

NOTIZEN

Kernrückstoß in festen Stoffen und Knock-out-Effekt

K. E. ZIMEN und P. MERTENS

Hahn-Meitner-Institut für Kernforschung, Berlin

Herrn Prof. Dr. Nikolaus Riehl zum 70. Geburtstag gewidmet

(Z. Naturforsch. 26 a, 773—775 [1971]; eingegangen am 1. März 1971)

In einer großen Zahl von Arbeiten¹ wurde die von O. Hahn eingeführte sogen. Emaniermethode benutzt, um Aussagen über Transportmechanismen und Fehlordnungen in festen Stoffen zu gewinnen. Nach der Theorie dieser Methode² setzt sich das Emaniervermögen, d. h. die Austrittswahrscheinlichkeit der Edelgasatome (ϵ), zusammen aus einem Rückstoßanteil und einem Diffusionsanteil: $\epsilon = \epsilon_R + \epsilon_D$. Der hier interessierende Rückstoßanteil ergibt sich nach², z. B. für ein kugelförmiges Korn, aus

$$\epsilon_R = \frac{3}{4} \frac{R}{r} - \frac{1}{16} \left(\frac{R}{r} \right)^3 \quad (2r \geq R); \quad (1)$$

R = Rückstoßreichweite, r = Kornradius.

Werden die Abstände zwischen den einzelnen Körnern in der Packung kleiner als R in Luft, so sollten nach einfachem geometrischen Modell die Rückstoßatome, die aus einem Korn austreten, z. Tl. in die Oberfläche eines anderen Kornes eindringen und steckenbleiben. Für diesen Fall gilt nach² an Stelle von Gl. (1) in guter Näherung:

$$\epsilon_R = \frac{3}{2} \frac{v_P}{v_K} \frac{\bar{A}_K}{\bar{A}_P} \frac{\varrho_P}{\varrho_K}. \quad (2)$$

Index K: Korn, Index P: Pore, \bar{A} : unter Berücksichtigung des relativen Bremsvermögens gewogenes mittleres Atomgewicht (vgl. ²), ϱ : Dichte, v : Volumen.

Abb. 1 zeigt den Verlauf von ϵ_R im Gültigkeitsbereich von Gl. (1) und (2). Von größeren zu kleineren Korngrößen gehend wird ϵ_R unabhängig von R und konstant, sobald die Abstände zwischen den Körnern kleiner als die Rückstoßreichweite in Luft (z. B. $R_{Tn} = 80 \mu m$) werden. Mit den für das $BaCO_3$ -System zutreffenden Werten: $\bar{A}_K = 19,2$; $\varrho_K = 4,28$; $\bar{A}_P = 14,5$; $\varrho_P = 1,3 \cdot 10^{-3}$ folgt aus Gl. (2) bzw. Gl. (1) mit $v_P/v_K = 6$:

$$\epsilon_{R, \max} = 0,36\% \quad \text{und} \quad r_{\min} = 7,7 \mu m.$$

Bei Korngrößen $< 8 \mu m$ sollte also der Packungseffekt eintreten, das maximale ϵ_R sollte 0,4% betragen und unabhängig von der Korngröße sein.

Sonderdruckanforderungen an Prof. Dr. K. E. ZIMEN, Hahn-Meitner-Institut f. Kernforschung Berlin, D-1000 Berlin 39, Glienickerstraße 100.

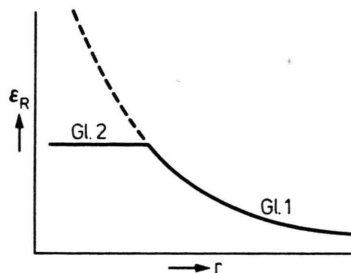


Abb. 1. Abhängigkeit des Rückstoß-Emaniervermögens vom Kornradius, schematisch (nach FLÜGGE u. ZIMEN²).

Beobachtet wurde jedoch, daß eine Beeinflussung von ϵ durch den Packungseffekt scheinbar erst einsetzt bei sehr viel kleineren Abständen zwischen den Körnern als nach dem geometrischen Modell zu erwarten wäre. Abb. 2 zeigt die gemessenen Austrittswahrscheinlichkeiten von Thoron aus $BaCO_3$ -Tabletten in Abhängigkeit von v_P/v_K .

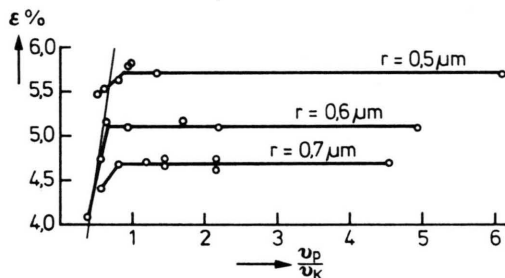


Abb. 2. Experimentelle Beobachtung des Packungseffekts an $BaCO_3$ (nach FLÜGGE u. ZIMEN²).

Es ergibt sich:

1. Bei den im Experiment verwendeten viel kleineren Korngrößen zwischen 0,5 und 0,7 μm ist die Austrittswahrscheinlichkeit — wie bei Einzelkörnern — etwa umgekehrt proportional der Korngröße und liegt zudem über eine Größenordnung höher (bei 4,7 bis 5,7%) als das berechnete $\epsilon_{R, \max}$.

2. Noch größer wird die Diskrepanz für gepreßte Tabletten mit $v_P/v_K = 1$, da mit diesem Wert nach Gl. (2) bzw. Gl. (1) resultiert:

$$\epsilon_{R, \max} = 0,06\% \quad \text{und} \quad r_{\min} = 46 \mu m.$$

3. Erst bei $v_P/v_K < 1$ ist ein Packungseffekt zu erkennen.

¹ Vgl. K. E. ZIMEN u. H. D. FREYER, Edelgase in Festkörpern (Transport-Phänomene) [Bibliographie bis Ende 1966] AED-C-29-01 (Juli 1966) und AED-C-29-02 (Febr. 1968).

² S. FLÜGGE u. K. E. ZIMEN, Z. Physik. Chem. (B) 42, 179 [1939].



Zur Deutung dieses „verspäteten“ Packungseffektes wurde in ² zunächst an einen „Trichtereffekt“, d. h. einen schnellen Diffusionsvorgang des Tn-Atoms aus dem Bereich lokaler Überhitzung gedacht. Die schweren Tn-Rückstoßatome geben ihre Energie (bei Tn rd. 10^5 eV) auf einer Strecke von nur einigen 100 Gitterkonstanten an das Gitter ab, und zwar in der Hauptsache durch elastische Stöße und Verlagerung von Gitterbausteinen³. Da somit beim Einschub eines Rückstoßatoms in eine Oberfläche auf diese Weise ein Trichter momentan hocheingehitzter Materie entsteht, könnte das Rückstoßatom vom Ende seiner Bahn durch schnelle Diffusion wieder aus dem Einschubtrichter herausgelangen.

Diese Deutung wurde jedoch in ² für unwahrscheinlich erklärt mit der Begründung, daß der Diffusionskoeffizient in einer Schmelze von der Größenordnung 10^{-4} cm² s⁻¹, der für die Erstarrung einer Schmelze maßgebende Wärmeleitungskoeffizient hingegen 10^{-1} cm² s⁻¹ sei. Statt dessen wurde vermutet, daß die Poren zwischen den Körnern bei dem genannten System infolge Anwesenheit von Wasser oder anderen Verunreinigungen eine stärkere Bremswirkung besitzen als Luft.

Eine andere Deutung dieser und ähnlicher Versuche wurde von RIEHL⁴ vorgeschlagen: Die Energie der Rückstoßatome würde in Hydroxiden, Karbonaten und ähnlichen Systemen ausreichen, um irreversible Zersetzungen im Gitter zu verursachen, und die Edelgasatome würden durch diesen explosiven Gas- oder Dampfausbruch zusammen mit den Dissoziationsprodukten aus dem Einschubkanal hinausgespült.

Weder der „Verunreinigungseffekt“ noch der „Auspüleeffekt“ sind in diesen Arbeiten oder später experimentell bewiesen worden und können auch nicht generell zutreffen. Heute dürfte es möglich sein, die angeführten und viele andere Experimente in der Tat mit dem „Trichtereffekt“ zu deuten, wie neue Experimente im Zusammenhang mit dem in den letzten 10 Jahren näher untersuchten Knock-out-Effekt⁵ zeigen.

Dieser Effekt, das Herausschlagen oberflächennaher Atome durch die Stoßkaskaden hochenergetischer Teilchen, wurde kürzlich experimentell und rechnerisch auch von MERTENS⁶ an UO₂-Schichten untersucht, indem die bei der Bestrahlung von dünnen UO₂-Schichten (0,2–6 µm) auf eine Fängerfolie gelangenden U-Atome mit einer dünnen Glimmerfolie bedeckt und nochmals bestrahlt wurden. Die bis auf einen Faktor 2 reproduzierbaren experimentellen Ergebnisse stimmen gut überein mit maschinellen Rechnungen über die Stoßkaskaden unter Benutzung des Thomas-Fermi-Potentials und führten zu einem Knock-out-Koeffizienten (Zahl der U-Atome, die das UO₂ pro Kernspaltung verlassen) von 10^2 – 10^3 . Abdrucke, die von den bestrahlten UO₂-Schichten gemacht wurden, zeigen, daß

die Spaltprodukte an Oberflächen Austrittskrater hinterlassen, die offensichtlich für den Knock-out-Effekt verantwortlich sind (Abb. 3).

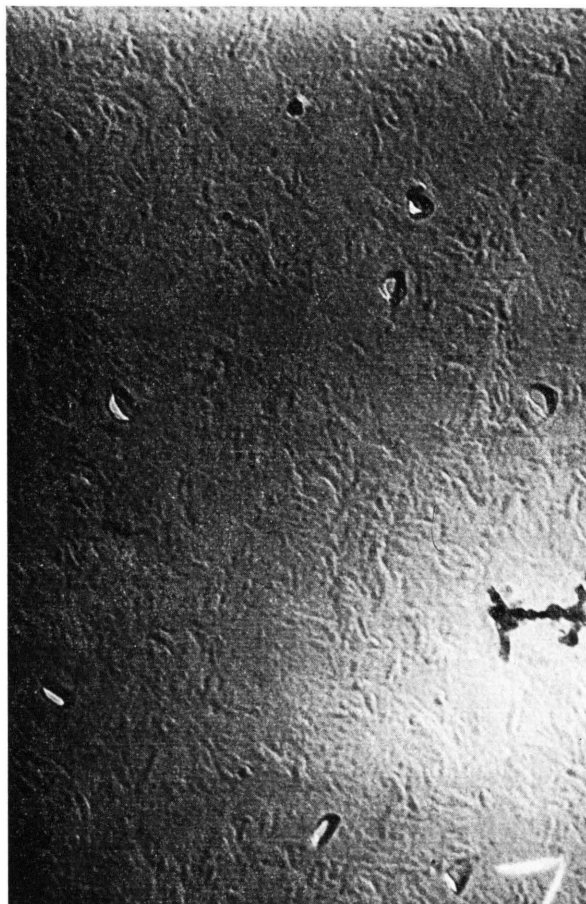


Abb. 3. Oberflächenabdruck einer bestrahlten UO₂-Schicht (Gesamtvergrößerung 80 000).

In Abb. 4 ist das Modell einer Stoßkaskade dargestellt. Das Rückstoßatom verlagert längs seiner Bahn eine große Zahl von Gitterbausteinen praktisch im rechten Winkel, und diese Gitteratome erzeugen bei ihrer Abbremsung Bezirke, indem das Gitter lokal und momentan stark energetisch angeregt ist. Schneidet ein solcher Bereich die Oberfläche, so kann ein Teil der angestoßenen Gitterbausteine die Oberfläche verlassen. Wegen der hohen Anregungsdichte u. a. am Ende der Spaltproduktbahn kann der gesamte Querschnitt des Einschubkanals zum Knock-out-Effekt beitragen.

Auch wenn die Energie der Spaltprodukt-Rückstoßkerne (85 MeV) wesentlich größer ist als die der durch

³ J. BIRSACK u. K. E. ZIMEN, Z. Naturforsch. **16 a**, 849 [1961]. — J. BIRSACK, HMI-Bericht B 37, Aug. 1964; Z. Phys. **211**, 495 [1968].

⁴ N. RIEHL, Kerntechnik **3**, 518 [1961].

⁵ Vgl. B. V. ERSHLER u. F. S. LAPTEVA, J. Nucl. Eng. **II**, 4, 471 [1957]. — M. D. ROGERS, J. Nucl. Mater. **22**, 103 [1967]. — G. NILSSON, J. Nucl. Mater. **20**, 231 [1966] und frühere in diesen Arbeiten zitierte Literatur.

⁶ P. MERTENS, HMI-Bericht B 105, im Druck.

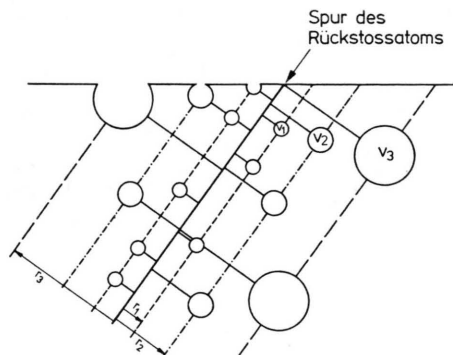


Abb. 4. Modell einer Stoßkaskade, schematisch.

α -Zerfall gebildeten Thoron-Kerne (0,1 MeV), dürften sich diese Ergebnisse doch qualitativ auf die Untersuchungen über das ε_R der Radon-Isotope aus festen Stoffen übertragen lassen. Die Deutung der in Abb. 2 wiedergegebenen Versuche wäre dann die folgende.

Die gemessenen Austrittswahrscheinlichkeiten sind *nicht* bedingt durch Tn-Rückstoßatome (das ε_R liegt vielmehr, wie oben berechnet, unter 0,36% infolge des Packungseffekts). Die hohen Austrittswahrscheinlichkeiten der Edelgasatome beruhen vielmehr auf dem Knock-out-Effekt (ε_{ko}), der die Gitteratome in dem Bereich des Rückstoßtrichters (Länge und Breite von der Größenordnung 100 bzw. 10 Å) momentan in einen quasi-gasförmigen Zustand versetzt. Dabei werden einige Gitteratome tatsächlich von der Oberfläche abgedampft (Knock-out-Koeffizient), während der größte Teil schnell wieder kondensiert. Zuvor kann aber das

Tn-Rückstoßatom vom Endpunkt seiner Bahn (und ggf. — bei sehr hoher Konzentration der Muttersubstanz — auch die im Bereich des Rückstoßkanals befindlichen Thoron-Atome thermischer Energie) herausdiffundieren.

Daß diese Deutung in ² zu Gunsten eines „Verunreinigungseffektes“ aufgegeben wurde, beruhte auf dem gedanklichen Fehler, mit einem Diffusionskoeffizienten in einer Schmelze zu rechnen, statt mit dem D -Wert in einem heißen Dampf von $>10^{-1}$ cm²/s (womit natürlich nicht gesagt ist, daß nicht u. U. Verunreinigungen in den Poren einen Einfluß auf das ε_R haben können). Die Riehlsche Vorstellung einer explosiven „Ausspülung“ kommt unserem Knock-out-Modell bereits sehr nahe, nur erübrigt es sich, gasförmige Dissoziationsprodukte (wie z. B. CO₂ bei Karbonaten, H₂O bei Hydroxiden etc.) heranzuziehen, was den Effekt in seiner generellen Bedeutung einschränken würde.

Auch die beobachtete Abhängigkeit des gemessenen ε von der Korngröße (Abb. 2) ist verständlich, da ein ε_{ko} — ebenso wie ε_R — umgekehrt proportional r sein muß. Der für $v_P/v_K < 1$ beobachtete Packungseffekt schließlich erklärt sich dadurch, daß bei diesem Preßdruck die freie Oberfläche, d. h. die Oberfläche, von der Knock-out- und Edelgasatome verdampfen können, durch Abdeckung mit anderen Körnern reduziert wird.

Eine Überprüfung der vielen Versuche, bei denen aus einem gemessenen „ ε_R “ Oberflächen berechnet oder andere Schlußfolgerungen gezogen wurden, dürfte somit notwendig sein. Zuvor sollte die hier vorgebrachte Hypothese weiter experimentell überprüft werden, z. B. durch die zu erwartende Abhängigkeit des ε_{ko} von der Thoron-Konzentration des Festkörpers, und eine quantitative Beziehung für ε_{ko} ermittelt werden.

Über den Multiplett-Effekt bei der dynamischen Kernpolarisation an ¹³C in rotierenden Methylgruppen

WOLFGANG BUCHNER *

Max-Planck-Institut, Abteilung für Molekulare Physik
Heidelberg

(Z. Naturforsch. 26 a, 775—776 [1971]; eingegangen am 3. März 1971)

In einer früheren Arbeit¹ wurde die Beobachtung beschrieben, daß bei der dynamischen Kernpolarisation von α -¹³C-Toluol, in dem ein freies Radikal (p-Cl-BPA) gelöst ist, die inneren Linien des ¹³C-Quartetts der Methylgruppe eine stärker negative Polarisation zeigen als die äußeren. Die beobachtete Abhängigkeit von der Radikalkonzentration läßt darauf schließen, daß dieses Ergebnis auf dem 3-Spin-Effekt² beruht. Im einzelnen

geht die Theorie¹ davon aus, daß wegen der schnellen Rotation der Methylgruppe die Wirkung der drei Protonen auf die Relaxation des α -¹³C-Kernes durch diejenige eines einzigen, auf der Achse befindlichen Spins I_1 ersetzt werden kann, für den die quantenmechanische Addition der drei Protonenspins die Werte 3/2 (Quartett) bzw. 1/2 (Dublett) ergibt. Nun ist sowohl die Polarisation der Spins I_1 als auch der Anteil der longitudinalen ¹³C-Relaxationsrate, der auf der Wechselwirkung mit I_1 beruht, proportional zu $I_1(I_1+1)$, woraus sich¹ die beobachtete unterschiedliche Polarisation der inneren und äußeren Linien ergibt. Die Theorie ließ also erwarten, daß es sich hierbei um eine allgemeine Erscheinung rasch rotierender Methyl- (und möglicherweise anderer) Gruppen handelt.

In der vorliegenden Arbeit wird die experimentelle Untersuchung des Effektes auf die Xylole und Mesitylen ausgedehnt. Diese Substanzen standen nur mit

Sonderdruckanforderungen an Sekretariat, Max-Planck-Institut, Abteilung Molekulare Physik, D-6900 Heidelberg, Jahnstraße 29.

* Jetzige Adresse: AEG-Telefunken, 715 Backnang, Gerberstraße 34.

¹ W. BUCHNER u. B. EMMERICH, J. Mag. Res. 4, 90 [1971].

² K. H. HAUSER u. D. STEHLIK, Adv. Mag. Resonance 3, 79 [1968], J. WAUGH, ed., Academic Press, New York 1968.