**Zeitschrift:** Helvetica Physica Acta

**Band:** 34 (1961)

Heft: VIII

Artikel: Untersuchungen zum Mechanismus der Blasenbildung in Freon-12 und

Propan durch Rückstosskerne einiger -Strahler

Autor: Riepe, G. / Hahn, B.

**DOI:** https://doi.org/10.5169/seals-113200

#### Nutzungsbedingungen

Die ETH-Bibliothek ist die Anbieterin der digitalisierten Zeitschriften auf E-Periodica. Sie besitzt keine Urheberrechte an den Zeitschriften und ist nicht verantwortlich für deren Inhalte. Die Rechte liegen in der Regel bei den Herausgebern beziehungsweise den externen Rechteinhabern. Das Veröffentlichen von Bildern in Print- und Online-Publikationen sowie auf Social Media-Kanälen oder Webseiten ist nur mit vorheriger Genehmigung der Rechteinhaber erlaubt. Mehr erfahren

#### **Conditions d'utilisation**

L'ETH Library est le fournisseur des revues numérisées. Elle ne détient aucun droit d'auteur sur les revues et n'est pas responsable de leur contenu. En règle générale, les droits sont détenus par les éditeurs ou les détenteurs de droits externes. La reproduction d'images dans des publications imprimées ou en ligne ainsi que sur des canaux de médias sociaux ou des sites web n'est autorisée qu'avec l'accord préalable des détenteurs des droits. En savoir plus

#### Terms of use

The ETH Library is the provider of the digitised journals. It does not own any copyrights to the journals and is not responsible for their content. The rights usually lie with the publishers or the external rights holders. Publishing images in print and online publications, as well as on social media channels or websites, is only permitted with the prior consent of the rights holders. Find out more

**Download PDF: 11.07.2025** 

ETH-Bibliothek Zürich, E-Periodica, https://www.e-periodica.ch

# Untersuchungen zum Mechanismus der Blasenbildung in Freon-12 und Propan durch Rückstosskerne einiger $\alpha$ -Strahler

von G. Riepe und B. Hahn

Physik-Institut der Universität Fribourg, Schweiz

(15. VIII. 1961)

Zusammenfassung. Der Mechanismus der Blasenbildung lässt sich im Fall von Teilchen kleinerer Reichweite als ein «kritischer» Blasendurchmesser durch ein einfaches thermisches Modell beschreiben.

Als ein Beispiel solcher Teilchen wurde die Blasenbildung durch Rückstosskerne vom  $\alpha$ -Zerfall (Po²¹¹, ThC, ThC′) untersucht. Aus den mit einer druck- und temperaturstabilisierten Kammer für  $\mathrm{CCl_2F_2}$  zwischen 30°C und 80°C und für  $\mathrm{C_3H_8}$  bei 18,5°C erhaltenen Werten folgt eindeutig, dass die Energiebilanz – worin der Verdampfungsterm den Hauptanteil ausmacht – innerhalb von ca. 5% stimmt.

Die für die Blasenbildung durch Auger-Elektronen von A<sup>37</sup> erhaltenen Ergebnisse können qualitativ durch dasselbe Modell erklärt werden.

Abstract. The mechanism of bubble formation in superheated liquids can be described by a simple thermal model for particles whose range is smaller than the 'critical' bubble diameter. The bubble formation by recoils from  $\alpha$ -disintegrations (Po²10, ThC, ThC') has been investigated for CCl₂F₂ between 30°C and 80°C and for C₃H₃ at 18,5°C using a temperature and pressure stabilized bubble chamber. The dependence on the degree of superheat of the bubble formation leads to the conclusion, that the energy needed to form a critical-size bubble (where the evaporation term represents the main part) agrees within 5 per cent with the recoil energy. Values obtained for the bubble formation by Auger-electrons from A³7 can be explained qualitatively by the same model.

#### I. Einleitung

Fast alle heute vertretenen Auffassungen über die Bildung von Blasen durch geladene Teilchen stimmen in einer Grundvorstellung überein: Der Energieverlust des Teilchens bewirkt letztlich ein lokales Aufheizen der Flüssigkeit, was zur Bildung einer Blase von submikroskopischer Grösse (Blasenkeim) führt. Ob diese Blase nun zu einer sichtbaren Kugel heranwachsen kann (mit anderen Worten: ob ihre Keim-Grösse «kritisch» wird), ist eine Frage des Überhitzungsgrades der Flüssigkeit – hängt also zum Beispiel davon ab, wie weit eine Blasenkammer unter den Gleichgewichtsdruck expandiert wird. Das Kernproblem der Blasenbildung ist

die Energiebilanz; es geht um einen Vergleich der vom Teilchen abgegebenen Energie mit derjenigen, die zur Bildung einer Blase von kritischer Grösse aufzubringen ist.

Die bisher entwickelten Theorien  $^{1-7}$ ) befassen sich fast ausschliesslich mit der Blasenbildung durch Teilchen von weit grösserer Reichweite als ein kritischer Blasendurchmesser – wahrscheinlich eben, weil dieser Fall der normalen Verwendungsweise einer Blasenkammer entspricht. Um hier die für einen Blasenkeim verfügbare Energie berechnen zu können, ist die Kenntnis der räumlichen Energieverteilung (Energiedichte) längs einer Teilchenbahn notwendig. Da diese Energieverteilung jedoch wegen des komplizierten Verhaltens der angestossenen niederenergetischen Sekundärteilchen (hauptsächlich  $\delta$ -Elektronen) bisher bloss näherungsweise bekannt ist, kann nur eine qualitative Übereinstimmung mit experimentellen Werten erreicht werden.

Zur Untersuchung der Energiebilanz ist es sicher aussichtsreicher, gerade den entgegengesetzten Fall zu betrachten: die Bildung einer Blase durch ein niederenergetisches Teilchen, dessen Reichweite mit dem kritischen Blasendurchmesser vergleichbar (oder kleiner) ist – weil hier eine genaue Kenntnis der vom Teilchen geschaffenen Energiedichte nicht erforderlich wird. Dieser Fall hat bisher wenig Interesse gefunden. Einige Experimente, bei denen angenähert solche Verhältnisse vorlagen, sind von Ghormley<sup>8</sup>) und Bassi et al.<sup>9</sup>) unternommen worden. Die Untersuchungen von Ghormley befassen sich mit der Blasenbildung durch Spaltprodukte von U<sup>235</sup> und durch die an schnellen Neutronen elastisch gestreuten C-Atome. Da die Reichweiten dieser Teilchen den kritischen Blasendurchmesser um ein Mehrfaches überschreiten, ist eine quantitative Energiebilanz hier nicht möglich.

Der relative Anteil der in der Energiebilanz zu berücksichtigenden Energieterme hängt weitgehend von den Eigenschaften der verwendeten Flüssigkeiten und den verfügbaren Teilchenenergien ab.

In dieser Arbeit soll als einfach überschaubarer Fall von Teilchen kleinerer Reichweite als ein kritischer Blasendurchmesser die Blasenbildung durch Rückstosskerne vom α-Zerfall (Po²¹¹⁰, ThC, ThC′) behandelt werden. Vorläufige Resultate sind in einer kurzen Mitteilung beschrieben worden¹⁰). Bei der Diskussion der Ergebnisse wird noch auf einige Experimente zur Blasenbildung durch Auger-Elektronen eingegangen.

# II. Energiebilanz für die Blasenbildung durch Rückstosskerne vom $\alpha$ -Zerfall

Zunächst soll untersucht werden, welche Teilchenart eine kleinere Reichweite als der Durchmesser derjenigen kritischen Blase besitzt, zu deren Bildung die ganze Teilchenenergie verwandt wurde. Dabei ist zuerst zu klären, was unter der entscheidenden kritischen Grösse überhaupt zu verstehen ist.

Auf eine sphärische Blase vom Radius r wirkt als Folge der Oberflächenspannung  $\sigma$  ein Druck

$$p=\frac{2\sigma}{r},$$

der nach innen gerichtet ist. Damit eine Blase im Gleichgewicht bestehen kann, muss dieser Druck gerade kompensiert sein durch die Differenz zwischen dem hydrostatischen Druck  $p_s$  der Flüssigkeit und dem Dampfdruck  $p_r$  in der Blase

$$\Delta p = p_r - p_s$$
.

Dann gilt als Bedingung für statisches (labiles) Gleichgewicht:

$$\Delta p = \frac{2 \sigma}{r_c} \,, \tag{1}$$

womit jeder positiven Druckdifferenz (Überhitzung) ein bestimmter kritischer Radius zugeordnet wird. Eine Blase wächst also von selbst weiter, falls ihr Radius grösser als  $r_c$  ist und schrumpft im umgekehrten Fall wieder zusammen. Das bedeutet: Zur Bildung einer makroskopischen Blase ist nur die zum Wachsen auf kritische Grösse erforderliche Energie  $W_c$  aufzubringen.

Der in der Gleichgewichtsbedingung auftretende Dampfdruck  $p_r$  in der Blase ist nicht nur eine Funktion der Temperatur, sondern ändert sich auch mit dem Radius r. Nach der Thomsonschen Beziehung (Kapillarkondensation) wird  $p_r$  mit dem Dampfdruck  $p_{\infty}$  einer ebenen Fläche auf folgende Weise (bezüglich der Voraussetzungen bei der Herleitung siehe Volmer<sup>11</sup>)) verknüpft:

$$\ln \frac{p_{\infty}}{p_r} = \frac{M}{R T \varrho_e} \frac{2 \sigma}{r} . \tag{2}$$

Darin bedeuten:  $\varrho_e$  die Dichte\*) und M das Molekulargewicht der Flüssigkeit, T die absolute Temperatur und R die Gaskonstante.

In den meisten praktischen Fällen – abgesehen von sehr grossen  $\Delta p$ -Werten – unterscheidet sich  $p_r$  von  $p_{\infty}$  nur wenig, und man kann den Logarithmus durch das erste Glied seiner Entwicklung ersetzen.

Einer Druckmessung ist naturgemäss immer nur

$$\Delta p' = p_{\infty} - p_{s}$$

<sup>\*)</sup> Für die in verschiedenen Formeln auftretende Flüssigkeitsdichte  $\varrho_e$  kann immer der Gleichgewichtswert eingesetzt werden, da wegen der kleinen adiabatischen Kompressibilität ihr Wert sich zum Beispiel bei einem  $\varDelta p'$  von 2 atm um nur ca.  $2\times 10^{-4}$  ändert.

zugänglich. Dieser Wert lässt sich mittels Beziehung (2) in das  $\Delta p$  umrechnen.

Die zur Blasenbildung nötige Energie muss von einem Teilchen, dessen Reichweite kleiner als der kritische Blasendurchmesser sein soll, in dem subkritischen Flüssigkeitsvolumen abgegeben werden, das später als Dampf die kritische Blase (Volumen  $V_c$ ) ausfüllt. Dieses vom Teilchen aufgeheizte Volumen  $V_{sc} = \varrho_v/\varrho_e V_c$  erreicht eine Längenausdehnung von höchstens  $2 \gamma_c$ . ( $\varrho_v$  bezeichnet die Dampfdichte.)

Eine weitere Voraussetzung verlangt, dass die in  $V_{s\,c}$  abgegebene Energie während der ganzen Zeit  $\tau_c$ , welche die Blase zum Wachsen auf kritische Grösse gebraucht, in  $V_c$  bleibt. Daraus ergibt sich eine Forderung bezüglich des Abfliessens der anfangs nur in  $V_{s\,c}$  (der Einfachheit halber hier als sphärisch gedacht) enthaltenen Energie. Die in einem Kugelvolumen vom Radius r gespeicherte thermische Energie fällt durch Wärmeleitung auf 1/e in einer Zeit ab, die gegeben ist durch

$$\tau_w(r) = \frac{r^2 c_e \varrho_e}{4 \lambda_e} , \qquad (3)$$

wo  $c_e$  die spezifische Wärme der Flüssigkeit,  $\varrho_e$  ihre Dichte und  $\lambda_e$  ihre thermische Leitfähigkeit bedeuten. Es wird also verlangt, dass die zum Wachsen auf subkritische Grösse benötigte Zeit  $\tau_{sc} \ll \tau_w (r_{sc})$  ist. Unter Berücksichtigung der Tatsache, dass während des Blasenwachstums thermische Energie aufgebraucht wird, ergibt sich in ähnlicher Weise die Bedingung  $\tau_c \leq \tau_w(r_c)$ .

Eine obere Grenze für die Reichweite als Funktion der Energie der gewünschten Teilchen lässt sich aus der Abhängigkeit zwischen einem kritischen Radius  $r_c$  und der zur Bildung des Volumens  $V_c$  benötigten Energie  $W_c$  bestimmen.

Zur Berechnung dieser Energie  $W_c(r_c)$  soll zunächst angenommen werden, dass die subkritische Blase schneller wächst, als die verfügbare Energie weggeleitet werden kann, dass es sich also bei der Blasenbildung um einen adiabatischen Prozess handelt, der erst im Endzustand mit  $r \to r_c$  zu einem Temperaturausgleich zwischen Blase und umgebender Flüssigkeit führt. Die zum Wachsen auf kritische Grösse benötigte Zeit wird mit dieser Annahme  $\tau_c \approx \tau_w(r_c)$ . Im Blaseninnern kann daher (im Endzustand) mit Gleichgewichtswerten gerechnet werden, obwohl die Flüssigkeit sich noch im metastabilen Zustand befindet. Diese einfache Annahme bedingt einen Minimalwert von  $W_c$ . Wird ausserdem vorläufig noch angenommen, dass der Prozess quasistatisch verläuft, so setzt sich  $W_c$  aus folgenden Termen zusammen:

Die Bildung der Blasenoberfläche erfordert

$$W_1 = 4 \,\pi \,\sigma \,r_c^2 \,. \tag{4}$$

Zur Schaffung des Volumens entgegen dem hydrostatischen Druck  $\phi_s$  der Flüssigkeit ist ein « $\phi V$ -Term» nötig von

$$W_2 = \frac{4}{3} \pi r_c^3 p_s. {5}$$

Zur Verdampfung einer der Dampfmasse (von  $V_c$ ) entsprechenden Flüssigkeitsmenge ist eine Energie von

$$W_3 = \frac{4}{3} \pi r_c^3 \varrho_v h \tag{6}$$

erforderlich, worin h die Verdampfungswärme bezeichnet.

Wird die Annahme eines quasistatisch verlaufenden Prozesses fallengelassen – was im Falle eines hohen Wertes von  $\dot{r}$  (= dr/dt) notwendig wird –, so sind noch einige «dynamische Terme» zu berücksichtigen\*).

Aus den zur Berechnung von  $W_c$  gemachten Voraussetzungen folgte  $\tau_c \approx \tau_w(r_c)$ , woraus sich unter der Annahme, dass  $\dot{r}$  mit wachsendem r abnimmt, ein Maximalwert von  $\dot{r}_c = \dot{r} \ (r = r_c)$  abschätzen lässt

$$\dot{r}_c \le \frac{r_c}{\tau_c} \approx \frac{r_c}{\tau_w} = \frac{4 \lambda_e}{r_c c_e \varrho_e} \,.$$
 (7)

Da die wachsende Blase der umgebenden Flüssigkeit radiale Geschwindigkeit und damit kinetische Energie überträgt, muss auch dieser Betrag zu  $W_c$  hinzugerechnet werden. Sieht man die Flüssigkeit als inkompressibel an, so wird dieser Term

$$W_4 = 2 \pi \varrho_e \dot{r}_c^2 r_c^3 \,, \tag{8}$$

der in den meisten Fällen sehr klein gegenüber  $W_1 + W_2 + W_3$  ist. Mit dem Wert  $\dot{r}_c = r_c/\tau_w(r_c)$  berechnet sich dieser Term zu

$$W_4 = 32 \,\pi \, \frac{\lambda_e^2 \, r_c}{c_e^2 \, \varrho_e} \,. \tag{9}$$

Die kinetische Energie des Dampfes kann dagegen vernachlässigt werden. Seitz¹) berücksichtigt darüber hinaus noch einen Energieaufwand zur Überwindung viskoser Kräfte in der Nähe der Blasenoberfläche. Setzt man eine inkompressible Flüssigkeit voraus, so wird dieser Term

$$W_5 = 16 \pi \eta \int_0^{r_c} r \, r \, dr \,, \tag{10}$$

<sup>\*)</sup> Eine eingehende Behandlung des subkritischen Blasenwachstums und eine Diskussion der bezüglich  $\dot{r}$  zu machenden Annahmen – allerdings für kleinere kritische Radien als im später behandelten Fall – findet sich bei Seitz<sup>1</sup>).

worin  $\eta$  die Viskosität bedeutet. Wird mit dem in (7) abgeschätzten Maximalwert von  $\dot{r}$  gerechnet, so erhält man

$$W_5 = 64 \pi \eta D_e r_c \tag{11}$$

mit  $D_e = \lambda/\varrho c$ .

Die gesamte zur Bildung einer Blase von kritischer Grösse aufzubringende Energie  $W_c$  ergibt sich als Summe der Anteile  $W_1$  bis  $W_5$ . Wie in Kap. IV gezeigt wird, ist der Beitrag von  $W_4 + W_5$  zu  $W_c$  in den behandelten Fällen vernachlässigbar (ca. 2%), so dass man als Näherungswert für  $W_c$  erhält

$$W'_c = 4 \pi r_c^2 \sigma + \frac{4}{3} \pi r_c^3 (p_s + \varrho_v h) \approx W_c.$$

Da ferner in allen später betrachteten Fällen der Unterschied zwischen  $p_{\infty}$  und  $p_r$  kleiner als 1% ist (Gleichung (2)), kann man unbedenklich hier

$$p_s \approx p_\infty - \frac{2 \sigma}{r_c}$$

setzen; diese Vernachlässigung ändert den Wert von  $W_c$  um weniger als 0.1%.

Also wird mit hinreichender Genauigkeit

$$W'_{c}(r_{c}) = \frac{4}{3} \pi \sigma r_{c}^{2} + \frac{4}{3} \pi (p_{\infty} + \varrho_{v} h) r_{c}^{3}$$
 (12)

eine Gleichung 3. Grades in r. An einem in Figur 1 wiedergegebenen Beispiel praktisch gewählter Betriebsbedingungen (CCl<sub>2</sub>F<sub>2</sub> bei 29,4°C) wird deutlich, dass der kubische Term überwiegt; und dies ist der Fall für den ganzen interessierenden Temperaturbereich.

Diese für  $W'_c(r_c)$  erhaltene Gleichung kann man nun als obere Grenze für die Reichweite als Funktion der Energie der gesuchten Teilchenart ansehen; falls deren Energie

$$E = W_c'(r_c) \tag{13}$$

ist, sollte ihre Reichweite

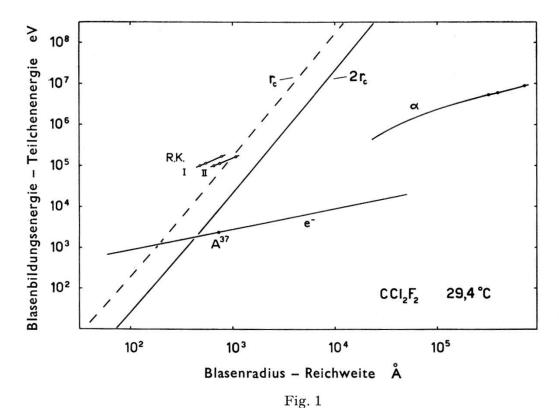
sein.

Wie sich nun zeigen wird, befinden sich unter den Teilchen, welche die Bedingung (13) erfüllen, die Rückstosskerne vom  $\alpha$ -Zerfall (in Fig. 1 sind Werte für  $CCl_2F_2$  bei 29,4°C eingetragen).

 $R < 2 r_c$ 

Über die Reichweite von Rückstosskernen gibt es bisher wenig experimentelle Unterlagen (Hanna in Segre III<sup>12</sup>)), dafür aber eine theoretische Behandlung dieses Problems von N. Bohr<sup>13</sup>), deren Ergebnisse mit Messungen, die sich vor allem mit Rückstosskernen höherer Energie von Kernreaktionen befassen<sup>14</sup>)<sup>15</sup>), ziemlich gut übereinstimmen. Nach dieser

Theorie hängt die Natur des Bremsprozesses von der Geschwindigkeit der Teilchen ab. Die schweren Rückstosskerne vom  $\alpha$ -Zerfall mit einer Kernladungszahl  $z \sim 80$  besitzen wegen ihrer geringen Energie von ca. 2% der  $\alpha$ -Energie nur eine kleine Anfangsgeschwindigkeit von 1/6  $v_0$  – der Bohrschen Geschwindigkeit ( $v_0 = e^2/\hbar$ ). Daher beschreibt Bohr das Abbremsen durch «nuclear collisions» (Stösse mit dem Atom als Ganzes). Die Rückstosskerne verlieren ihre Energie in wenigen Elementarprozessen hauptsächlich durch elastische Streuung im abgeschirmten Coulombfeld des Kerns um grosse Winkel und erfahren daher grosse Reichweite-Schwankungen.



Abhängigkeit der zur Blasenbildung nötigen Energie  $W_c$  vom Blasenradius  $r_c$  für  $\mathrm{CCl_2F_2}$  bei 29,4°C

Energie-Reichweite-Beziehung für Rückstosskerne vom α-Zerfall von Po<sup>210</sup>, ThC und ThC' (R. K. I exp.; R. K. II th.), α-Teilchen und Elektronen

Bohr erhält als Näherungsausdruck für die mittlere Reichweite

$$R_r = \frac{1}{2 \pi N a_0^2} \frac{1}{z_r^{2/3} z} \frac{M_r}{m} \left(\frac{v_r}{v_0}\right)^2, \tag{14}$$

worin bedeuten:  $M_r$  die Masse des Rückstosskerns,  $v_r$  seine Anfangsgeschwindigkeit und  $z_r$  seine Ladung, weiter m die Elektronenmasse,  $a_0$  der Bohrsche Radius ( $a_0 = \hbar^2/m \ e^2$ ), z die Ordnungszahl des Mediums (der stöchiometrische Mittelwert) und N dessen Atom-Dichte. Daraus ergeben

sich für die bei der experimentellen Untersuchung verwendeten Rückstosskerne von Po<sup>210</sup>, ThC und ThC' in CCl<sub>2</sub>F<sub>2</sub> von 29,4°C die in Tabelle I aufgeführten Werte.

Nach einer weitergeführten Näherung der Bohrschen Rechnung von LINDHARD und Scharff<sup>16</sup>) bzw. einer anderen von Nielsen<sup>17</sup>), in der nicht mehr die Masse der bremsenden Atome und ihre Ladung gegenüber  $M_r$  und  $z_r$  als vernachlässigbar klein angesehen werden, erhält man ca. 9% höher liegende Reichweiten (in Fig. 1 R. K. II, und Tab. I).

Zum Vergleich sind einige von Cohen <sup>18</sup>) gemessene mittlere Reichweiten von Tl<sup>208</sup> (dem Rückstosskern von ThC) in Al und Ag nach der Formel von Lindhard und Scharff für CCl<sub>2</sub>F<sub>2</sub> umgerechnet worden und ebenfalls in Tabelle I und Figur 1 (R. K. I) eingetragen. Sie liegen durchweg 30% niedriger als die theoretischen Werte von Lindhard und Scharff.

Figur 1 zeigt zum Vergleich die Reichweiten von  $\alpha$ -Teilchen und Elektronen.

In Tabelle I sind ausserdem theoretische Werte der Reichweite-Schwankungen eingetragen, die – weil es sich ungefähr um eine Normalverteilung handelt – in  $\varrho = \sigma/R_r$  ( $\sigma =$  mittlere Schwankung) angegeben werden. Auch bezüglich der Reichweite-Schwankungen besteht gute Übereinstimmung zwischen der Bohrschen Theorie und verschiedenen Messungen <sup>14</sup>)<sup>15</sup>).

α-Strahler			Rückstosskern			Reichweite in Å			Reichweite- Schwankungen <i>q</i>	
		$E_{\alpha}$ MeV	M	$\frac{E_r}{\rm keV}$	$v_r$ $10^7$ cm/s	Вонк	Lind- hard Scharff	Cohen (exp.)	Вонк	Lind- hard Scharff
RaF	$Po^{210}$	5,303	Pb <sup>206</sup>	101,0	3,08	599 (1247)	651 (1146)	391 (688)	0,396 (0,161)	0,250 (0,112)
ThC	Bi <sup>212</sup>	6,047	Tl <sup>208</sup>	114,1	3,25	681 (1419)	743 (1310)	446 (786)	0,394 (0,160)	0,249 (0,111)
Th C'	$Po^{212}$	8,784	Pb <sup>208</sup>	165,7	3,92	982 (2046)	1067 (1886)	640 (1132)	0,394 (0,160)	0,249 (0,111)

Tabelle I

Die aufgeführten Werte für die Reichweiten und Reichweite-Schwankungen beziehen sich auf  $\mathrm{CCl_2F_2}$  bei 29,4°C. Die in Klammern stehenden Zahlen sind für  $\mathrm{C_3H_8}$  bei 18,5°C errechnet worden.

Die aus der kritischen Blase herauslaufenden  $\alpha$ -Teilchen verlieren auf einer Weglänge (im Anfang ihrer Reichweite), die der Reichweite der Rückstosskerne entspricht, nur 3–5% der Rückstossenergie.

Wie aus Figur 1 ersichtlich, ist somit die in (13) geforderte Bedingung – wonach die Reichweite der Teilchen kleiner sein soll als der kritische Blasendurchmesser – bei den Rückstosskernen vom α-Zerfall erfüllt.

# III. Experimentelle Methode

Da nach den Resultaten von Kapitel II die Rückstosskerne vom  $\alpha$ -Zerfall der Forderung (13) in den betrachteten Fällen entsprechen, ist zu erwarten, dass die Bildung von Blasen durch monoenergetische Rückstosskerne mit einem definierten  $\Delta p'$ -Wert einsetzt und dass bei weiterer Erhöhung der Druckdifferenz gleich alle entstehenden Rückstosskerne Blasen bilden werden. Die Aufgabe bestand also darin, die Anzahl der von Rückstosskernen während eines konstanten Zeitintervalles (Empfindlichkeitsdauer der Kammer) gebildeten Blasen in Abhängigkeit von  $\Delta p'$  zu bestimmen. Für diese Dauer sollten bei jedem eingestellten  $\Delta p'$ -Wert Temperatur und hydrostatischer Druck völlig konstant bleiben, im Innern der Kammer überall gleich sein und sich bei jeder Expansion reproduzieren lassen.

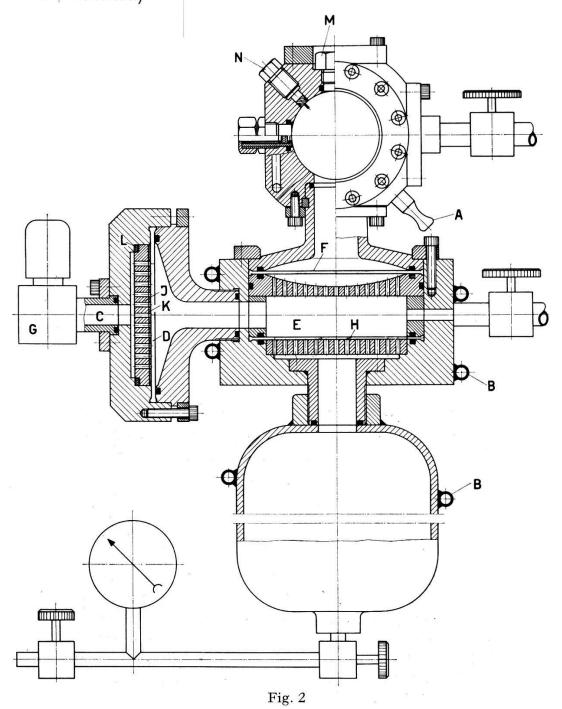
Das machte den Bau einer druck- und temperaturstabilisierten Kammer, ähnlich der von Hahn et al. 19) beschriebenen erforderlich.

Wegen der kurzen Reichweite der Rückstosskerne war es notwendig, die  $\alpha$ -aktiven Substanzen in gelöster Form in die Kammerflüssigkeit zu bringen. Um über die Lösung der Substanzen Gewissheit zu haben und ausserdem beim Einfüllen eine Adsorption an den Metallteilen möglichst zu vermeiden, war es nötig, eine den  $\alpha$ -Strahler enthaltende Verbindung zunächst in einigen Tropfen einer mit der Kammerflüssigkeit mischbaren Substanz zu lösen.

Die vorgesehenen Kammerflüssigkeiten Freon-12 (CCl<sub>2</sub>F<sub>2</sub>) und Propan (C<sub>3</sub>H<sub>8</sub>) liessen sich mit Äthylalkohol und Azeton in den erforderlichen Mengen mischen. Da die α-Strahler Po<sup>210</sup>, ThC und ThC' jeweils in einer Muttersubstanz vorlagen, RaD und ThB, die beide Blei-Isotope darstellen, ging es also um die Herstellung von Bleisalzen, die sich in diesen Substanzen lösen. Als brauchbar erwiesen sich die alkoholische Lösung des basischen Azetates und eine Azeton-Lösung des Nitrates.

Die für die Messungen verwandte, in Fig. 2 dargestellte, zylindrische Kammer hat einen Durchmesser von 6 cm und besitzt ein beobachtbares Volumen von 140 cm³. Daneben diente zu Vergleichsmessungen eine rechteckige Kammer von 10,4×15,4 cm und 1,3 l Inhalt. Zur Regelung der Temperatur wurde temperaturstabilisiertes Wasser durch verschiedene Bohrungen im Kammerkörper (A in Fig. 2) und den angrenzenden Teilen (B) gepumpt. (Zur Verminderung des aus einseitiger Wärmeabfuhr

resultierenden Temperaturgradienten in der Flüssigkeit war die Kammer isoliert montiert.)



Druck- und temperaturstabilisierte Kammer von 140 cm³

Der Expansionszyklus wurde durch Pressluft betätigt (C), die über eine Membran (D) auf eine Zwischenflüssigkeit (E = Äthylalkohol) und über eine weitere Membran (F) auf die Kammerflüssigkeit drückte und mit magnetischen Ventilen (G) gesteuert werden konnte. Die Stabilisierung des bei einer Expansion erreichten Enddruckes  $p_s$  liess sich nach der

von Hahn et al. 19) verwandten Methode verwirklichen, die für übliche Betriebsbedingungen (Registrierung minimal ionisierender Teilchen) gute Ergebnisse geliefert hatte. Allerdings waren die Anforderungen im vorliegenden Fall etwas höher. Der Druckverlauf sollte möglichst angenäherte Rechteckform besitzen, d. h. die Dauer des Druckabfalls klein gegenüber der «Druckplateau»-Dauer sein. Eines der auftretenden Probleme war die Vermeidung von Oszillationen, die durch das plötzliche Abbremsen der sich expandierenden Flüssigkeit durch die Stabilisierungsmembran (H) verursacht wurden. Da die Funktionsweise der Stabilisierung es mit sich brachte, dass die Membran des Expansionsteils (D) schon während des Druckplateaus auf ihr Stützsieb (J) schlug, ergab sich damit im ersten Teil des Druckverlaufs eine weitere Quelle für Oszillationen. Diese konnten aber durch Abpuffern des Aufschlages mit einigen Gummilagen (K, L) ausgeschaltet werden. Ein nach diesen Massnahmen bei den interessierenden Betriebsbedingungen erhaltener Druckverlauf ist in Figur 3 wiedergegeben (gemessen mit einem, den Druck in Widerstandsänderungen umwandelnden Geber von CEC-M in Fig. 2). Die erreichten maximalen «Druckplateau»-Längen lagen – je nach dem  $\Delta p'$  – zwischen 50 und 150 ms.

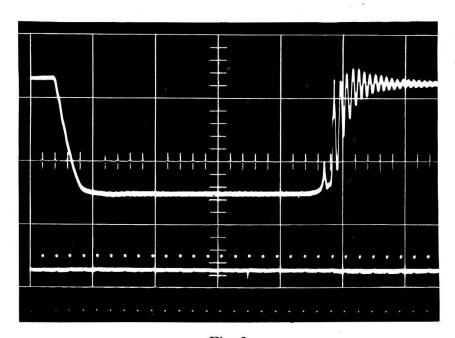


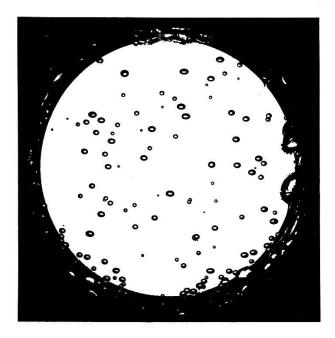
Fig. 3

Druckverlauf in CCl<sub>2</sub>F<sub>2</sub> bei 29,4°C (1,3-l-Kammer)

Abstand der Zeitmarken 10 ms; ein vertikaler Teilstrich entspricht 0,3 kg/cm<sup>2</sup>

Eine einstellbare Verzögerungsschaltung ermöglichte es, den Blitz zum Photographieren der gebildeten Blasen jeweils nach einer bestimmten «Druckplateau»-Länge auszulösen.

Eine typische Aufnahme zeigt Figur 4 ( $C_3H_8$ ); jede Blase entspricht einem Rückstosskern. Bei jeder  $\Delta p'$ -Einstellung wurde eine grössere Zahl solcher Aufnahmen gemacht. Beim Auszählen der Blasen liessen sich störende Randblasen unter Benutzung einer Maske ausschliessen.



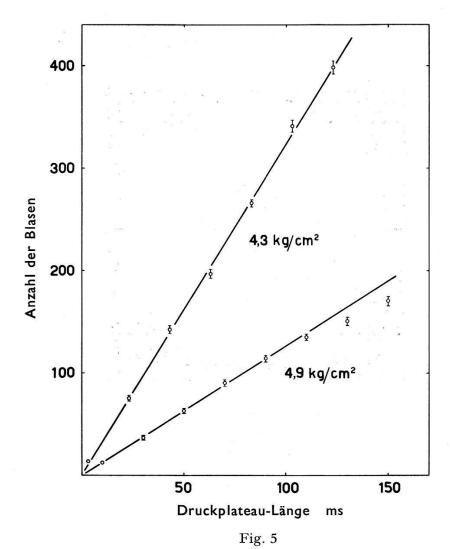
 ${\rm Fig.~4}$  Blasenbildung an Rückstosskernen in  ${\rm C_3H_8}$  bei 18,5°C

Zwischen der Zahl der gebildeten Blasen und der eingestellten «Druckplateau»-Länge ist für einen festen  $\Delta p'$ -Wert ein linearer Zusammenhang zu erwarten. Die experimentelle Bestätigung einer solchen Beziehung zeigt ein Beispiel (Fig. 5) für zwei verschiedene Enddrucke  $p_s$ . (Der eingetragene Fehler rührt von der Statistik her.)

Die Bestimmung der Temperatur wurde mit einem Hg-Thermometer vorgenommen, das sich in gutem thermischen Kontakt mit dem Kammer-körper befand – nachdem sich durch Messungen mit einem Thermoelement in der Flüssigkeit (N in Fig. 2) herausgestellt hatte, dass der Temperaturunterschied zwischen Flüssigkeit und Kammerwand klein (bei 30°C kleiner als 0,1°C) bleibt.

Um bei einer Expansion die Abkühlung der Kammerflüssigkeit (durch Entzug von der zum Heranwachsen der Blasen benötigten Verdampfungswärme) niedrig zu halten, wurde gleich nach der Aufnahme wieder komprimiert («schnelle Rekompression») und damit auch das Aufsteigen von Blasen eingeschränkt, was sonst bei der Kondensation zu einer Temperaturerhöhung im Oberteil der Kammer geführt hätte. Ausserdem war die Zeit zwischen zwei Expansionen so bemessen, dass die Temperatur der

Flüssigkeit sich wieder auf den Wert der Kammerwand einstellen konnte (ca. 20 sec).



Abhängigkeit der Blasenzahl von der Druckplateau-Länge in  $\mathrm{CCl_2F_2}$  bei 29,4°C

# IV. Ergebnisse

Als Kammerflüssigkeiten waren Freon-12 (CCl<sub>2</sub>F<sub>2</sub>) und Propan (C<sub>3</sub>H<sub>8</sub>) gewählt worden – einmal, weil beide das Arbeiten um Raumtemperatur (und höher) ermöglichen, zum anderen, weil sie sich in ihrer Dichte um einen Faktor 2 unterscheiden und daher (bei sonst gleichem thermodynamischen Verhalten) entsprechend verschiedene Reichweiten der Rückstosskerne bedingen.

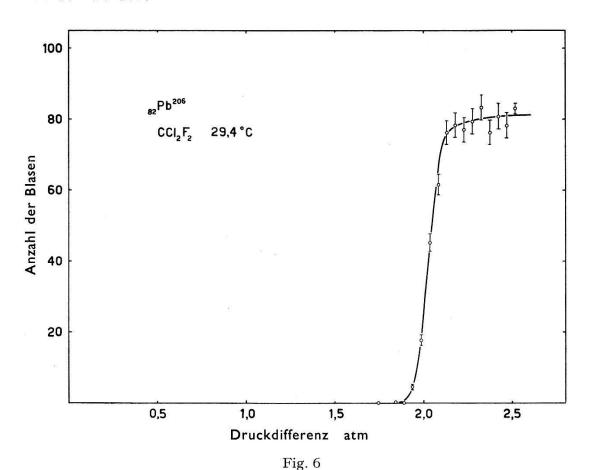
Der Reinheitsgrad der verwendeten Flüssigkeiten war:

Freon-12	99,8%		
Propan	99,5%		

Allen Berechnungen wurden die Tabellenwerte der thermodynamischen Eigenschaften zugrunde gelegt\*).

# Freon-12 (CCl<sub>2</sub>F<sub>2</sub>)

Die Messungen ergaben für die Abhängigkeit der durch Rückstosskerne gebildeten Blasenzahl  $N_b$  vom Überhitzungsgrad  $\Delta p'$  ( $N_b = f(\Delta p')$  den erwarteten stufenförmigen Verlauf; ein Beispiel zeigt Figur 6. Da der Einsatz der Blasenbildung nicht unendlich steil verläuft (die endliche Steigung wird später diskutiert), soll im folgenden unter einem Einsatzpunkt immer der einer halben Stufenhöhe entsprechende  $\Delta p'_0$ -Wert verstanden werden.



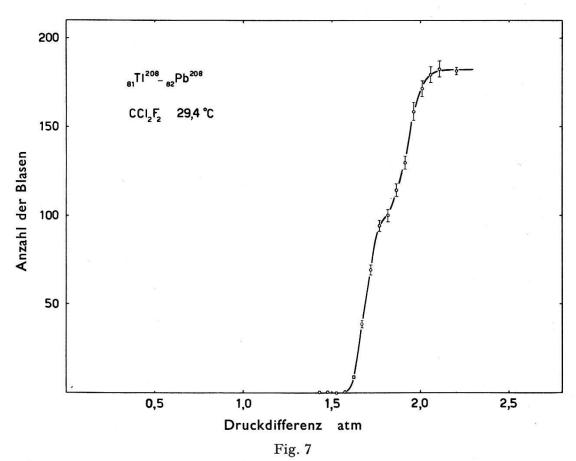
Blasenbildung durch Rückstosskerne von Po<br/>^210 als Funktion der Druckdifferenz in CCl2F2 bei 29,4 °C

Fig. 6 gibt eine der für Pb<sup>206</sup> (vom Po<sup>210</sup>-Zerfall) in CCl<sub>2</sub>F<sub>2</sub> bei 29,4°C erhaltenen Kurven wieder. Eingetragen ist der statistische Fehler. Aus

<sup>\*)</sup> Bei Propan wurden die Werte des Handbook of Chemistry and Physics von 1960/61<sup>20</sup>) und bezüglich der Oberflächenspannung die von Katz und Saltman<sup>21</sup>) verwandt; bei Freon-12 konnte das Du-Pont-Datenblatt von 1956<sup>22</sup>) (Genauigkeit besser als 1%) benutzt werden.

dem Mittelwert der Einsatzpunkte dreier solcher Messreihen folgt ein kritischer Radius von  $r_c = 861$  Å. In diesem Fall ist die Reichweite des Rückstosskerns von 651 Å (den grösseren Wert angesetzt) nicht nur – wie nach (13) verlangt – kleiner als  $2 r_c$ , sondern sogar kleiner als  $r_c$ .

Der Einsatzpunkt hängt von der Rückstossenergie ab, wie sich direkt aus Figur 7 entnehmen lässt; dargestellt ist die für die beiden Rückstosskerne Tl²08 und Pb²08 vom ThB-Präparat bei denselben Betriebswerten gemessene Abhängigkeit  $N_b = f(\Delta p')$  – eine Treppenkurve. Beide Einsatzpunkte liegen tiefer als beim Pb²06, und die entsprechenden Mittelwerte von  $r_c$  zweier gemessener Kurven sind 901 und 1029 Å, gegenüber den Reichweiten von 743 und 1067 Å (LINDHARD-SCHARFF).

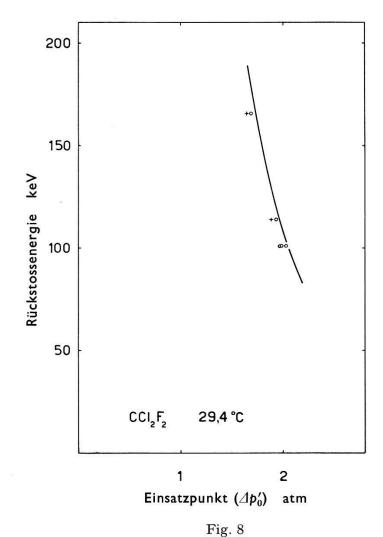


Blasenbildung durch Rückstosskerne von ThC+ThC' als Funktion der Druckdifferenz in  $CCl_2F_2$  bei 29,4°C

Da nach den Überlegungen von Kap. II die ganze Rückstossenergie zur Blasenbildung verfügbar sein sollte, müssen die verschiedenen Rückstossenergien  $E_r$  von den zugehörigen Einsatzpunkten  $\Delta p_0'$  nach einer Funktion abhängen, die durch (13) gegeben wird. Den Vergleich zeigt Figur 8, wo neben der Funktion  $E_r = W'(\Delta p_0') \approx W_c(\Delta p_0')$  (unter Vernachlässigung von  $W_4$  und  $W_5$ ) die experimentellen  $\Delta p_0'$ -Werte eingetragen sind; die auftretenden Abweichungen von der theoretischen Kurve

liegen innerhalb des Fehlers von ca. 2,5% (bez. Mittelwert). (Die mit + bezeichneten Werte stammen von Messungen mit der 1,3-l-Kammer.)

Die von den verschiedenen Termen ( $W_1$  bis  $W_5$ ) zu  $W_c$  gelieferten Beiträge sind im Beispiel von Pb<sup>206</sup> in Tabelle II aufgeführt. Die Aufstellung zeigt, dass es berechtigt war,  $W_4$  und  $W_5$  zu vernachlässigen, und dass als Näherungswert von  $W_c$  der Verdampfungsterm allein schon ausreichen würde.

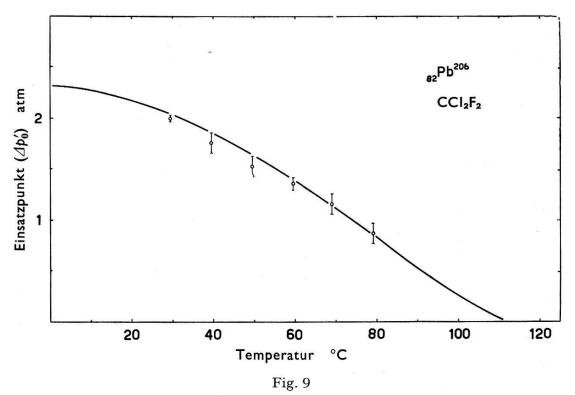


Rückstossenergie in Abhängigkeit von den Einsatzpunkten der Blasenbildung  $(\Delta p_0')$  in  $\mathrm{CCl_2F_2}$ 

Um neben der Bildung von Blasen an Rückstosskernen jede andere Möglichkeit einer Blasenentstehung auszuschliessen, wurde der Nulleffekt untersucht. Nachdem die Aktivität eines ThB-Präparates in der Kammer abgefallen war (in rund 20 Halbwertszeiten auf ca. 10<sup>-6</sup> des Anfangswertes), zeigte sich auf insgesamt 10 Aufnahmen keine einzige Blase mehr – gegenüber mehr als 300 Blasen in 100 ms, die sich vorher bei derselben Einstellung gebildet hatten. Als weitere Kontrolle wurden

die zur Präparierung der  $\alpha$ -Strahler benutzten Substanzen allein in die Kammer gebracht. Auch in diesem Fall war keine Blasenbildung zu beobachten.

Die Übereinstimmung der gemessenen Werte mit den nach den Annahmen von Kap. II erwarteten trifft nicht nur für die eine Temperatur von 29,4°C zu, sondern konnte für Pb²06 (Po²10-Zerfall) in CCl₂F₂ über einen Temperaturbereich von rund 50°C nachgewiesen werden. Wie aus Figur 9 zu ersehen ist, stimmen die gemessenen Einsatzpunkte innerhalb des Fehlers mit der theoretischen Kurve  $E_r = W'(\Delta p_0') \approx W_c(\Delta p_0')$  überein, welche die Abszisse im kritischen Punkt schneidet. Über diesen Temperaturbereich ändert sich die Aufteilung der Energieterme wenig.



Einsatzpunkte der Blasenbildung durch Rückstosskerne von Po $^{210}$  als Funktion der Temperatur in  $CCl_2F_2$ 

Gegenüber der zur Blasenbildung durch Rückstosskerne nötigen Druckdifferenz ist zur Registrierung von Compton-Elektronen ein viel höherer  $\Delta p'$ -Wert erforderlich; für eine Blasendichte von rund 1,0 cm<sup>-1</sup> beträgt er bei 72°C etwa 6,8 atm.

# Propan (C3H8)

Vergleicht man beim Propan – wie für Freon-12 in Figur 1 – die bestimmten thermodynamischen Energien  $W_c$  entsprechenden kritischen Durchmesser mit den Reichweiten der Rückstosskerne (Tab. I), so zeigt

56 H. P. A. 34, 8 (1961)

sich, dass die Bedingung (13) gerade noch erfüllt ist. Demgegenüber war beim Freon-12 sogar  $R_r < r_c$ .

Die mit Propan bei 18,5°C erhaltenen Kurven  $N_b = f(\Delta p')$  gleichen denen vom Freon-12 bei 29,4°C völlig – auch bezüglich der Steilheit der Einsätze –, wie aus Figur 10 und Figur 11 ersichtlich wird.

Wegen der thermodynamischen Ähnlichkeit bei den betrachteten Temperaturen weichen auch die drei Einsatzpunkte ( $\Delta p_0'$ ) und die daraus resultierenden kritischen Radien von 829, 880 und 983 Å nicht stark von den für Freon-12 gefundenen Werten ab.

Tabelle II

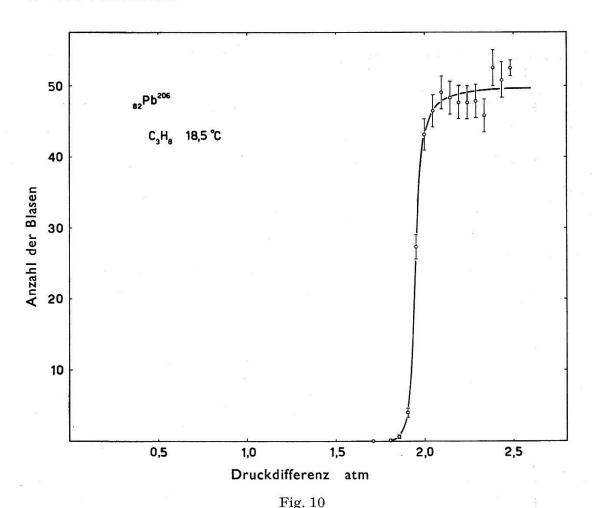
		$\mathrm{CCl_2F_2}$ bei	29,4°C	$\mathrm{C_3H_8}$ bei 1	8,5°C	
Kritischer Radius Anzahl Moleküle in $V_c$ Geschwindigkeit der Blasenwand (max.)	$r_c$ $n_c$	$860.8 \pm 12.7 \text{ Å}$ $5.55 \times 10^5$ $3.04 \times 10^2 \text{ cm/sec}$		829,3 $\pm 19,2$ Å 5,52 $\times 10^{5}$ $\sim 6,1 \times 10^{2}$ cm/sec		
Oberflächenterm  pV-Term  Verdampfungsterm  Kinet. Energie Term  Viskositätsterm  Summe aller Terme	$W_{1} \\ W_{2} \\ W_{3} \\ W_{4} \\ W_{5} \\ W_{c}$	4,9 keV 8,7 keV 94,7 keV 0,3 keV 1,8 keV 110,6 keV ±4,8	4,5% 8,0% 85,7% 0,3% 1,6% 100,0%	4,3 keV 8,9 keV 89,0 keV ~ 0,4 keV ~ 2,6 keV ~105,3 keV		
Energieverlust der $\alpha$ -Teilchen in $2r_c$ - $R_r$ $E_r$ + $\Delta E$	$\Delta E$ $E_0$	11,6 keV in 112,6 keV	1070 Å	2,8 keV 103,8 keV	in 512 Å	

Zusammensetzung der zur Blasenbildung durch Pb²06 mit  $E_r=101,0~{\rm keV}$  nötigen Energiewerte. Da im Fall von C $_3{\rm H}_8$  keine genauen Werte für  $\eta$  und  $\lambda_e$  vorlagen, sind  $W_4$  und  $W_5$  und daher auch in geringem Masse  $W_c$  mit einer kleinen Unsicherheit behaftet.

Wie aus Fig. 12 hervorgeht, stimmt auch hier die Energiebilanz. Die Aufteilung der Energieterme ( $W_1$  bis  $W_5$ ) ist ähnlich wie beim Freon-12, wie man aus den für Pb<sup>206</sup> in Tabelle II aufgeführten Werten entnehmen kann.

Da die Reichweite der Rückstosskerne nur einen Bruchteil des kritischen Durchmessers ausmacht, gerät auch vom  $\alpha$ -Teilchen entsprechend  $2r_c - R_r$  ein kleiner Energiebetrag  $\Delta E$  (im Fall von  $\mathrm{CCl_2F_2}$  bei 29,4°C ca. 10% der Rückstossenergie, für  $\mathrm{C_3H_8}$  bei 18,5°C nur etwa 3% – siehe Ta-

belle II) in das kritische Volumen. Unter Berücksichtigung der Summe  $E_r + \Delta E = W_c(\Delta p')$  wird die in Figur 8 und Figur 12 systematisch erscheinende Abweichung zwischen theoretischen und experimentellen Werten verkleinert.



Blasenbildung durch Rückstosskerne von Po<br/><sup>210</sup> als Funktion der Druckdifferenz in  $\rm C_3H_8$  be<br/>i $\rm 18,5^{\circ}C$ 

### Korrekturen und Fehler

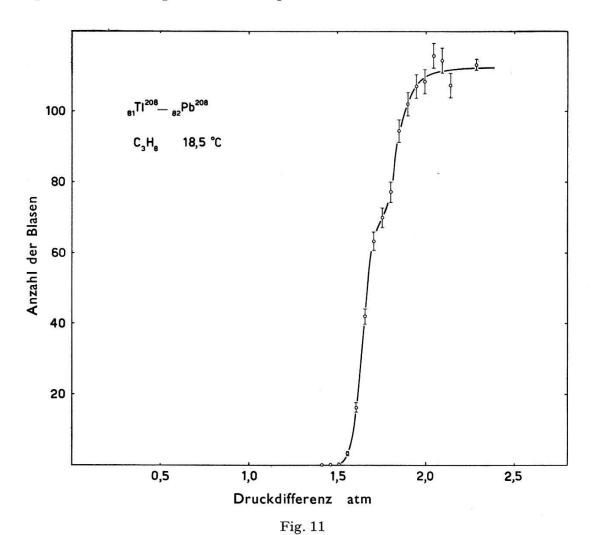
An den gemessenen Werten waren einige kleine Korrekturen anzubringen, die sich aus folgenden Anteilen zusammensetzten. Der jeweilige Korrekturwert soll immer für einen typischen Fall angegeben werden.

a) Da im Verlauf einer Messreihe infolge von Adsorption der  $\alpha$ -Strahler an den Kammerwänden und wegen der beim ThB-Präparat kurzen Halbwertszeit (10,6 h) ein Verlust von Aktivität auftrat, war eine entsprechende Korrektur erforderlich, die sich aber nach einer für einen Referenzpunkt ( $\Delta p'$ ) erhaltenen Korrekturkurve (ein Beispiel zeigt Figur 13) bewerkstelligen liess. Die aus solch einer Kurve resultierende Halbwertszeit

der Aktivitätsabnahme  $\tau$  setzt sich zusammen aus der des Präparates selbst  $\tau_1$  und der der Adsorption  $\tau_2$  nach

$$\frac{1}{\tau}=\frac{1}{\tau_1}+\frac{1}{\tau_2},$$

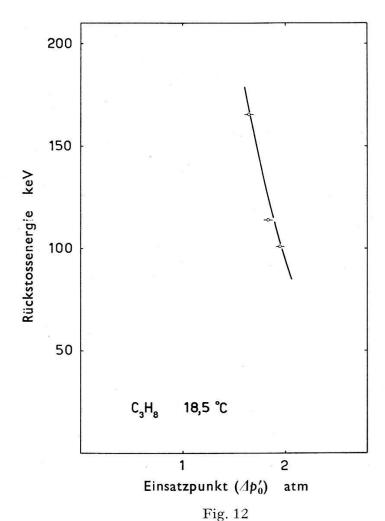
woraus sich im Beispiel des ThB-Präparates mit  $\tau=4,45$  h (Fig. 13) und  $\tau_1=10,64$  h ein  $\tau_2$  von 7,65 h ergibt.



Blasenbildung durch Rückstosskerne von ThC+ ThC' als Funktion der Druckdifferenz in  $\rm C_3H_8$  bei 18,5°C

b) Eine den Einsatzpunkt direkt beeinflussende Korrektur ergab sich aus der Tatsache, dass die zum Einbringen der  $\alpha$ -Strahler verwandte Lösung eine geringe Änderung (Erhöhung) des Dampfdruckes verursachte, die für  $C_3H_8$  bei 18,5°C im Mittel 1,6% betrug. (Der relativ hohe Wert ist wahrscheinlich durch Ioneneffekte bedingt.) Diese Differenz wurde aus Messungen des Dampfdruckes nach jeder Messreihe (unter Vergleich mit der eingefüllten Menge und dem erhaltenen Wert von  $\tau_2$ )

bestimmt, und zwar mit einer Genauigkeit von 0,04 atm. Wegen der geringen hinzugegebenen Menge konnte angenommen werden, dass sich die übrigen thermodynamischen Eigenschaften wie  $\varrho_e$ ,  $\varrho_v$ ,  $\sigma$ , h, etc. sehr viel weniger ändern als der Dampfdruck.



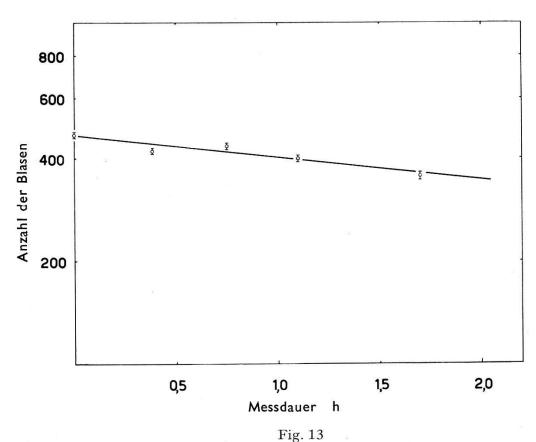
Rückstossenergie in Abhängigkeit von den Einsatzpunkten der Blasenbildung ( $\varDelta p_0'$ ) in  $C_3H_8$ 

Das zu den Messungen von  $p_{\infty}$  sowie  $p_s$  benutzte Manometer war ein Präzisionsmanometer vom Bourdon-Typ.

Unter Berücksichtigung aller Fehler wird die Genauigkeit in der Bestimmung der Einsatzpunkte ca. 0,05 atm (Einzelmessung), also rund 2,5%.

c) Nicht alle während einer bestimmten Zeit (Druckplateau-Länge) entstandenen Rückstosskerne führen zu sichtbaren Blasen, da zum Wachsen der Blasen eine gewisse Zeit nötig ist. Von der durch den Zeitpunkt der Blitzauslösung definierten Druckplateau-Länge musste also die zum Wachsen auf sichtbare Grösse benötigte Zeit  $t_0$  abgezogen werden.

Das Wachsen einer Blase von sichtbarer Grösse (Radius r) folgt – wie auch theoretisch zu erwarten – einem Verlauf, der durch  $r=at^{1/2}$  gegeben ist (a= Wachstumskoeffizient). Zur Bestimmung von  $t_0$  wurde bei einem festen  $\Delta p'$ -Wert das a aus der Abhängigkeit des jeweils grössten Blasenradius r auf einer Aufnahme von der Druckplateau-Länge t ermittelt. Die Umrechnung von a für andere  $\Delta p'$ -Werte liess sich nach einer von Birkhoff et al. et al. et al angegebenen Gleichung – eine Weiterführung der Theorie des Blasenwachsens von Plesset und Zwick et – vornehmen.



Blasenzahl des Referenzpunktes (ein fixes  $\Delta p$ ) in Abhängigkeit von der Messdauer

Mit diesen Werten für a und dem Radius  $r_0$  der kleinsten noch sichtbaren Blasen ergab sich  $t_0$  in Abhängigkeit von  $\Delta p'$ . Die daraus folgende Korrektur für die Druckplateau-Länge betrug im Mittel ca. 1%.

d) Da sich kein völlig rechteckiger Druckverlauf verwirklichen liess und daher ein kleiner Prozentsatz der Blasen, der von  $\Delta p'$  abhängt, schon während des Druckabfalls gebildet wurde, war eine weitere, der vorhergehenden entgegenwirkende Korrektur für die Druckplateau-Länge erforderlich. Ihre Berechnung aus dem photographierten Druckverlauf führte zu Beträgen von ca. 2,5%.

# Schwankung der Einsatzpunkte

Ob die endliche Steilheit der Kurveneinsätze von  $N_b = f(\Delta p')$  – die in allen Fällen (Fig. 6, 7, 10, 11) ungefähr gleiche Werte aufwies – vom Mechanismus der Blasenbildung herrührt oder experimentell bedingt ist, soll im folgenden näher untersucht werden.

Unter der Annahme einer Normalverteilung für die Schwankung der Einsatzpunkte ergaben sich für diese Kurven (Fig. 6, 7, 10, 11) aus einer normierten Darstellung in einem Wahrscheinlichkeitsnetz\*)  $\varrho$ -Werte von ungefähr 3,5% (wobei  $\varrho$  den Quotienten von mittlerer Schwankung und Mittelwert bedeutet).

Dieser Betrag von  $\varrho$  setzt sich aus experimentell bedingten und vom Mechanismus der Energieabgabe herrührenden Anteilen zusammen

$$arrho^2 = arrho_{ ext{exp}}^2 + arrho_M^2$$
 .

 $\varrho_{\rm exp}$  ist im wesentlichen auf einen noch geringfügigen Temperaturgradienten in der Kammerflüssigkeit ( $\varrho_1$ ) und auf ein nicht völlig konstantes Druckplateau ( $\varrho_2$ ) zurückzuführen (Druckstabilisierung).

Der Temperaturgradient bewirkte bei den für die obere und untere Kammerhälfte getrennt aufgetragenen Beziehungen  $N_b = f(\Delta p')$  eine geringe Aufspaltung der Einsatzpunkte. Die für die obere und untere Kammerhälfte erhaltenen  $\varrho$ -Werte sind kleiner als der über die ganze Kammer gemittelte Betrag von  $\varrho$ . Als Unterschied zwischen diesen Werten ergibt sich  $\varrho_1$  (Differenz der Quadrate), welches bei 30°C ca. 0,8% beträgt.

Die beschränkte Konstanz des Druckplateaus – der Anteil  $\varrho_2$  – lässt sich direkt aus einem photographierten, kalibrierten Druckverlauf (Fig. 3) entnehmen.  $\varrho_2$  ergab sich im praktischen Fall (bei 30°C) zu ungefähr 1,2%.

Daneben besteht noch die Möglichkeit, aus der in Figur 5 wiedergegebenen Beziehung zwischen Blasenzahl und Druckplateau-Länge etwas über die Grösse von  $\varrho_2$  auszusagen, falls die Messung bei einem  $\rho_s$ -Wert vorgenommen wurde, der in der Flanke des Kurveneinsatzes von  $N_b = f(\Delta p')$  liegt; die Inkonstanz des Druckplateaus sollte Abweichungen von der Linearität dieser Beziehungen bewirken. Aus der im Beispiel von Figur 5 bei  $\rho_s = 4.9$  kg/cm² (einem Wert in der Flanke von  $N_b = f(\Delta p')$ )

$$y = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int_{-\infty}^{x} \exp(-t^2/2) dt$$

vorgenommen, so dass eine integrale Gaußsche Verteilung von Daten als Gerade wiedergegeben wird.

<sup>\*)</sup> Die Einteilung der Ordinate y ist gegenüber der linearen Abszisse x gemäss

gemessenen Kurve folgt nach Umrechnung der Steigungsänderungen in Druckschwankungen für die ersten 120 ms ein  $\varrho_2$  von etwa 1,5%.

Als Summe von  $\varrho_1$  und  $\varrho_2$  ergibt sich damit für  $\varrho_{\rm exp}$  ein Wert von rund 1,8%, so dass für den Mechanismus der Energieabgabe ( $\varrho_M$ ) noch ca. 2,5% bleiben.

## V. Diskussion der Ergebnisse

Um die experimentelle Bestätigung der in Kap. II unter vereinfachenden Annahmen aufgestellten Energiebilanz als gesichertes Ergebnis ansehen zu können, bedürfen diese Annahmen einer näheren Begründung.

Die Anzahl der im kritischen Volumen enthaltenen Moleküle (ca. 10<sup>6</sup>, siehe Tabelle II) ist genügend gross, um eine makroskopische Behandlung der Blasenbildung zu rechtfertigen.

In allen Überlegungen war stillschweigend angenommen worden, dass innerhalb einer Zeit, die klein gegenüber  $\tau_c$  ist, die ganze Rückstossenergie in thermische Energie umgewandelt wird. Diese Annahme war insofern berechtigt, als ein hoher Bruchteil vom Energieverlust eines abbremsenden Rückstosskerns in elastischen Stössen abgegeben 13) und unmittelbar in thermische Energie umgesetzt wird (Abbremszeit für Rückstosskerne  $\sim 10^{-13}$  sec).

Darüber hinaus steht nach der für Flüssigkeiten kleinen Rekombinationszeit  $\tau_R$  (im vorliegenden Fall mindestens eine Grössenordnung kleiner als  $\tau_c$ ) auch der zur Ionen-Bildung verbrauchte restliche Prozentsatz als thermische Energie zur Verfügung. (Eine Diskussion über  $\tau_R$  folgt weiter unten.)

Ein genereller Beweis für die Berechtigung der gemachten Voraussetzungen ergibt sich aus den Messungen selbst. Bei der Aufstellung der Energiebilanz war angenommen worden, dass die ganze Rückstossenergie zur Bildung einer kritischen Blase verfügbar ist. Wenn nun diese Energie schon durch unbedingt zu berücksichtigende thermodynamische Energieterme ( $W_c$  ist ein Minimalwert) aufgebraucht wird – wie die experimentellen Ergebnisse bewiesen haben –, so folgt daraus, dass keine weiteren Energieterme in Betracht zu ziehen sind. Es soll aber nicht ausgeschlossen werden, dass bei der Blasenbildung noch unbekannte Energieterme eine Rolle spielen, deren Werte sich gegenseitig kompensieren.

Aus den gemessenen Kurven lässt sich ein weiteres Argument dafür folgern, dass die Rückstosskerne ihre ganze Energie im kritischen Volumen abgeben. Ginge nämlich ein Bruchteil von  $E_r$  ausserhalb verloren, so würden wegen der grossen Reichweite-Schwankungen der Rückstosskerne von ca. 30% (Tab. I) die Einsatzpunkte entsprechend verwischt werden, und die beiden Rückstossenergien der ThB-Quelle liessen sich nicht mehr auflösen.

Gegen die bisherigen Überlegungen hätte man als Einwand die Möglichkeit der Blasenbildung an einer besonders energiedichten Stelle der α-Spur – wie sie das Maximum der Bragg-Kurve darstellt – anführen können. Dagegen sprechen aber die folgenden Argumente:

- a) Der mit diesem Maximum zusammenhängende Energieverlust ist über eine Länge von  $2r_c$  gerechnet für  $\mathrm{CCl_2F_2}$  mindestens 2mal, für  $\mathrm{C_3H_8}$  mindestens 4mal kleiner als die Energie des Rückstosskerns, so dass der Einsatzpunkt von  $N_b = f(\Delta p')$  erst bei einem höheren  $\Delta p'$ -Wert liegen sollte.
- b) In diesem Fall dürfte ausserdem der Einsatzpunkt nicht von der Energie des α-Strahlers abhängen, da das Maximum der Bragg-Kurve sich nicht mit der α-Energie ändert.
- c) Ein weiteres Gegenargument ergibt sich aus der mit einer Blasenbildung an der  $\alpha$ -Spur verbundenen Schwankung des Energieverlustes (die sich als Schwankung des Einsatzpunktes bemerkbar machen müsste). Mit dem für Pb<sup>206</sup> in Freon-12 bei 29,4°C erhaltenen kritischen Durchmesser von 1027 Å (der rund 180 mal kleiner als die Reichweite des  $\alpha$ -Teilchens von Po<sup>210</sup> ist) wäre eine Schwankung des Einsatzpunktes von etwa 4,5% zu erwarten ein Wert, der doppelt so gross wie das experimentell bestimmte  $\rho_M$  ist.

Man kann nun versuchen, diese Ergebnisse nach der früheren Ladungstheorie von Glaser<sup>25</sup>) zu erklären.

Zur Bildung des kritischen Volumens – das sich hier aus der Bedingung  $r_c^* = 3 \sigma/2 \Delta p \text{ ergibt}^{25}$ ) – wären im Fall von Pb<sup>206</sup> in Freon-12 bei 29,4°C mit einem  $r_c^*$  von 646 Å etwa 500 Ionen gleicher Ladung notwendig. Verglichen damit reicht die Zahl der vom Rückstosskern (101 keV) gebildeten Ionen völlig aus - sofern die von ihm zur Bildung eines Ionenpaares aufzubringende Energie / auf folgende Weise abgeschätzt werden kann: Entsprechend den Ergebnissen von Jesse und Sadauskis<sup>26</sup>) (für Argon und Helium) soll vorausgesetzt werden, dass auch in Flüssigkeiten ein Rückstosskern ungefähr 4mal mehr Energie zur Bildung eines Ionenpaares aufwenden muss als ein α-Teilchen. Lässt sich ausserdem mit RICHARDS <sup>27</sup>) und GOLDBURG <sup>28</sup>) annehmen, dass ein α-Teilchen auch in Flüssigkeiten ca. 30 eV zur Bildung eines Ionenpaares aufbringen muss, so ergibt sich / zu rund 120 eV. Damit wird die vom Rückstosskern gebildete Ionenzahl ca. 840. (Dass überhaupt noch - entgegen den Annahmen von Kapitel II – Ionen gebildet werden, wäre nach Вонк darauf zurückzuführen, dass die Stossprozesse nicht streng adiabatisch verlaufen 13).)

Um elektrostatische Energie  $E^*$  in zur Blasenbildung ausreichenden Beträgen zu schaffen, ist eine Trennung der in genügender Zahl vorhandenen Ionen auf Distanzen, die vergleichbar mit  $r_{sc}$  sind, notwendig. Ein

890

solcher Prozess kann aber nur dann zustande kommen, wenn sich ein hoher Bruchteil der losgelösten Elektronen von den positiven Ionen wegbewegt und die kinetische Energie der Elektronen (Grössenordnung eV) bzw. der gebildeten negativen Ionen den nötigen Energiewert  $E^*$  aufzubringen vermag. Im praktischen Fall von Pb<sup>206</sup> in Freon-12 führt eine Abschätzung der gesamten kinetischen Energie der Elektronen allerdings zu einem im Vergleich zu  $E^*$  (für den subkritischen Blasenradius gerechnet) viel zu kleinen Wert.

Darüber hinaus verlangt dieser Mechanismus noch ein Weiterbestehen der Ladungstrennung über die ganze Zeit  $\tau_c$ , die eine Blase zum Wachsen auf kritische Grösse gebraucht, und damit eine im Vergleich zu  $\tau_c$  grosse Rekombinationszeit der Ionen  $\tau_R$ . Im Gegensatz zu Gasen ist der Wert von  $\tau_R$  für Flüssigkeiten sehr niedrig; eine Abschätzung liefert mit den Resultaten von Goldburg 28) für die vom Rückstosskern geschaffene Ionenkonzentration von n  $\approx 8 \times 10^{17}$  cm<sup>-3</sup> in Propan (gemäss  $\tau_R = 1/n \alpha$ , worin  $\alpha$  der Rekombinationskoeffizient ist) ein  $\tau_R$  von etwa  $3 \times 10^{-10}$  sec. Dieser Wert ist im Verhältnis zu der nach Gleichung (3) aus den experimentellen kritischen Radien erhaltenen maximalen Wachstumsdauer  $\tau_c$  von ca.  $10^{-8}$  sec um mehr als eine Grössenordnung zu klein. Damit wird ein Fortbestehen der Ladungstrennung über die Zeit  $\tau_c$  sehr unwahrscheinlich.

Bestätigt werden die dieser Abschätzung zugrunde liegenden Werte durch die in verschiedenen Arbeiten zur Jaffe-Theorie (Kolonnen-Ionisation) erwähnten kleinen Rekombinationszeiten <sup>27</sup>) <sup>29</sup>).

Nach diesen verschiedenen Argumenten scheint eine Erklärung der Blasenbildung durch Rückstosskerne mit der Ladungstheorie ziemlich aussichtslos.

# Blasenbildung durch Auger-Elektronen von A<sup>37</sup>

Die Darstellung der Beziehung zwischen der zur Blasenbildung nötigen Energie und der Reichweite der Teilchen in Figur 1 bringt die Frage mit sich, ob nicht auch für niederenergetische Elektronen Experimente der beschriebenen Art unternommen werden können.

Eine zum Studium niederenergetischer Elektronen geeignete Quelle stellt A<sup>37</sup> dar; ausser Rückstosskernen (Cl<sup>37</sup> von 9,7 eV) von der Neutrino-Emission werden nur Auger-Elektronen der K- und L-Schale geliefert. In ca. 85% aller Zerfälle entsteht ein Elektron (K-Schale) von 2,3 keV.

Da die Reichweite dieser Elektronen allerdings etwa zweimal grösser als der zu erwartende kritische Durchmesser ist (Fig. 1), kann ein Experiment bestenfalls die grössenordnungsmässige Übereinstimmung der Teilchenenergie mit der zur Blasenbildung nötigen Energie beweisen. Immerhin lohnt es sich zu erfahren, ob auch in diesem Energiebereich die Energiebilanz wenigstens noch näherungsweise stimmt.

Zur Untersuchung dieser Frage wurde  $A^{37}$  in geringer Konzentration  $(9 \times 10^{-4})$  in CBrF<sub>3</sub> (Freon-13 B 1) gelöst und die Messungen unter den in Kap. II beschriebenen Voraussetzungen vorgenommen. Wie auf Grund der starken Vielfachstreuung und Reichweite-Schwankungen zu erwarten, zeigten die erhaltenen Kurven keine scharfen Einsatzpunkte, sondern entsprachen einer spektralen Verteilung von Energiedichten. Zur Blasenbildung an den 1% aller entstandenen Auger-Elektronen, die die grösste Energiedichte schaffen, war bei 36,1°C eine Druckdifferenz  $\Delta p'$  von 6,14 atm nötig. Diesem Wert entspricht ein kritischer Radius von 94,6 Å, womit zur Bildung des kritischen Volumens eine Energie von  $W_c = 455\,\mathrm{eV}$  erforderlich wird. (Der  $\Delta p'$ -Wert, bei dem für diese  $A^{37}$ -Intensität gerade noch Blasenbildung beobachtet wurde, bedingt bei dieser Temperatur ein  $W_c$  von 524 eV.)

Verglichen mit diesem Betrag ist der Energieverlust des Elektrons über den Durchmesser des sphärisch gedachten subkritischen Volumens (94,2Å) ca. 2mal grösser, was seine Ursache wohl darin hat, dass wegen der bei diesen Energien ausgesprochenen Vielfachstreuung nur ein Bruchteil der Elektronen die Energie im subkritischen Volumen konzentriert.

Dieses Beispiel zeigt, dass auch im Energiebereich von einigen keV die in Kap. II berechneten Energieterme die Verhältnisse noch angenähert wiedergeben.

Für sein förderndes Interesse an dieser Arbeit und für wertvolle Ratschläge sind wir Herrn Prof. Dr. O. Huber sehr zu Dank verpflichtet. Den Herren Dr. R. N. Peacock, E. Hugentobler, P. D. Dr. W. Czaja und G. W. Tenner danken wir für anregende Diskussionen.

Für die Bereitstellung von Mitteln möchten wir der Kommission für Atomwissenschaft (Schweizerischer Nationalfonds) danken.

# Literatur

- 1) F. Seitz, Phys. of Fluids 1, 2 (1958).
- <sup>2</sup>) I. A. Pless und R. J. Plano, Rev. Sci. Instr. 27, 935 (1956).
- 3) D. A. Glaser, Handbuch der Physik 45, 314 (1958).
- 4) G. A. Askar'ian, Sov. Phys. JETP 4, 761 (1957).
- <sup>5</sup>) P. P. Vavilov, Sov. Phys. JETP 5, 1276 (1957).
- 6) L. Bertanza, G. Martelli und B. Tallini, Nuovo Cimento 5, 940 (1957).
- 7) B. Alfredsson und T. Johansson, Arkiv Fysik 19, 383 (1961); T. Johansson, Arkiv Fysik 19, 397 (1961).
- 8) J. A. Ghormley, J. Nucl. Energy 6, 300 (1958).
- 9) P. Bassi, G. Brautti und M. Ceschia, Nuovo Cimento 10, 1148 (1959).
- <sup>10</sup>) G. RIEPE und B. HAHN, Helv. Phys. Acta 33, 540 (1960).
- <sup>11</sup>) M. Volmer, Kinetik der Phasenbildung, Dresden-Leipzig, Th. Steinkopf (1939).
- <sup>12</sup>) G. C. Hanna, Experimental Nuclear Physics III, ed. by E. Segre (J. Wiley and Sons Inc., New York, Chapman and Hall, Ltd., London 1959), p. 177.

- 13) N. Bohr, Kgl. Danske Videnskab. Selskab. Math.-fys. Medd. 18/8 (1948).
- <sup>14</sup>) L. Winsberg und J. M. Alexander, Phys. Rev. 121, 518 (1961).
- <sup>15</sup>) B. G. Harvey, W. H. Wade und P. F. Donavan, Phys. Rev. 119, 225 (1960).
- 16) J. LINDHARD und M. SCHARFF, private Mitteilung, zitiert von R. B. LEACHMAN und H. ATTERLING, Arkiv Fysik 13, 101 (1957).
- <sup>17</sup>) K. O. Nielson, Electromagnetically Enriched Isotopes and Mass Spectrometry, ed. by M. L. Smith (Butterworths Scientific Publications, Ltd., London 1956).
- <sup>18</sup>) S. G. Cohen, Proceedings of the Rehovoth Conference on Nuclear Structure, ed. by H. J. Lipkin (North-Holland Publishing Company, Amsterdam 1958), p. 580.
- <sup>19</sup>) B. Hahn, A. W. Knudsen und E. Hugentobler, Nuovo Cimento 15, Suppl. 2, 236 (1960).
- 20) Handbook of Chemistry and Physics, 42nd edition 1960/61 (Chemical Rubber Publishing Co., Cleveland, Ohio).
- <sup>21</sup>) D. L. Katz und W. Saltman, Ind. Eng. Chem. 31, 91 (1939).
- <sup>22</sup>) Thermodynamic Properties of Freon-12, E. I. Du Pont De Nemours, Delaware (1956).
- <sup>23</sup>) G. Birkhoff, R. S. Margulies und W. A. Horning, Phys. of Fluids 1, 201 (1958).
- <sup>24</sup>) M. S. Plesset und S. A. Zwick, J. Appl. Phys. 25, 493 (1954).
- <sup>25</sup>) D. A. Glaser, Nuovo Cimento 11, Suppl. 2, 361 (1954).
- <sup>26</sup>) W. P. Jesse und J. Sadauskis, Phys. Rev. 102, 389 (1956).
- <sup>27</sup>) E. W. T. RICHARDS, Proc. Phys. Soc. 66 A, 631 (1953).
- <sup>28</sup>) W. I. Goldburg, Phys. of Fluids 1, 353 (1958).
- <sup>29</sup>) R. GIBAUD, J. Phys. Radium 19, 17 S (1958).
- 30) D. Strominger, J. M. Hollander und G. T. Seaborg, Rev. Mod. Phys. 30, 585 (1958).