

Die Erscheinung des radioaktiven Rückstosses im Dienste von Diffusionsuntersuchungen.

Von

G. v. Hevesy und W. Seith.

Bei der Untersuchung der Diffusion zwischen zwei festen Metallen wurden je nach dem untersuchten Metallpaar sehr verschiedene Ergebnisse erzielt. Teilweise wurde keine Vermischung nachgewiesen, teilweise konnte man beträchtliche Diffusionsgeschwindigkeiten feststellen. So fand ROBERT AUSTEN in seinen klassischen Untersuchungen über die Diffusion des Goldes in festem Blei bereits bei 100° einen Diffusionskoeffizienten von $2 \cdot 10^{-5} \text{ cm}^2 \text{ Tag}^{-1}$, also eine Diffusionsgeschwindigkeit, deren Wert bereits das 10^{-5} -fache der Golddiffusion in geschmolzenem Blei erreicht. Die zahlreichen Versuche, die über Diffusion in festen Metallen ausgeführt worden sind, ließen keine einfachen Gesetzmäßigkeiten erkennen. In der Hoffnung eher zu solchen zu gelangen, wenn man statt die Diffusion zweier verschiedenen Metalle ineinander zu studieren — wo ja die Diffusion meistens von einer chemischen Reaktion begleitet wird — den Platzwechsel der Atome in einem metallischen Element untersucht, wurden Untersuchungen über die Selbstdiffusion in Blei in Angriff genommen. Man kann in erster Annäherung die Atome der Bleiisotope als vom Standpunkt der Diffusion identisch betrachten und es liefert dann die Diffusionsgeschwindigkeit der radioaktiven Bleiatome in gewöhnlichem Blei die Selbstdiffusionsgeschwindigkeit im Blei. Bei den ersten Versuchen ¹⁾ hat man auf eine Bleistange im Vakuum Radioblei geschichtet und erhitze das erhaltene System ein Jahr lang bei etwa 280° . Dann wurde die an das Radioblei grenzende, ursprüng-

¹⁾ J. GROH und G. v. HEVESY, Ann. d. Phys. 65, 216, 1921.

lich inaktive Bleischicht auf das Vorhandensein von RaD elektroskopisch untersucht. Das Resultat war negativ. Da die geschilderten Versuche ergaben, daß die Selbstdiffusion im Blei jedenfalls eine sehr langsame ist (kleiner als 10^{-4} cm² Tag⁻¹ bei 280°), mußte eine empfindlichere Methode in Anwendung gebracht werden. Zu diesem Zwecke wurde folgendes Verfahren eingeschlagen¹⁾: Eine Radiobleifolie von etwa $\frac{1}{50}$ mm Dicke, sowie eine gewöhnliche Bleifolie derselben Dicke wurden im Vakuum zusammengepreßt, das System erwärmt und untersucht, ob α -Strahlen auf der ursprünglich inaktiven Seite nunmehr nachweisbar geworden sind. Da die Reichweite der α -Teilchen in Blei nur etwa $2 \cdot 10^{-3}$ cm beträgt, können α -Strahlen nur dann auf der inaktiven Bleiseite nachweisbar sein, wenn aktive Bleiatome in die inaktive Folie diffundierten. Bei diesen Versuchen wendete man statt dem RaD das leichter zugängliche ThB als Indikator an, d. h. man untersucht die Diffusionsgeschwindigkeit des Bleisotopen ThB in gewöhnlichem Blei. Die α -Strahlen weist man elektroskopisch, oder, um von den gleichfalls vorhandenen β -Strahlen nicht gestört zu werden, durch Zählung der Scintillationen nach. Da die Diffusionskonstante dem Quadrat der Schichtdicke proportional ist, lassen sich mit Hilfe der geschilderten Methode bereits wesentlich geringere Diffusionskonstante bestimmen, als mit der zuerst beschriebenen. Die Methode wurde in verschiedenen Variationen angewandt, die eine weitere Vergrößerung der Empfindlichkeit ermöglichten. Man maß z. B. die Abnahme der Zahl der Scintillationen auf der aktiven Seite. Statt eine aktive und eine inaktive Folie zusammenzupressen, sammelte man einen unendlich dünnen Beschlag von ThB an der Bleioberfläche, zählte vor und nach dem Erwärmen die Anzahl der Scintillationen und berechnet aus der Größe der Abnahme die Diffusionsgeschwindigkeit. Die geschilderte Methode ermöglichte noch den Nachweis einer der Konstante von 10^{-8} cm² Tag⁻¹ entsprechende außerordentlich langsamen Diffusion. Mit Hilfe dieser Methode konnte bei 280° in Bleifolien eine D. K. von $1,5 \cdot 10^{-6}$ bei 326° (2° unterhalb des Schmelzpunktes) eine von $1,4 \cdot 10^{-4}$ nachgewiesen werden. Dieselbe Untersuchung an einem Bleieinkristall ausgeführt ergab dagegen, daß die D. K. kleiner als 10^{-8} ist. In einem Einkristall des Bleis kommen die Gitterkräfte, wenn auch nicht in solchem Maße wie in einem „Idealkristall“, doch genügend stark

¹⁾ G. v. HEVESY und A. OBRUTSCHEWA, Nature, 115, 674, 1925.

zur Geltung, um den im flüssigen Zustand sehr regen Platzwechsel (D. K. = $2 \text{ cm}^2 \text{ Tag}^{-1}$) auf einen außerordentlich geringen Wert herunterzudrücken. In einem kristallinen Metall, wo zahlreiche mehr oder minder durchgreifende Gitterstörungen vorhanden sind, kommen dagegen die beweglichkeithemmenden Gitterkräfte nur, je nach dem Ausmaß der Störungen, zum Teil zur Geltung.

Nachdem auch nach der oben beschriebenen sehr empfindlichen Methode keine Diffusion im Bleieinkristall nachgewiesen werden konnte, sind wir zu einer noch empfindlicheren übergegangen, die gestattet, Vorgänge in den obersten 100 Atomschichten einer Metalloberfläche zu beobachten und die wir in dem Folgenden beschreiben wollen.

Die radioaktive Rückstoß.

Wir sammeln auf der Oberfläche einer Bleifolie ThB-Atome (Bleiisotop). Diese kommen nach einigen Stunden ins Gleichgewicht mit ihrem Zerfallsprodukte, dem ThC. Das ThC sendet α -Strahlen aus und die ThC-Atome erleiden nach dem Aussenden eines α -Geschosses einen Rückstoß. Die Rückstoßatome, die nunmehr im ThC umgewandelt worden sind und eine positive Ladung tragen, können auf einer negativ geladenen Fläche gesammelt werden. Sie senden u. a. γ -Strahlen aus, und durch Vergleich der γ -Strahlung, welche die aktive Bleifläche aussendet, mit der γ -Strahlung der durch Rückstoß abgeschleuderten ThC-Menge ermittelt man die Ausbeute des Rückstoßes. Erwärmen wir jetzt die Bleifolie und diffundiert das ThB in eine Tiefe von etwa 100 Atomen, so können die Rückstoßatome aus der Folie nicht mehr entweichen, denn wie die Reichweitebestimmung zeigt, beträgt die Reichweite der Rückstoßatome in Blei nur gegen $2 \cdot 10^{-6} \text{ cm}$, also die Dicke von rund 100 Atomschichten. Während wir in der Lage waren, mit der Hilfe der früher geschilderten α -Reichweitemethode einen Diffusionskoeffizienten von $10^{-8} \text{ cm}^2 \text{ Tag}^{-1}$ nachzuweisen, soll die Rückstoßreichweitemethode den Nachweis von $\frac{1}{(1000)^2} \cdot 10^{-8}$, also 10^{-14} ermöglichen, da ja die Rückstoßreichweite rund 1000 mal kleiner ist, als die α -Strahlenreichweiten. Unser Verfahren besteht demnach darin, daß wir die Rückstoßausbeute vor und nach der Erwärmung ermitteln; die Abnahme der letzteren zeigt die stattgefundene Diffusion an. Will man die Empfindlichkeit der Methode weiter erhöhen, so stellt man die Versuche mit Bleioberflächen an, in die das ThB

bereits zum Teil innerhalb der Reichweite eingedrungen ist. Das läßt sich z. B. durch Sammeln des aktiven Thoriumniederschlags im elektrischen Felde erreichen, wobei ein Teil der ThB-Atome durch Rückstoß (der ThA-Atome) unter die Oberfläche gelangt, oder durch Verminderung des außerhalb der Folie liegenden Reichweiteanteils etwas durch Sammeln der Rückstoßprodukte bei erhöhtem Drucke.

Änderung der Rückstoßausbeute mit der Temperatur.

Im folgenden seien einige Versuche angeführt, um die Brauchbarkeit der Methode zu zeigen. ThB wurde in der Form eines „aktiven Niederschlages“ auf einer Bleifolie gesammelt und die Rückstoßausbeute vor und nach dem Erhitzen gemessen.

Temp. in C ⁰	Zeit des Erhitzens in Stunden	Rückstoßausbeute %
20	24	100
95	5	85
135	5	76
165	5	34
180	2,5	26
240	5	8
320	5	An der Grenze der Nachweisbarkeit.

Bei 95⁰ befinden sich demnach die Bleiatome an der Oberfläche einer Bleifolie bereits in beweglichem Zustande und bei 320⁰ ist die Beweglichkeit der Bleiatome in den obersten Atomschichten eine so große geworden, daß innerhalb der 100 obersten Atomschichten nach 5 Stunden praktisch keine mehr von denen nachweisbar sind, die ursprünglich dort vorhanden waren. In roher Annäherung läßt sich die Diffusionskonstante aus der Rückstoßausbeute, falls die $\bar{\leq}$ 50 % beträgt, nach der Formel $D = \frac{R^2}{A^2 \pi Z}$

berechnen, wo R = Reichweite, A = Rückstoßausbeute und Z = Zeit bedeutet. Es ergibt sich dann bei 165⁰, wo R = $2 \cdot 10^{-6}$ cm, Z = 0,2 Tage und A = 0,34 beträgt, $D = 6 \cdot 10^{-11}$ cm² Tag⁻¹.

Wie bereits erwähnt, dringt ein Teil der gesammelten ThB-Menge, die aus ThA auf der Bleifläche entstanden ist, in die Bleifolie ein. Dieser Teil braucht keine $2 \cdot 10^{-6}$ cm zu diffundieren um der Rückstoßausbeute entzogen zu werden, vielmehr genügt dazu eine viel kürzere Strecke, also eine noch kleinere D. G. wie die

oben angegebene. Um genauere Werte der D. G. zu erhalten, ist es erforderlich, das ThB durch Destillation des auf einer Platinfläche gesammelten aktiven Niederschlags zu gewinnen, d. h. den ThB-Dampf auf der Bleifläche zu kondensieren.

Wir haben ferner ThB auf Platin, Silber und Nickel gesammelt und die Rückstoßausbeute nach erfolgtem Erhitzen bis zu 400° ermittelt, ohne jedoch eine Abnahme der Rückstoßausbeute feststellen zu können; wogegen Cadmium ungefähr dasselbe Verhalten zeigte wie Blei. Im Gegensatz zu denen der erstgenannten hoch schmelzenden Metalle befinden sich die an der Oberfläche des leicht schmelzbaren Bleis und Cadmiums liegenden Atome in einem genügend beweglichen Zustande um ein Hineindiffundieren der ThB-Atome zu ermöglichen.

Bei den besprochenen Versuchen haben wir sorgfältig darauf geachtet, daß die Bleioberfläche sich oberflächlich nicht oxydiert und dem Einwand zu entgehen, daß wir nicht etwa den Austausch zwischen Bleiatomen, sondern das Verhalten von Bleioxyd an einer Bleifläche verfolgten. Diesem Einwand entgeht nun am besten durch weitgehende Variation der Versuchsbedingungen. Während wir einerseits diesen Weg einschlugen und uns weiter mit den Vorgängen an einer Bleifläche beschäftigen, gingen wir gleichzeitig dazu über, die Vorgänge an der Oberfläche von Bleiverbindungen zu untersuchen, in erster Linie auf der von Bleioxyd.¹⁾

Auf der Oberfläche einer gepreßten gelben PbO-Pastille sammelten wir ThBO und untersuchten die Ausbeute nach erfolgter Erwärmung. Die Pastillen wurden, bevor das PbO an ihrer Oberfläche gesammelt wurde, mehrere Stunden lang bei 500° getempert. Die Ergebnisse der zweistündigen Versuche zeigen die folgenden Zahlen:

Temp. in C°	Rückstoßausbeute %
300	88
325	73
375	69
410	55

Bei 300° ist demnach bereits an der Oberfläche der PbO-Pastille eine unmittelbar nachweisbare Beweglichkeit vorhanden. Als die Temperatur, bei welcher PbO-Pulver sich zusammenballt, haben

¹⁾ Die Pastillen färbten sich beim Pressen mit 4000 kg cm² leicht orangerot; ferner muß bemerkt werden, daß die Rückstoßausbeute stark von der Vorbehandlung der Pastille abhängt.

G. TAMMANN und MANSURI ¹⁾ 410⁰ festgestellt und daraus geschlossen, daß bei dieser Temperatur Atome des PbO eine so große Beweglichkeit erlangt haben, daß ein Zusammenballen des Pulvers nunmehr erfolgen kann. Mit der Hilfe der sehr empfindlichen Rückstoßmethode läßt sich schon bei 300⁰ ein deutlicher Platzwechsel der Bleiionen an der Oberfläche des Pulvers nachweisen. Wir hoffen demnächst über einen weiteren Ausbau der beschriebenen Methode berichten zu können.

Der Freiburger Wissenschaftlichen Gesellschaft sei für die Unterstützung dieser Untersuchung bestens gedankt.

Freiburg i. Br., April 1928.

¹⁾ G. TAMMANN und Q. A. MANSURI, Z. Anorg. 126, 121, 1923.

ZOBODAT - www.zobodat.at

Zoologisch-Botanische Datenbank/Zoological-Botanical Database

Digitale Literatur/Digital Literature

Zeitschrift/Journal: [Berichte der naturforschenden Gesellschaft zu Freiburg im Breisgau](#)

Jahr/Year: 1928

Band/Volume: [28](#)

Autor(en)/Author(s): Hevesy G. v., Seith Wolfgang

Artikel/Article: [Die Erscheinung des radioaktiven Rückstosses im Dienste von Diffusionsuntersuchungen 453-458](#)