT, and A. LODDING, Z. Naturforschg. **20 a**, 1578 [1965].