

Physik der Universität Hamburg durchgeführt. Für die Anregung und Förderung der Arbeit bin ich dem Leiter des Instituts, Herrn Professor Dr. H. Raether, zu großem Dank verpflichtet.

Dem Leiter der Virusabteilung des Tropeninstitutes, Herrn Dr. D. Peters, Hamburg, und seinem Mitarbeiter Herrn R. Geister danke ich für die freund-

liche Hilfe bei der Herstellung der elektronenmikroskopischen Aufnahmen.

Die Fa. Leitz-Wetzlar stellte freundlicherweise das benötigte Kristallmaterial zur Verfügung.

Für die Unterstützung der Arbeiten durch Überlassung einer Hochspannungsanlage und anderer Geräte gilt mein besonderer Dank der Deutschen Forschungsgemeinschaft.

Zur Theorie der Kernverdampfung

Von Rolf Hagedorn

Aus dem Max-Planck-Institut für Physik,
Göttingen

(Z. Naturforschg. 9a, 259–261 [1954]; eingeg. am 8. Dez. 1953)

Es wird eine von Weißkopf¹ abgeleitete Formel für die Emissionswahrscheinlichkeit in solcher Weise neu abgeleitet, daß die Rolle der Auswahlregeln deutlich wird.

I. Kernverdampfung und Auswahlregeln

In dem Verdampfungsprozeß

$$A \rightarrow (A - a) + a \equiv B + a \quad (1)$$

bedeutet $A(N, Z)$ den Mutterkern von $N + Z = A$ Nukleonen und $a(n, z)$ das emittierte Teilchen von $n + z = a$ Nukleonen, $B(N - n, Z - z)$ den Restkern.

Den Anfangs- und Endzustand bezeichnen wir durch je einen vollständigen Satz von Quantenzahlen $\alpha \equiv (\alpha_1, \alpha_2, \dots)$ und $\beta \equiv (\beta_1, \beta_2, \dots)$. Mit einem Integral über α bzw. β ist gemeint: Integration über kontinuierliche, Summation über diskrete Quantenzahlen. Mit α_0 und β_0 bezeichnen wir gewisse Gebiete im α - und β -Raum, d. h. eine Auswahl von Zuständen.

Die Wahrscheinlichkeit pro Zeiteinheit für einen Übergang von einem scharfen Zustand α in einen scharfen Zustand β ist

$$w(\alpha\beta) = \frac{2\pi}{\hbar} |H'_{\alpha\beta}|^2 \delta(E_\alpha - E_\beta). \quad (2)$$

Im allgemeinen steht aber nicht nur ein Zustand β , sondern ein ganzes Gebiet von Endzuständen β_0 zur Debatte:

β_0 enthält *alle* Endzustände, in denen das Teilchen a eine innere (= Bindungs- + Anregungs-) Energie ε_a , einen Spin s und eine kinetische Energie zwischen ε und $\varepsilon + \Delta\varepsilon$ hat. (Alle übrigen Quantenzahlen durchlaufen also ihren vollen Definitionsbereich.)

Ist jetzt $z_2(\beta)d\beta$ die Zahl der Zustände im Volumenelement $d\beta$, so wird offenbar

$$w(\alpha\beta_0) = \frac{2\pi}{\hbar} \int_{\beta_0} d\beta z_2(\beta) |H'_{\alpha\beta}|^2 \delta(E_\alpha - E_\beta). \quad (3)$$

Experimentell ist stets eine statistische Gesamtheit von Kernen A gegeben, von denen man weiß, daß ihre Energie zwischen E_A und $E_A + \Delta E_A$ liegt. Dem entsprechend:

α_0 enthält *alle* Anfangszustände, in denen die Energie von A zwischen E_A und $E_A + \Delta E_A$ liegt.

Auf diese insgesamt $\int_{\alpha_0} z_1(\alpha)d\alpha$ Zustände [$z_1(\alpha)$ analog

zu $z_2(\beta)$] verteilen wir N_1 Kerne nach einer Besetzungsfunktion $f_1(\alpha)$. Dann ist $N_1 = \int_{\alpha_0} f_1(\alpha) z_1(\alpha) d\alpha$. Die mittlere Emissionswahrscheinlichkeit wird

$$w(\alpha_0\beta_0) = \frac{1}{N_1} \int_{\alpha_0} f_1(\alpha) z_1(\alpha) w(\alpha\beta_0) d\alpha \quad (4)$$

$$= \frac{\frac{2\pi}{\hbar} \int_{\alpha_0} d\alpha f_1(\alpha) z_1(\alpha) \int_{\beta_0} d\beta z_2(\beta) |H'_{\alpha\beta}|^2 \delta(E_\alpha - E_\beta)}{\int_{\alpha_0} d\alpha f_1(\alpha) z_1(\alpha)}.$$

Die δ -Funktion bewirkt, daß die Gesamtenergie des Endzustandes im gleichen Intervall ΔE_A liegt, wie die des Anfangszustandes; und β_0 soll ab hier dementsprechend weiter eingeschränkt sein.

Nun betrachten wir den umgekehrten Fall, daß eine nach einer Besetzungsfunktion $f_2(\beta)$ in β_0 verteilte Gesamtheit von $N_2 = \int_{\beta_0} f_2(\beta) z_2(\beta) d\beta$ Absorptions-

versuchen $a + B \rightarrow A$ gemacht wird, wobei $f_2(\beta) z_2(\beta) d\beta$ die Zahl der Versuche ist, bei denen die Quantenzahlen vor der Reaktion im Volumenelement $d\beta$ lagen. Die mittlere Wahrscheinlichkeit pro Zeiteinheit für eine nach α_0 führende Absorption ist offenbar

$$w(\beta_0\alpha_0) = |j(\varepsilon)| \sigma[f_2, \varepsilon, E_A] \quad (5)$$

$$= \frac{\frac{2\pi}{\hbar} \int_{\beta_0} d\beta f_2(\beta) z_2(\beta) \int_{\alpha_0} d\alpha z_1(\alpha) |H'_{\beta\alpha}|^2 \delta(E_\alpha - E_\beta)}{\int_{\beta_0} d\beta f_2(\beta) z_2(\beta)}.$$

Zu (2) zurückkehrend bemerkt man, daß hier die Auswahlregeln in voller Schärfe in $|H'_{\alpha\beta}|^2$ stehen und dieser Ausdruck für Übergänge, die z. B. nicht dem Drehimpulssatz genügen, verschwindet. Als Funktion von β ($\alpha = \text{const}$) wird $w(\alpha\beta)$ also schnell schwanken zwischen Null und einem Wert für erlaubte Übergänge, der in β_0 langsam veränderlich ist. In (3) ist über β integriert und das Ergebnis ist von α nur noch schwach (oder gar nicht mehr) abhängig. Verändert man nämlich α in (2), so werden Übergänge, die vorher verboten waren, erlaubt und umgekehrt, ohne daß die Zahl der Möglichkeiten sich wesentlich ändert. Daher wird (3) von α praktisch unabhängig. Dennoch ist es möglich, daß gewisse α existieren, die merklich geringere oder keine Chance für einen Übergang nach β_0 haben: Ist z. B. L_B der größte Drehimpuls von B in β_0 , $l = R p(\varepsilon)/\hbar$

¹ V. Weißkopf, Phys. Rev. 52, 295 [1937].

(R = Kernradius von A) der größte Bahndrehimpuls, den a in β_0 haben kann, so kann ein Zustand α mit $L = L_B + l$ gerade noch nach β_0 emittieren, jedoch nicht mehr, wenn L größer ist (dann steht ein anderes Gebiet β_0' mit größerem ε natürlich offen).

Wir nehmen jetzt an, daß sich die Kerne A und B bezüglich Anregungsenergie und Nukleonenzahl nur wenig unterscheiden:

$$\frac{A-B}{A} \ll 1 \text{ und } \frac{E_A - E_B}{E_A} \ll 1.$$

Das bedeutet in diesem Falle, daß in α_0 nur ganz wenige Zustände existieren, deren Drehimpuls größer als L_B ist, und daß die Zahl dieser Zustände klein ist gegen die Gesamtzahl von Zuständen in α_0 . Man kann also sagen, daß (3) als Funktion von α praktisch konstant ist bis auf ein gegen α kleines Gebiet α_0' , in welchem $w(\alpha\beta_0)$ merklich abnimmt.

Sofern nun $f_1(\alpha)$ nicht „extrem“ ist, d. h. in α_0' wesentlich andere Werte annimmt als in α_0 sonst, kommt es auf den Verlauf von $f_1(\alpha)$ in (4) offenbar gar nicht mehr an. Ein „extremes“ Verhalten von $f_1(\alpha)$ kann man aber weitgehend ausschließen, da $f_1(\alpha)$ ja durch die Art der Anregung der Kerne A gegeben ist (insbesondere durch das Energie- und Massenspektrum der anregenden Teilchen, z. B. Höhenstrahlen), α_0' hingegen vom nachfolgenden Verdampfungsprozeß abhängt. Bei den Drehimpulsen kann es immerhin vorkommen, daß gerade die höchsten (mit der kleineren Übergangschance) auch weniger angeregt werden. Das macht aber wenig aus, denn dann ist $f_1(\alpha)$ in α_0' kleiner als sonst in α_0 . Den viel schlimmeren Fall, daß $f_1(\alpha)$ gerade in α_0' besonders groß ist, kann man gewiß ausschließen.

Ist $f_1(\alpha)$ nicht „extrem“, so kann man statt dessen also eine beliebige Konstante einsetzen.

In (5) gelten analoge Überlegungen. Beschränken wir uns bei Kernverdampfungen auf solche Prozesse, in denen der Wirkungsquerschnitt für den umgekehrten Vorgang (Einfang) nur noch über die Coulombsche Abstoßung energieabhängig ist², so ist (5) von $f_2(\beta)$ sogar völlig unabhängig und $\sigma[f_2, \varepsilon, E_A] = \sigma(\varepsilon, E_A)$ ist bis auf die Coulomb-Abstoßung der geometrische Kernquerschnitt: Der Zustand des beschossenen Kernels innerhalb eines nicht zu großen Gebietes und damit die Art der Verteilung von N_2 beschossenen Kernen über dieses Gebiet spielt keine Rolle. Also kann auch in (5) eine beliebige Konstante an Stelle von $f_2(\beta)$ treten. Da endlich $|H'_{\alpha\beta}|^2 = |H'_{\beta\alpha}|^2$ ist und die Konstanten f_1 und f_2 sich herausheben, sind die Zähler von (4) und (5) gleich und es wird

$$\begin{aligned} \frac{w(\alpha_0\beta_0)}{|j(\varepsilon)|\sigma(\varepsilon, E_A)} &= \frac{\int_{\beta_0} z_2(\beta) d\beta}{\int_{\alpha_0} z_1(\alpha) d\alpha} \\ &= \frac{\varrho_B(E_A - \varepsilon_a - \varepsilon) \varrho_a(\varepsilon, s) \Delta\varepsilon}{\varrho_A(E_A)}, \end{aligned} \quad (6)$$

wo $\varrho(E)dE$ die Zahl der Zustände im Energieintervall $(E, E + dE)$ und s den Spin von a bedeutet. Das ist

² $\varepsilon \gtrsim$ einige MeV.

die Weißkopfsche Formel. Diese Formel stimmt exakt, wenn $f_1(\alpha)$ tatsächlich eine konstante Verteilung ist, und es treten nur dann Abweichungen auf, wenn $f_1(\alpha)$ anfängt, „extrem“ zu werden. Das Maß dieses „extrem“-Werdens ist immer relativ zur α -Abhängigkeit von (2) zu verstehen. Eine Funktion $f_1(\alpha)$, die bei kleinen relativen Energie- und Nukleonenzahlunterschieden zwischen den Kernen A und B noch als „nicht-extrem“ gelten kann, verliert diese Eigenschaft, wenn sich A und B stärker unterscheiden. Kürzt man $w(\alpha\beta_0)$ mit $w(\alpha)$ ab, so kann man als quantitatives Maß etwa einführen

$$\frac{(1, w) \vee(f, f)}{(f, w) \vee(1, 1)} = m[w, f] = \begin{cases} \infty & \text{für } f \perp w \\ 1 & \text{für } f = \text{const.} \\ \leq 1 & \text{für } f = w \end{cases}$$

wo $(f, w) = \int_{\alpha_0} f_1(\alpha) w(\alpha) d\alpha$. Die Abweichung von 1 gibt

unmittelbar an, wie stark die Gültigkeit von (6) eingeschränkt ist. In der Tat wirkt sich Orthogonalität von f und w schlimmer aus als Gleichheit.

Bei den durch Höhenstrahlung angeregten Verdampfungsprozessen liegen die bei einer Emission mitgenommenen Energien ($\varepsilon_a + \varepsilon$) unter 30 bis 60 MeV, die Anfangsenergien (Bindungsenergie + Anregungsenergie) bei 300–1500 MeV. Die Nukleonenzahl a ist stets klein gegen A für echte Verdampfung (im Gegensatz zur Spaltung, s. u.), so daß sich A und B in Energie und Nukleonenzahl nur um einige Prozent unterscheiden. Es ist nicht zu erwarten, daß die Verteilung der verdampfenden Kerne „extrem“ genug ist, um Abweichungen von (6) zu verursachen, da die Höhenstrahlung im Anregungsprozeß hohe Drehimpulse übertragen kann und auch sonst kein Teilgebiet α_0' eines genügend kleinen Gebietes α_0 (wie oben festgelegt) besonders ausgezeichnet ist. Daher ist (6) auf diese Prozesse sicher anwendbar. Nur für kleine Anregungsenergien (wie z. B. bei Beschuß schwerer oder mittlerer Kerne mit Neutronen einer kinetischen Energie unterhalb einiger MeV) ist $(E_A - E_B)/E_A$ nicht mehr klein gegen 1 und (4) und (5) werden von $f_1(\alpha)$ abhängig. Bei der Kernverdampfung durch Höhenstrahlung sind diese energiearmen Prozesse zwar vorhanden, können aber auch noch mit (6) behandelt werden, sofern sie am Ende einer Reihe von Einzelverdampfungen („Abkühlung“) stehen, weil erstens Gl. (6) noch angenähert gilt und zweitens vom fast schon kalten Kern bis zur völligen Abkühlung nur noch wenige Teilchen a emittiert werden. Demgegenüber steht die große Zahl von Emissionen nach hoher Anregung, für die (6) richtig ist. Verdampfungsprozesse mit kleiner Anfangsenergie, bei denen nur ganz wenige Teilchen emittiert werden und für die (6) nur schlecht zutrifft, läßt man überhaupt besser fort, da nicht eindeutig feststeht, ob der verdampfte Kern mittelschwer (Ag, Br) oder leicht war. Auf leichte Kerne ist die Verdampfungstheorie nicht anwendbar und das nicht allein wegen der Ungültigkeit von (6). Freilich ist die Brauchbarkeit von Gl. (6) nach hohen Anregungsenergien hin auch begrenzt: Nähert sich die Anregungsenergie der Größenordnung der gesamten Bindungsenergie des Kernels A , so treten immer häufiger Spal-

tungsprozesse auf, die dann die Verdampfung der Spaltprodukte zur Folge haben. Zwar träfe in diesen Energiebereichen die Formel (6) gerade am besten zu, wenn eine reguläre Verdampfung stattfände, jedoch wird in zunehmendem Maße die Verdampfung durch Spaltung abgelöst. Dieses Problem wurde von Süßmann³ kürzlich behandelt. Faßt man Spaltung und

Verdampfung als gesondert zu betrachtende Probleme auf, so kann Gl. (6) auf ihrem Kompetenzgebiet bei Kernverdampfung durch Höhenstrahlung unbedenklich angewandt werden.

Herrn Dr. G. Süßmann danke ich für manche Diskussion.

Anm. b. d. Korr.: Erst jetzt wird mir die Arbeit von L. Wolfenstein, Phys. Rev. **82**, 690 [1951] bekannt, in der speziellere Fragen behandelt werden.

³ G. Süßmann, Z. Naturforschg. **8a**, 404 [1953].

NOTIZEN

Ortskorrelation der Elektronen in einigen tetragonal verzerrten A1-Strukturen*

Von Konrad Schubert

Max-Planck-Institut für Metallforschung, Stuttgart
(Z. Naturforschg. **9a**, 261—262 [1954]; eingeg. am 22. Dezember 1953)

Für eine Familie von tetragonal verzerrten A1-Strukturen, die dem NiZn (Raumtemperatur-Modifikation) verwandt sind, wurde ein Strukturargument aus dem Bandmodell der Elektronentheorie gegeben, wonach die Fermi-Kugel der Valenzelektronen die Brillouin-Ebenen {111} der unverzerrten vieratomig aufgestellten A1-Struktur tangiert¹. Aus diesem Strukturargument ergab sich eine Voraussage für die Änderung des Achsverhältnisses in Abhängigkeit von der Konzentration des an Valenzelektronen reicheren Legierungspartners. Die Nachprüfung zeigte, daß es Phasen gibt, die die Voraussage erfüllen und solche, die ihr widersprechen. Es ist daraus zu entnehmen, daß noch ein anderes Strukturargument von Bedeutung für diese Strukturfamilie sein muß. Als solches wurden Wirkungen angesehen, die mit den d-Schalen der Atome zusammenhängen. Nun hatte sich bei der Diskussion der CuAl₂-Strukturfamilie gezeigt, daß die d-Elektronen des einen Partners mit den Valenzelektronen beider Partner einer Verbindung in Ortskorrelation treten können (Durchdringungskorrelation), was sich alsdann in der Kristallstruktur bemerkbar macht. — Ein Atom ist besonders geneigt zu einer Durchdringungskorrelation, wenn die Dichte der d-Elektronen an der Atomoberfläche groß ist und nicht von Valenzelektronen abgeschirmt wird. Es liegt daher nahe anzunehmen, daß beispielsweise im NiZn die zehn d-Elektronen des Nickelatoms mit den zwei Valenzelektronen des Zn-Atoms in Ortskorrelation stehen. Zu einem plausiblen Vorschlag gelangt man wie folgt: Man unterteile eine kubische Zelle durch Halbieren der Kanten in 8 Würfel und lege in die Mitte der Hälfte dieser Würfel ein Atom, so daß man eine A1-Struktur erhält. Man lege nun auf die Kantenmitten jedes zentrierten Würfels einen Elektronenplatz und gelangt so

zu einer Elektronenanordnung mit 24 Plätzen je A1-Zelle. Diese Ortskorrelation würde zu dem Aufbau der Verbindungen NiZn, AuCu, CuTi₃, ZrH₂ usw. passen. Es gibt (in der ausführlichen Mitteilung zu erörternde) Gründe dafür, daß diese an sich kubische Ortskorrelation bestrebt ist, das Atomgitter tetragonal so zu verzerrn, daß die *c*-Achse kürzer als die *a*-Achse wird. Bei den Verbindungen der Art NiMn, PdMn usw. wird man annehmen dürfen, daß fünf d-Elektronen des Mn nicht in die Ortskorrelation eintreten, d. h. von ihr statistisch unabhängig bleiben. Nun läßt sich aus dem Erfahrungsmaterial entnehmen, daß die Konzentration einer Phase der Art NiZn sich bis zu 25 At% gegen die Seite des Komplexbildners (Ni, Pd, usw.) verschieben kann. Ergänzt man die oben genannte Ortskorrelation durch Zentrierung der Kubooktaeder zu einer kubisch flächenzentrierten Ortskorrelation, so können maximal 32 Elektronen je Zelle, also 8 je Atom untergebracht werden. Zu dieser Zahl passen die Verbindungen NaBi, MgIn, TiAg, Mo₃N usw. und die Phasen der Art NiZn, welche mehr als 50 At% des Komplexbildners enthalten, wie z. B. Ni₃Ga.

Wird die Zahl 32 überschritten wie bei Au₃Zn oder Ni₃V und PbO oder InBi, so wird jedenfalls die zum NiZn gehörige Ortskorrelation unmöglich. Man kann ihren offenbar energetisch vorteilhaften Einfluß erhalten, wenn man senkrecht zur *c*-Achse des Atomgitters eine weitere Elektronenebene einschiebt. Man käme dann zu maximal 40 Elektronenplätzen, d. h. bei der Annahme, daß jeder Atomrumpf im Mittel einen Platz zudeckt, zu 36 zu besetzenden Stellen. Zu dieser Zahl passen Au₃Zn, Ni₃V usw. und gemäß obiger Annahme auch die Abschreckmodifikation von Au₃Mn. Da bei einer zusätzlich eingeschobenen Elektronenebene die Lagenfolge der Elektronenebenen nicht mehr periodisch mit der Zelle ist, paßt obige Annahme auch zu der Beobachtung, daß Au₃Zn bzw. Ni₃V eine gegenüber der Unterstruktur verdoppelte *c*-Achse haben. Schiebt man zwei Elektronenschichten je *c*-Achse ein und kontrahiert das Elektronengitter längs der *c*-Achse, so gelangt man zu plausiblen Ortskorrelationen für PbO (B 10) und InBi, die insbesondere die Parameter des schweren Atoms zu verstehen gestatten.

* Eine ausführliche Mitteilung erscheint in der Z. Metallkunde.

¹ K. Schubert, Z. Metallkunde **43**, 1 [1952].