

Zur Theorie des Polarons

Von G. Höhler

Institut für theoretische Physik der Universität
Göttingen

(Z. Naturforschg. 9a, 801–802 [1954]; eingeg. am 28. Juli 1954)

In den letzten Jahren sind mehrere Verfahren zur Berechnung des Grundzustandes des Polarons angegeben worden^{1–5}. Der Hamilton-Operator des Problems lautet

$$H = \frac{p^2}{2m} + \sum_{\mathbf{r}} \frac{\gamma}{i|\mathbf{r}|} [b(\mathbf{r}) e^{i\mathbf{r}\cdot\mathbf{r}} - b^+(\mathbf{r}) e^{-i\mathbf{r}\cdot\mathbf{r}}] + \sum_{\mathbf{r}} \hbar \omega b^+(\mathbf{r}) b(\mathbf{r}). \quad (1)$$

Darin sind \mathbf{r} , p Koordinate und Impuls des Elektrons, $(b + b^+)$ und $(b - b^+)/i$ verallgemeinerte Koordinaten und Impulse des Gitters bei Zerlegung der longitudinalen optischen Gitterschwingungen nach laufenden Wellen. $\omega =$ longitudinale „Reststrahlen“-Frequenz, $\gamma^2 = 2\pi e^2 \hbar \omega (1/n^2 - 1/\epsilon)/V$, $V =$ Normierungsvolumen, ϵ , n^2 Dielektrizitätskonstante im statischen Feld bzw. für Frequenzen im nahen Ultrarot.

1. Wir untersuchen zunächst das Verhalten der Pekarschen Produktlösung¹ bei starker Kopplung. Da die Kontinuumsnäherung zu Divergenzen führt, müssen wir die atomistische Struktur des Gitters wenigstens dadurch berücksichtigen, daß wir (wie Lee und Pines⁵) die Summen im \mathbf{r} -Raum nur bis zu einer Kugel vom Radius k_0 erstrecken. Um die Rechnung einfach zu gestalten, verwenden wir einen Produktansatz mit der Elektronenfunktion $\exp(-r^2/r_0^2)$; Pekar findet für seinen besten Produktansatz eine nur um 3% tiefere Energie. Der Grundzustand lautet dann bis auf den Normierungsfaktor

$$\Psi_P = \exp(-r^2/r_0^2) \cdot \exp\left(\sum_{\mathbf{r}} \gamma e^{-r_0^2 k^2/8} b^+(\mathbf{r})/\hbar \omega i |\mathbf{r}|\right) \cdot \Psi_0 \quad (2)$$

mit $b(\mathbf{r}) \Psi_0 = 0$. Der mit Ψ_P gebildete Erwartungswert der Energie ist mit den Abkürzungen

$$\beta = r_0 k_0/2, \quad u^2 = 2m\omega/\hbar; \quad g^2 = \gamma^2 V u/4\pi (\hbar\omega)^2$$

gegeben durch ($\Phi =$ Fehlerintegral)

$$E(\beta)/\hbar\omega = -g^2 k_0/\sqrt{\pi} u \cdot \Phi(\beta)/\beta + 3k_0^2/4 u^2 \beta^2. \quad (3)$$

Der beste Wert des Variationsparameters r_0 bzw. β ist aus $dE/d\beta = 0$ zu ermitteln:

$$(3k_0/\sqrt{\pi}/2 u g^2) = \beta \Phi(\beta) - \beta^2 \Phi'(\beta).$$

Bestimmt man hieraus β und setzt es in (3) ein, so folgt die gesuchte Funktion $E(g^2)$. Für kleine g^2 gilt $E(g^2)/\hbar\omega = -g^4/3\pi$, (bei $g^2 = 14$ liegt der genaue Wert um 5% höher) und für große g^2 lautet der erste Term einer Entwicklung nach fallenden Potenzen von

$g: -2g^2 k_0/\pi u$. Von $g^2 = 11$ ab liegt unser Ergebnis tiefer als das von Lee und Pines.

2. Es seien Ψ und Ψ' die exakten normierten Grundzustände von H und $H' = H - p^2/2m$. Dann gilt

$$\langle \Psi_P, H \Psi_P \rangle > \langle \Psi, H \Psi \rangle > \langle \Psi, H' \Psi \rangle > \langle \Psi', H' \Psi' \rangle = -2g^2 k_0/\pi u.$$

Im gleichen Sinn wie die Lösung von Lee und Pines wird also der Produktansatz im Grenzfall starker Kopplung „exakt“, weil sich die beiden Schranken einander asymptotisch nähern. — Das Weglassen des in p quadratischen Termes entspricht der Bloch-Nordsieck-Methode⁶, die somit für kleine und mittlere Kopplung viel zu tiefe Energiewerte ergibt⁷. — Die Zustände Ψ' bleiben auch bei starker Kopplung wesentlich verschieden von Ψ_P , denn diese sind um $\mathbf{r} = 0$ herum lokalisiert, während Ψ' kein \mathbf{r} auszeichnet (Ψ' ist Eigenzustand zu \mathcal{G} , s. u.). Manchmal versteht man unter der Bloch-Nordsieck-Methode auch die Näherung, bei der in den Feldgleichungen die Quellen als vorgegeben behandelt werden. Dann ist in H ebenfalls $p^2/2m$ wegzulassen und überdies \mathbf{r} als gegebene c -Zahl zu behandeln. Energie und Grundzustand bleiben ungeändert, nur ist in Ψ' jetzt \mathbf{r} eine feste Zahl. Setzt man diese gleich Null, so beschreibt Ψ' einen Zustand des Gitters, der sich bei starker Kopplung nur wenig von dem in Ψ_P enthaltenen Gitterzustand unterscheidet.

3. Pekars adiabatische Methode¹ bringt bei mittlerer Kopplung eine merkliche Verbesserung des Produktansatzes, sie ist von $g^2 \approx 7$ an besser als die Lösung von Gurari und Lee, Low, Pines. Die Kopplungskonstante für NaCl ist nach Pekar größer als 7; er bestimmt aus der F-Zentrenabsorption die Elektronenmasse im Gitter zu $m = 2,78 m_e$ und findet damit $g^2 = 8,7$. Die Herleitung dieser Ergebnisse bedarf jedoch noch einer kritischen Untersuchung, auf die wir an dieser Stelle nicht näher eingehen wollen. Das Verhalten der adiabatischen Näherung bei starker Kopplung wurde noch nicht behandelt.

4. Zur Verbesserung des Produktansatzes führen wir einen zweiten Variationsparameter η so ein, daß der Gitterzustand noch von den Elektronenkoordinaten abhängt: die Gitterverzerrung hat den Mittelpunkt $\eta \mathbf{r}$. $\eta = 0$ führt auf (2) zurück.

$$\Psi = \exp(-r^2/r_0^2) \cdot \exp\left(\sum_{\mathbf{r}} \gamma e^{-r_0^2 k^2/8} e^{-i\mathbf{r}\cdot\eta} b^+(\mathbf{r})/\hbar \omega i |\mathbf{r}|\right) \cdot \Psi_0.$$

Man findet bei mittlerer Kopplung etwa $\eta = 0,1$ und eine zusätzliche Energieabsenkung um $0,8 \hbar\omega$.

5. Pekar definiert für seine Produktlösung einen Translationsoperator, der den Mittelpunkt des Pola-

¹ S. Pekar, Fortschr. Phys. 1, 367 [1954]. Dort weitere Zitate.

² H. Fröhlich, H. Pelzer u. S. Zienau, Phil. Mag. 41, 221 [1950].

³ M. Gurari, Phil. Mag. 44, 329 [1953].

⁴ T. Lee, F. Low u. D. Pines, Phys. Rev. 90, 297 [1953].

⁵ T. Lee u. D. Pines, Phys. Rev. 91, 193 [1953].

⁶ Vgl. J. Bardeen, Rev. Mod. Phys. 23, 268 [1951].

⁷ Bei der Transformation mit S in 4 geht $p^2/2m$ über in $(\mathcal{G} - \sum \hbar \mathbf{k} b^+ b)/2m$. Wir ordnen um:

$$b^+(\mathbf{r}') b(\mathbf{r}') b^+(\mathbf{r}) b(\mathbf{r}) = b^+(\mathbf{r}') b^+(\mathbf{r}) b(\mathbf{r}') b(\mathbf{r}) + b^+(\mathbf{r}') b(\mathbf{r}') \delta_{\mathbf{r}\mathbf{r}'}$$

Nach Weglassen des ersten Terms, also nur eines Teils von $p^2/2m$, ist auch noch eine exakte Lösung möglich. Für $\mathcal{G}' = 0$ erhalten wir denselben Wert für die Energie des Grundzustandes wie die Störungstheorie sowie³ und ⁴.



rons um einen beliebigen Vektor a verschiebt. Den gleichen Erfolg hat die Anwendung des unitären Operators $U(a) = \exp(-i a \mathcal{G}/\hbar)$ auf Ψ_P . \mathcal{G} ist definiert durch

$$\mathcal{G} = p + \sum_{\mathbf{f}} \hbar \mathbf{f} b^{\dagger}(\mathbf{f}) b(\mathbf{f})$$

und erzeugt die infinitesimale Translation, es ist jedoch nicht der Operator des Gesamtimpulses. U und \mathcal{G} sind mit H vertauschbar. Es existiert daher ein vollständiges, simultanes System von Eigenzuständen, insbesondere gehört der Grundzustand zum Eigenwert $\mathcal{G}' = 0$. Wir gewinnen nun aus dem Produktansatz (2) Eigenzustände $\Psi^{\mathcal{G}'}$ von \mathcal{G} zum Eigenwert \mathcal{G}' , indem wir geeignete Linearkombinationen von Lösungen Ψ_P mit verschiedenen Mittelpunkten bilden. Man kann auch leicht einen Projektionsoperator finden, der, auf Ψ_P angewandt, die gesuchten Eigenzustände von \mathcal{G} herausucht: $\Psi^{\mathcal{G}'} = \int e^{i(\mathcal{G}' - \mathcal{G}) \mathbf{R}/\hbar} d\mathbf{R} \Psi_P$. Es ist $(\Psi^0, H \Psi^0) < (\Psi_P, H \Psi_P)$. Die Berechnung des Erwartungswertes von H mit Ψ^0 (d. h. $\mathcal{G}' = 0$) ergibt die im Bereich $g^2 = 5 \dots 10$ gültige Formel

$$E(g^2) = -0,11 g^4 - 1,98 + 21,8/g^4.$$

Bei $g^2 \approx 0$ ist $E(g^2) = -0,76 g^2$. — Wir haben damit Näherungen für den Grundzustand mit folgenden Eigenschaften gefunden: a) Sie sind ebenso wie die exakten Lösungen Eigenzustand von \mathcal{G} . b) Sie liegen für $g^2 > 8$ tiefer als alle bisher bekannten Lösungen und haben für $g^2 \rightarrow \infty$ das Verhalten der exakten Lösung. c) Unsere Lösung führt über den von Lee und Pines verwendeten Produktansatz, d. h. über die Hartreesche Näherung im \mathbf{f} -Raum der Schallquanten hinaus.

Wenn man analog zu 4. einen weiteren Variationsparameter einführt und die Gauss-Funktion durch eine andere ersetzt, die als Spezialfall das von Lee, Low und Pines gefundene $f(k)$ (bei $\mathcal{G}' = 0$) enthält, bekommt man einen Variationsansatz, der auch für $g^2 < 8$ nicht schlechter als ³ und ⁴ ist. Rechnungen hierüber sind im Gange.

Eine massenspektrometrische Methode zur Bestimmung der Diffusionskonstanten von Gasen in Festkörpern

Von W. Gentner und E. A. Trendelenburg

Physikalisches Institut der Universität Freiburg i. Br.

(Z. Naturforschg. 9a, 802—804 [1954]; eingeg. am 17. Juli 1954)

Bei der Altersbestimmung an Mineralien nach der Helium- oder Argonmethode ist es notwendig, die im Laufe der geologischen Zeiträume durch Diffusion entstandenen Verluste der radioenen Edelgase Helium und Argon zu berücksichtigen. Wie schon früher mitgeteilt wurde^{1,2,3}, gelang es durch systematische Un-

¹ W. Gentner, R. Präg u. F. Smits, Z. Naturforschg. 8a, 216 [1953].

² W. Gentner, R. Präg u. F. Smits, Geoch. Cosmoch. Acta 4, 11 [1953].

6. Die Anwendung des geschilderten Verfahrens auf den Fall $\mathcal{G}' \neq 0$ liefert $E(\mathcal{G}')$ und somit die Masse des Polarons². Die numerische Auswertung ist noch nicht abgeschlossen, man wird jedoch erwarten, daß das Ergebnis nicht dem großen Wert von Pekar, sondern dem kleineren von Lee und Pines nahekommmt. Pekar hat den Energiezuwachs des Systems bei der Bewegung eines lokalisierten Polarons durch das Gitter zuerst klassisch berechnet und fand dann mit der adiabatischen Methode denselben Wert. Um diese durchführen zu können, mußte er sich bei der Berechnung der Elektronenenergie auf Gitterkonfigurationen beschränken, die sich wenig von denjenigen Konfigurationen unterscheiden, die man klassisch erhält, wenn die Elektronenladung irgendwo im Gitter gemäß $|\psi|^2$ lokalisiert ist. Pekar berechnet also auch mit der adiabatischen Methode, um welchen Betrag sich die Energie des Systems erhöht, wenn ein Strom vorhanden ist, der in der Bewegung einer lokalisierten Ladung besteht. Erst dann berücksichtigt er die Translations-symmetrie des Hamilton-Operators. Er hat übersehen, daß man zu energetisch tieferen Zuständen mit Strom kommt, wenn man die Symmetrie schon vorher durch Bildung der „richtigen“ Linearkombination $\Psi^{\mathcal{G}'}$ berücksichtigt. Man vergleiche die Situation bei der Blochschen Näherung tiefer Energien für ein Elektron im periodischen Potential. Natürlich kann man durch Überlagerung von Lösungen $\Psi^{\mathcal{G}'}$ mit verschiedenen \mathcal{G}' lokalisierte Lösungen aufbauen, sie fließen aber schnell wieder auseinander. Aus diesen Überlegungen folgt, daß für die Leitfähigkeitstheorie die Masse des Polarons nach Fröhlich, Pelzer und Zienau² berechnet werden muß und Pekars Methode¹ auch bei stärkerer Kopplung nicht zum Ziel führt.

Eine ausführliche Veröffentlichung wird an anderer Stelle erfolgen. Ich danke Herrn Prof. R. Becker für Diskussionen und Herrn A. Müllensiefen für Unterstützung bei den Rechnungen.

tersuchungen der Zusammenhänge zwischen mittlerer Kristallgröße und gemessenem Alter an Sylvinen Abschätzungen über die Diffusionskonstanten von Helium und Argon im Temperaturbereich zwischen 40 und 80°C vorzunehmen. Es sollte nun versucht werden, unter Ausnutzung des für Diffusionsvorgänge gültigen Temperatursatzes

$$D = D_0 \exp(-Q/RT)$$

(D Diffusionskonstante, Q Ablöse- oder Aktivierungsenergie, R Gaskonstante, T absolute Temperatur) im Laborversuch bei höheren Temperaturen derartige Diffusionskonstanten zu messen und durch Extrapolation mit den aus der Altersbestimmung gewonnenen Werten zu vergleichen.

³ W. Gentner, K. Göbel u. R. Präg, Geoch. Cosmoch. Acta 5, 124 [1954].

Da in den betreffenden Salzen außer den interessierenden Edelgasen große Mengen an anderen Gasen enthalten sind, erschien es zweckmäßig, als Nachweisinstrument ein Massenspektrometer zu verwenden. Im folgenden soll nun berichtet werden, in welcher Weise derartige Bestimmungen der Diffusionskonstanten von Helium in NaCl durchgeführt wurden.

Bei der Messung wurde die zu untersuchende Salzprobe (etwa 50 g) zunächst in einem Helium-Luftgemisch mit 10% Helium bei einer Temperatur von 650°C und einem Druck von 500 Torr getempert. Die Temperzeit betrug jeweils zwölf Stunden. Anschließend wurde die Probe abgekühlt, kalt abgepumpt und erneut bis zur gewünschten Meßtemperatur erhitzt. Das gelöste und nun durch Diffusion austretende Gas wurde durch die Ionenquelle eines registrierenden Massenspektrometers abgepumpt und in seinem zeitlichen Verlauf quantitativ analysiert.

Nach Abklingen eines Anlaufvorganges fällt die pro Zeiteinheit die Probe verlassende Gasmenge streng exponentiell mit der Zeit ab. Aus der Halbwertszeit $t_{1/2}$ dieser zeitlichen Gasabgabe und dem mittleren Kristalldurchmesser d der Probe läßt sich die Diffusionskonstante unmittelbar zu

$$D = d^2/3\pi^2 t_{1/2} \ln 2$$

in cm^2/sec bestimmen. Diese Beziehung ist eine Lösung der zweiten Fick'schen Gleichung

$$\partial c/\partial t = \text{div} (D \text{ grad } c)$$

mit folgenden Randbedingungen:

1. Reine Volumdiffusion;
2. Außendruck an den Grenzen des Diffusionsmediums konstant;
3. Diffusionsmedium isotrop;
4. Temperatur während der Messung konstant;
5. Betrachteter Körper würfelförmig mit Kantenlänge d ;
6. Gasmenge vor Anlaufen des Diffusionsvorganges in Kristall homogen verteilt;
7. Diffusionskonstante D unabhängig von Konzentration c .

Es hat sich im Laufe der Untersuchungen gezeigt, daß die Randbedingung 7 tatsächlich nur bei kleinen Gaskonzentrationen ($c < 10^{-6} \text{ cm}^3 \text{ He/g Salz}$) mit hinreichender Genauigkeit erfüllt ist.

Ein Blockschaltbild der Apparatur zeigt Abb. 1. Das verwendete Massenspektrometer ist mit einem 180° Permanentmagnetsystem ($H = 1500$ Gauß, Radius = 60 mm, Luftspalt = 7 mm) versehen. Als Ionenquelle hat sich eine Anordnung entsprechend Abb. 2 bewährt. Die Elektronen werden von zwei im Ionenraum sich gegenüberstehenden Heizbändern Hb emittiert und durch eine Blende F auf den Gasaustritt fokussiert.

Die hier durch Elektronenstoß gebildeten Ionen werden durch die Ziehblende Z zwischen den Heizbändern hindurch abgesaugt und treten nach anschließender Beschleunigung durch die Blende B in das Magnetsystem ein. Zum Ionennachweis wird ein Schwingkondensatorverstärker mit einer Nachweisempfindlichkeit von

etwa $2 \cdot 10^{-15}$ A (Ableitwiderstand = 10^{11} Ohm) verwendet, der den direkten Anschluß eines Tintenschreibers gestattet⁴. Mit dem Tintenschreiber ist eine Kipp-einrichtung gekoppelt, die alle dreißig Sekunden unter Variation der Beschleunigungsspannung die Heliumlinie automatisch aufzeichnet. Die Nachweisgrenze der Meßanordnung liegt bei etwa $1 \cdot 10^{-11} \text{ cm}^3 \text{ He/sec}$ (bezogen auf Atmosphärendruck). Allerdings ist man zur

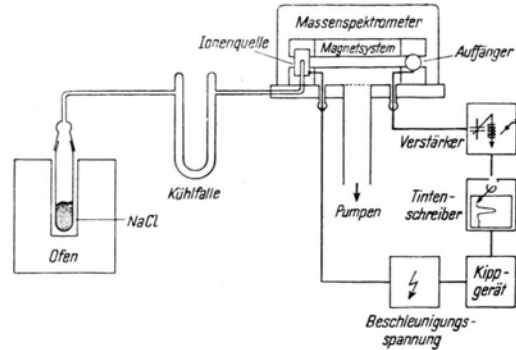


Abb. 1.

Erzielung einer derartigen Nachweisempfindlichkeit gezwungen, in der Ionenquelle mit so hohen Elektronenströmen zu arbeiten, daß das Verhältnis zwischen Ionenstrom und durchströmender Gasströme infolge Raumladungseinflüssen nicht mehr druckunabhängig ist. Um eine zeitliche und aussteuerungsunabhängige Konstanz des Massenspektrometers von besser als 1% zu erhalten, muß man sich damit begnügen, die Ionenquelle nur so weit auszusteuern, daß die Nachweisempfindlichkeit bei etwa $2 \cdot 10^{-10} \text{ cm}^3 \text{ He/sec}$ liegt. Damit lassen sich an Proben mit einem Heliumgehalt von $1 \cdot 10^{-5} \text{ cm}^3$, wie sie üblicherweise untersucht wurden, Halbwertszeiten der Heliumabgabe bis etwa maximal zwanzig Minuten bestimmen, wenn man verlangt, daß

die mittlere durchströmende Gasmenge um den Faktor 20 über der Nachweisgrenze liegen soll.

Es wurden zunächst Untersuchungen an reinem NaCl ausgeführt. Die Salzproben mit einem Kristalldurchmesser von $d = 0,6$ und $d = 1,3$ mm wurden durch Zerschlagen und Sieben eines großen natürlichen Einkristalls von besonderer Reinheit gewonnen. In den durch die Nachweisempfindlichkeit der Apparatur gegebenen Grenzen ließen sich im Temperaturbereich zwischen 500 und 650°C Diffusionskonstanten bestimmen.

Die gefundenen Werte sind in Abb. 3 in Abhängigkeit von $1/T_{\text{abs}}$ eingetragen. Da sich für verschiedene Kristallgrößen, bezogen auf die gleiche Temperatur, gleiche Diffusionskonstanten ergeben, muß es sich um Volumdiffusion handeln. Eine Extrapolation der ge-

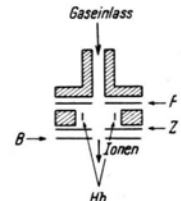


Abb. 2.

⁴ E. A. Trendelenburg, Diplomarbeit, Freiburg i. Br. 1952.

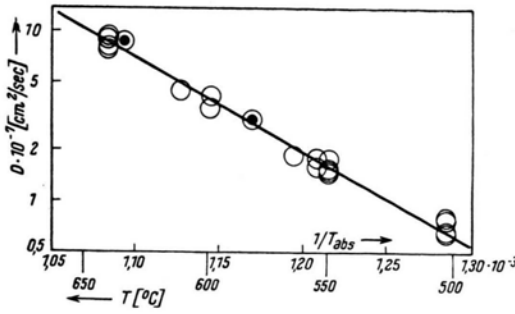


Abb. 3.

fundenen Werte in den Temperaturbereich von 40 bis 80°C, für den seinerzeit an Sylvinen mit einem mittleren Gehalt von 50% NaCl und 50% KCl Abschätzungen der Diffusionskonstanten vorgenommen werden konnten, ergibt eine gute Übereinstimmung, wie aus folgender Aufstellung ersichtlich ist (Werte in cm²/sec):

	Durch Extrapolation gewonnene Werte	Aus Beobachtung bei der Altersbestimmung errechnete Werte ^{1, 2}
D_{He} (80° C)	$4,0 \cdot 10^{-17}$	$1,2 \cdot 10^{-17}$
D_{He} (40° C)	$3,2 \cdot 10^{-19}$	$1,2 \cdot 10^{-19}$

Zur Meson-Meson-Wechselwirkung

Von Walter Thirring

Physikalisches Institut der Universität Bern

(Z. Naturforschg. 9 a, 804—805 [1954]; eingeg. am 24. Juli 1954)

Es wurde vor einiger Zeit vorgeschlagen^{1, 2}, die Sättigung der Kernkräfte durch abstoßende Kräfte zwischen π -Mesonen zu erklären. Diese sollten durch ein Glied $\frac{1}{4} A \Phi^4$ in der Lagrange-Funktion beschrieben werden, wobei genauere Rechnungen^{3, 4} für die dimensionslose Größe A etwa 400 ergaben. Es soll in dieser Note darauf hingewiesen werden, daß so eine starke Abstoßung zwischen Mesonen im Rahmen obgenannter Theorie zu Widersprüchen mit den gemessenen Streuquerschnitten von Mesonen an Kernen führt. Durch die Interferenz von Kern- und Coulomb-Streuung geht aus jenen Messungen hervor⁵, daß der Kern auf Mesonen anziehend wirkt, während man nach der nichtlinearen Theorie eine Abstoßung erwarten sollte. Es ist jedoch zu bedenken, daß das Meson nicht nur am Mesonfeld des Kerns, sondern auch an den Nucleonen gestreut werden wird. Man kann die Viel-

Es muß dabei allerdings bemerkt werden, daß man bei einer derartigen Extrapolation über zehn Größenordnungen in Anbetracht der derzeitigen Meßgenauigkeit der Apparate dem extrapolierten Wert eine mögliche Fehlerbreite von ± 2 Zehnerpotenzen zuerkennen muß. Ferner ist bei der Extrapolation nicht berücksichtigt, daß man den aus NaCl und KCl gemischten Sylvinen vermutlich etwas andere Diffusionskonstanten als dem reinen NaCl zuschreiben muß. Untersuchungen der Diffusion von radiogenem Helium in einem derartigen Sylvin haben jedoch ergeben, daß dieser Unterschied jedenfalls innerhalb der derzeitigen Fehlergrenzen der Methode liegt.

Eine ausführliche Diskussion der Ergebnisse und eine Beschreibung anderer Diffusionsvorgänge, die in natürlichen Sylvinen bei der Altersbestimmung berücksichtigt werden müssen, erfolgt demnächst in den Geochimica et Cosmochimica Acta.

Herr H. Fechtig hat einen Teil der Messungen im Rahmen seiner Diplomarbeit selbständig ausgeführt, wofür wir ihm an dieser Stelle danken. Herrn Dr. W. Hänlein von den Siemens-Schuckert-Werken, Erlangen, verdanken wir die Anfertigung der Metallteile der Vakuumapparatur. Die Deutsche Forschungsgemeinschaft hat die Untersuchungen durch Sachbeihilfen unterstützt, wofür wir ebenfalls unseren Dank aussprechen.

fachstreuung von Mesonen in nuklearer Materie durch ein effektives Potential beschreiben, das mit der Streuamplitude vom einzelnen Nucleon in analoger Beziehung steht^{6, 7} wie der Brechungsindex eines dispergierenden Mediums⁸:

$$V(x) = -2 (\pi/E) \rho(x) \sum_i f_i(\theta). \quad (1)$$

Hier ist $\rho(x)$ die Nucleondichte, E die totale Energie des Mesons und $f_i(\theta)$ der kohärente Teil der Streuamplitude des i -ten Nucleons. Drücken wir letztere durch Amplituden $f_{l, 2, J}^i$ für Bahndrehimpuls l , Gesamtdrehimpuls J und Isotopenspin T aus, dann ergibt sich für die Proton- und Neutron-Amplitude

$$f_p = f_{31}^0 + 2 f_{33}^1 + f_{31}^1 \quad (2)$$

$$f_n = 1/3 (f_{31}^0 + 2 f_{11}^0 + 2 f_{33}^1 + f_{31}^1 + 4 f_{13}^1 + 2 f_{11}^1).$$

Wir haben nur s- und p-Streuung berücksichtigt, da wir mit Streumessungen von 60 MeV Mesonen an Kohlenstoff vergleichen wollen. Verwendet man die bei diesen Energien gemessenen Werte für die Phasenverschiebungen⁹, dann erhalten wir für den Realteil des Potentials nach (1)

$$V_{\text{theor.}} = -17,5 \text{ MeV}. \quad (3)$$

¹ L. Schiff, Phys. Rev. **84**, 1 [1951].

² W. Thirring, Z. Naturforschg. **7 a**, 63 [1952].

³ B. Malenka, Phys. Rev. **86**, 68 [1952].

⁴ P. Mittelstaedt, Z. Phys. **137**, 545 [1954].

⁵ H. Byfield, I. Kessler u. L. Ledermann, Phys. Rev. **86**, 17 [1952].

⁶ H. Bethe u. R. Wilson, Phys. Rev. **83**, 690 [1951].

⁷ K. Watson, Phys. Rev. **89**, 575 [1953].

⁸ Wir verwenden $\hbar = c = \text{Mesonmasse} = 1$.

⁹ D. Bodansky, A. Sachs u. I. Steinberger, Phys. Rev. **93**, 1367 [1954].

Wir verwenden Fermi, Set. I, da dieser Satz z. Zt. als der beste erscheint.

Dabei haben wir wie Byfield und Mitarbb.⁵ eine rechteckige Dichteverteilung mit $r_0 = 1,05$ verwendet. Dieser Wert des Potentials ist mit dem aus den Streuversuchen erschlossenen Wert von $V_{\text{exp}} = -18$ MeV zu vergleichen.

Nach der nichtlinearen Theorie herrscht im Kern für das Meson ein Potential

$$V = \frac{3}{2} A \langle \varphi^2 \rangle, \quad (4)$$

wenn φ das Mesonfeld des Kerns ist. Dieses berechnet sich zu $\varphi = (g \rho / A)^{1/3}$. Verwenden wir die von Mittelstaedt⁴ angegebenen Werte für g und A , dann bekommen wir ein Potential von $V = 1300$ MeV. Dies ist in klarem Widerspruch mit den Messungen an Kohle. Auch würde ein so großes A einen zu großen Wert für die Streulänge für π -p geben. Zwar läßt sich für eine Punktquelle das Mesonfeld mit der nichtlinearen Gleichung nicht streng berechnen, aber solange $A \varphi^2 < 1$ (also im Außenraum), spielen die Nichtlinearitäten in der Gleichung für φ keine Rolle. Andererseits entspricht $A \varphi^2 = 2/3$ schon ein Potential von der Höhe der Mesonmasse, so daß die genaue Potentialform im Inneren keine Rolle spielen wird, da das Meson ohnedies nicht so weit eindringt. Verwenden wir daher für größere Entfernung das gewöhnliche Potential der ps-Theorie

$$\varphi_i = \tau_i f(\sigma \nabla) e^{-r/4} \pi r, \quad (5)$$

dann ergibt dies mit $10 f^2/4 \pi = 0,06$ ein Meson-Nukleon-Potential

$$V = 3 \frac{e^{-2r}}{r^2} \left(1 + \frac{1}{r}\right)^2. \quad (6)$$

¹⁰ Mit Isotopenspinindizes ist der nichtlineare Term $\frac{1}{4} A \Phi_i \Phi_i \Phi_k \Phi_k$ und gibt eine Streumatrix

$$\tau_i \tau_k + \tau_k \tau_i = 2 \delta_{ik}.$$

¹¹ G. Chew, Phys. Rev. im Druck.

Dieses Potential ergäbe eine Streulänge etwa gleich 1, welche zudem noch unabhängig vom Isotopenspin¹⁰ wäre. Die zur Zeit besten Werte für die Streulängen sind

$$f_0^0 = 0,16, \quad f_0^1 = 0,11. \quad (7)$$

Um noch eine Abschätzung für die möglichen Werte von A zu bekommen, bemerken wir, daß angesichts der Unsicherheiten in V_{theor} und V_{exp} eine Abstoßung durch das Mesonfeld von etwa 10 MeV nicht auszuschließen ist

$$A \langle \varphi^2 \rangle \leq 1/15. \quad (8)$$

Dies würde eine so schwache Nichtlinearität ergeben, daß (5) im Großteil des Kerns eine gute Näherung sein sollte. Verwenden wir bei der Mittelung von $\langle \varphi^2 \rangle$ als untere Gültigkeitsgrenze von (5) nach Chew¹¹ $r = 1/5$,

$$\langle \varphi^2 \rangle = \left(\frac{f}{4\pi}\right)^2 3 \int_{1/5}^1 dr e^{-2r} \left(1 + \frac{1}{r}\right)^2 \sim \frac{1}{15}, \quad (9)$$

dann ergibt sich aus (8)

$$A \approx 1 \quad (10)$$

$A \sim 1$ würde auch für die Streulänge von p - π etwas von der Größenordnung (7) ergeben¹².

Zusammenfassend kann man sagen, daß man zur Erklärung der Kernsättigung allein durch Meson-Meson-Kräfte eine so starke Nichtlinearität braucht, daß man in Widerspruch mit den gemessenen Streuquerschnitten von π -Mesonen an Kernen kommt.

¹² Feldtheoretisch berechnet gibt die Vakuumpolarisation für A in 4. Ordnung einen unendlichen Ausdruck

$$\lim_{M \rightarrow \infty} (g^2/4\pi)^2 \ln M; \quad g = psps \text{ Kopplungskonstante.}$$

Bestimmung der Temperaturabhängigkeit der Dampfdruckverhältnisse

$$p_{12}\text{CO}/p_{13}\text{CO} \text{ und } p_{12}\text{CH}_4/p_{13}\text{CH}_4.$$

Von W. Groth, H. Ihle und A. Murrenhoff

Institut für physikalische Chemie der Universität Bonn

(Z. Naturforsch. 9a, 805—806 [1954]; eingeg. am 26. Juli 1954)

Zur Berechnung der Anreicherung von ¹³C, die sich durch Rektifikation von Kohlenoxyd und Methan erzielen läßt, wurden die Dampfdruckverhältnisse $p_{12}\text{CO}/p_{13}\text{CO}$ zwischen 68,2°K und ca. 75°K, und $p_{12}\text{CH}_4/p_{13}\text{CH}_4$ zwischen 90,66°K und ca. 96°K bestimmt.

Von beiden Gasen wurden Proben mit normalem ¹³C-Gehalt und mit einem Gehalt an ¹³C von ca. 10% durch folgende Reaktionen hergestellt:

1. $\text{CO}_2 + \text{H}_2 = \text{H}_2\text{O} + \text{CO},$
2. $\text{CO}_2 + 4\text{H}_2 = 2\text{H}_2\text{O} + \text{CH}_4.$

Bei Verwendung sehr reinen Wasserstoffs und Kohlendioxyds gelang es, durch Umpumpen der Gase in einem Kreislauf und Ausfrieren des Wassers sowohl Kohlenoxyd wie Methan in praktisch quantitativer Ausbeute und großer Reinheit zu gewinnen. Zur Abtrennung geringer Verunreinigungen (Wasserstoff und Kohlendioxyd) wurden die Gase von Silicagel fraktioniert desorbiert.

Zur Messung wurden Proben verschiedenen Gehaltes an ¹³C in zwei Bohrlöcher eines Kupferblocks kondensiert, der auf konstanter Temperatur gehalten wurde.

Der benutzte Kryostat gestattete es, bei Verwendung eines Membrankondensatormanometers¹ zur Messung der Druckdifferenzen die Dampfdruckunterschiede auf $\pm 1 \cdot 10^{-3}$ Torr reproduzierbar zu messen. Gleichzeitig wurde der Sättigungsdruck mit einem Quecksilbermanometer gemessen. Die Reinheit der zur Messung

¹ E. E. Becker u. O. Stehl, Z. angew. Phys. 4, 20 [1952].

verwendeten Gasproben wurde durch Messung der Dampfdruckdifferenzen zwischen Proben verschiedener Fraktionen der Desorption und verschiedener Herstellungsgänge kontrolliert.

Für die Umrechnung der gemessenen Dampfdruckdifferenzen auf die der reinen Isotopen Komponenten wurde die Gültigkeit des Raoult'schen Gesetzes über den ganzen Mischungsbereich vorausgesetzt.

Aus den Messungen ergeben sich Temperaturfunktionen für das Dampfdruckverhältnis, die sich durch folgende allgemeine Gleichung darstellen lassen:

$$\log p_L/p_S = A/T + B \lg T - C.$$

In Tab. 1 sind die Konstanten A , B , C und Werte für p_L/p_S am Tripelpunkt für CO und CH₄ angegeben.

	A	B	C	$(p_L/p_S)_{\text{Tripelpunkt}}$
CO	1,2190	0,018692	0,047251	1,0113 ± 0,0002
CH ₄	4,19855	0,077507	0,19588	1,0049 ± 0,0002

Tab. 1.

In Tab. 2 sind von uns gemessene Werte für $(p_L/p_S)_{\text{CO}}$ Werten gegenübergestellt, die aus einer von Kronberger² angegebenen empirischen Gleichung berechnet sind.

T	$(p_L/p_S)_{\text{CO}}$ diese Arbeit	$(p_L/p_S)_{\text{CO}}$ Kronberger
69,28	1,0109 ₆	1,0109 ₂
69,97	1,0106 ₆	1,0107 ₆
71,53	1,0101 ₆	1,0102 ₆
72,49	1,0100 ₁	1,0099 ₆
74,43	1,0094 ₆	1,0094 ₆

Tab. 2.

Die theoretische Berechnung des Dampfdruckverhältnisses $p_{12}\text{CH}_4/p_{13}\text{CH}_4$ am Tripelpunkt läßt sich analog zu der Berechnung von $p_{20}\text{Ne}/p_{22}\text{Ne}$ durch Keesom und Haantjes³ durchführen. Die prozentuelle Abweichung vom experimentellen Wert hat dieselbe Größe und Richtung.

Im Falle des Kohlenoxyds ist die theoretische Berechnung weit komplizierter und ihr Endergebnis ungenauer.

Trotzdem läßt sich auch auf Grund dieser Rechnung für das Kohlenoxyd am Tripelpunkt ein größerer relativer Dampfdruckunterschied zwischen beiden Isotopen Verbindungen erwarten als für Methan.

² Siehe T. F. Johns u. H. London, A. E. R. E. Report, Harwell 1951.

³ Keesom u. J. Haantjes, Physica 2, 986 [1935].

Über einige Isotope des Technetiums

Von J. Flegenheimer und W. Seelmann-Eggebert
Laboratorio de Radioquímica de la Comisión Nacional
de la Energía Atómica, Buenos Aires

(Z. Naturforsch. 9a, 806 [1954]; eingeg. am 14. August 1954)

Die bisher nicht bekannte Halbwertszeit der Tochtersubstanz des unter den Kernspaltprodukten aufgefundenen Molybdänisotops mit einer Halbwertszeit von etwa 11 Min. (102?) wurde gemessen und beträgt 5 ± 1 Sek.

Zur Halbwertszeitbestimmung wurde Spaltmolybdän radiochemisch abgetrennt, gereinigt und zuletzt als Bleimolybdat gefällt. Der Niederschlag wurde in einer Mischung von Salz- und Weinsäure gelöst, Perhenationen als Technetiumträger zugegeben und mit Tetraphenylarsoniumchlorid gefällt. In 6 Sek. gelang es, Rhenium zu fällen, den Niederschlag zu filtrieren und zur Messung zu bringen.

Als Meßgerät wurde ein besonders zur Bestimmung kurzer Halbwertszeiten umgebauter Integrator verwendet, mit dem man den Ladungsanstieg im Kondensator in Zeitintervallen registriert, die so klein gegen die Zeitkonstante sind, daß der Ausgleichsstrom durch den Entladungswiderstand noch keine Rolle spielt. Die Apparatur wurde von Herrn Dr. K. Fraenz (Comisión Nacional de la Energía Atómica) erdacht und entwickelt.

Auch der Abfall des Spaltmolybdäns wurde mit einer Absorptionsfolie, welche die β -Strahlen des Systems der Isobarenreihe mit der Massenzahl 101 völlig unterdrückt, gemessen. Nach Abzug der γ -Aktivität der Isobarenreihe 101 ergab sich eine Halbwertszeit für die Muttersubstanz des 5 Sek.-Technetiums von

$11,5 \pm 0,5$ Min., welche mit den Bestimmungen anderer Autoren gut übereinstimmt.

Bei der Bestrahlung von RuO₂ mit schnellen Neutronen wurde durch eine n,p-Reaktion ein neues Technetiumisotop mit einer Halbwertszeit von $3,8 \pm 0,2$ Min. aufgefunden und isoliert. Bei diesem Nuklid handelt es sich vermutlich um ¹⁰⁴Tc, da das zweite bisher noch unbekannte Technetiumisotop ⁹⁸Tc wahrscheinlich eine lange Halbwertszeit hat¹.

Bei der chemischen Abtrennung wurde das bestrahlte Rutheniumoxyd mit Ammoniak, dem einige Tropfen Wasserstoffsperoxyd zugesetzt waren, behandelt. Ein Teil des gebildeten Technetiums kann so mit der wässrigen Phase vom Rutheniumoxyd durch einfache Filtration getrennt werden. Zum Filtrat wurden Rhenium- und Molybdän-Träger zugesetzt und das Technetium mit Tetraphenylarsoniumchlorid gefällt. Die chemische Trennung vom Ende der Bestrahlung bis zum Messungsbeginn der Technetium-Fraktion dauerte 5 bis 6 Min.

Die Bestrahlungen wurden mit einem Philips-Kaskadengenerator von 1,4 MV durchgeführt. Deuteronen wurden beschleunigt, Lithium diene als *target*. Für die Durchführung der Bestrahlung möchten wir Herrn W. Scheuer und seinen Mitarbeitern herzlich danken; wie auch Herrn A. H. W. Aten jr. für die liebenswürdige Überlassung des Tetraphenylarsoniumchlorids.

Die vollständige Arbeit wird in Kürze in den Publicaciones de la Comisión Nacional de la Energía Atómica Serie Química erscheinen.

¹ J. K. Lerohl, M. L. Pool, D. N. Kundu u. R. A. House, Phys. Rev. 92, 934 [1954].